

TESE DE DOUTORADO

**Interações Magnéticas em Tricamadas
NiO/Cu/NiFe e NiO/Cr/NiFe
com Anisotropia Unidirecional**

Urbano Miguel Tafur Tanta

Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas

Rio de Janeiro
Outubro 2008

Livros Grátis

<http://www.livrosgratis.com.br>

Milhares de livros grátis para download.

*Dices que tienes corazón,
y sólo lo dices
porque sientes sus látidos,
eso no es corazón ;
es una máquina,
que, al compás que se mueve,
hace ruido.
G. A. Becker*

*M^a Eduarda,
uma luz, em três anos
de escuridão.
Minha família;
apesar da distância
e o tempo afastado deles,
em momento algum deixaram
de representar muito para mim.*

AGRADECIMENTOS

Gostaria de agradecer em primeiro lugar, à minha orientadora, Dra. Elisa M. Baggio Saitovitch pela oportunidade de pertencer ao seu grupo de trabalho, pela confiança depositada, e por toda a ajuda e a dedicação que forneceu para o término deste trabalho.

Agradeço também ao Dr. Valberto Pedruzzi Nascimento pelos ensinamentos, pela amizade, pelas valiosas contribuições e pelas discussões que resultaram na elaboração desta tese.

Agradeço aos meus amigos do Laboratório de Filmes Finos, Dr. Willian Alayo e ao Dr. Alexandre Mello pela ajuda amigável, pelos anos de convivência, pelo ensinamento, pelas discussões e sugestões.

Agradeço aos meus amigos Daniel, Victor, Virginia, Gabriel, . . . agradeço a todos eles pela ajuda acadêmica, pela hospitalidade, pelo ânimo e pelo entusiasmo dado nos momentos em que foram necessários. A Gabriela, pelo *assunto de missa* e para *encurtar prosa* na *Confissão*, você sabe porque. . .

Minha gratidão à Dra. Ana Paula Dornelles de Alvarenga pelos ensinamentos quanto à análise dos dados de dicroísmo e a Carla Baggio pela ajuda nas correções da gramática portuguesa, o que permitiu melhorar a redação da tese.

Agradeço ao Dr. Yutao Xing pelo apoio nas medidas de magnetização e à técnica Valéria Moraes pelas medidas de difração de raios X.

Minha gratidão ao Laboratório Nacional de Luz Síncrotron (LNLS) e à Associação Brasileira de Tecnologia de Luz Síncrotron (ABTLuS) pelas facilidades e pelo apoio fornecido durante o tempo das medições, assim como ao pessoal técnico e administrativo.

Meus agradecimentos ao CBPF pela oportunidade de fazer a pós-graduação e ao CNPq pela bolsa concedida para a elaboração do presente trabalho.

RESUMO

Nesta tese é apresentado um estudo da interação magnética de curto e de longo alcance entre a camada antiferromagnética (AF) de NiO e a camada ferromagnética (FM) de NiFe no sistema com anisotropia unidirecional NiO/NiFe. A escolha deste sistema deve-se, principalmente, a seu valor apreciável do campo de polarização de troca (H_{EB}), quando comparado ao H_{EB} de outras bicamadas do tipo AF/FM, por exemplo, as bicamadas compostas com a liga AF FeMn. Além disso, trata-se de um sistema que é amplamente conhecido e pesquisado, havendo, portanto, abundante informação quanto a suas propriedades estruturais e magnéticas.

As amostras foram produzidas por magnetron *sputtering* sobre substratos de Si<100> monocristalino e são divididas em três conjuntos: As bicamadas NiO/NiFe e as tricamadas NiO/Cu/NiFe e NiO/Cr/NiFe. Em todos os casos, a anisotropia unidirecional foi induzida por um campo magnético estático de 480 Oe, aplicado no plano dos filmes durante o processo de crescimento. O primeiro conjunto visa otimizar as características estruturais e magnéticas do sistema NiO/NiFe, reproduzindo algumas das propriedades já reportadas na literatura como a interação de troca de curto alcance entre as camadas AF e FM e sua origem interfacial. Para isto, foram aperfeiçoadas as condições de crescimento para cada camada e foi realizado um estudo do magnetismo interfacial em amostras com diferentes espessuras da camada FM. Por outro lado, os conjuntos de tricamadas permitiram analisar a interação magnética de longo alcance entre as camadas de NiO e NiFe mediada pelas camadas não magnéticas de Cu e Cr. Estas amostras foram preparadas com espessuras de 35nm de NiO e de 3nm de NiFe, previamente determinadas através do primeiro conjunto de amostras. A espessura das camadas de Cu e Cr foi variada entre 0.5 e 5nm.

As técnicas utilizadas para as análises foram a refletividade e difração de raios-X, medidas de magnetização com um magnetômetro SQUID, absorção de raios-X (XAS) e dicroísmo circular magnético de raios-X (XMCD). Com as medidas de refletividade e difração de raios-X foram determinadas a rugosidade, a textura cristalográfica e o tamanho de grão das amostras. A partir das medidas magnetização foi estudada a interação de troca de curto e de longo alcance entre as camadas de NiO e NiFe, determinando os parâmetros importantes, tais como a energia interfacial por unidade de área, o campo de polarização de troca e o campo coercitivo. Através das medidas de XMCD foi possível determinar separadamente os momentos magnéticos do Fe e Ni nas interfaces das bicamadas e tricamadas, bem como observar um magnetismo induzido nas camadas não magnéticas.

Nas bicamadas NiO/NiFe foi observada uma dependência linear entre H_{EB} e o inverso da espessura da camada FM, indicando a origem interfacial da polarização de troca. O ajuste do modelo fenomenológico de Meiklejohn and Bean aos dados

experimentais fornece uma energia interfacial de $\sigma = 0.024 \text{ erg/cm}^2$. Os momentos magnéticos de spin (m_{spin}) do Fe e Ni das bicamadas, obtidos do ajuste das medidas de XMCD, apresentam valores muito próximos aos valores característicos da liga NiFe em amostras com espessuras de NiFe maiores que 3nm. Porém, para espessuras menores e iguais a 3 nm, é observada uma diminuição de m_{spin} tanto do Fe como do Ni. Essa diminuição é atribuída à rugosidade e interdifusão atômica, conduzindo à formação de ligas antiferromagnéticas nas interfaces, tornando-se relevantes para espessuras muito finas da camada ferromagnética.

A inserção das camadas separadoras de Cu e Cr entre as camadas de NiO e NiFe gera mudanças nas propriedades magnéticas do sistema NiO/NiFe. Através das medidas de magnetização foi observada uma diminuição de H_{EB} em função da espessura da camada separadora, o que indica que o efeito de polarização de troca é uma interação de longo alcance. Essa diminuição é observada até uma espessura crítica de aproximadamente 2.0 nm para o Cu e 1.7 nm para o Cr, a partir das quais, $H_{EB} = 0$, indicando a ausência de acoplamento de troca. Os valores de m_{spin} do Fe e Ni das tricamadas, obtidos das medidas de XMCD, são menores que os respectivos valores característicos para a liga NiFe nas amostras com espessuras de Cu e Cr entre 0 e 1,5nm. Porém, nesse intervalo também é observado um aumento progressivo de m_{spin} em ambos os casos. Para espessuras maiores que 2 nm de Cu e Cr os valores de m_{spin} são similares aos valores da liga pura de NiFe volumétrico. Um dos resultados mais importantes é a observação de espectros de dicroísmo para o Cu e Cr nas tricamadas, evidenciando um momento magnético induzido nas camadas não magnéticas. Assim, estes resultados fornecem evidências de uma interação de longo alcance em sistemas com anisotropia unidirecional.

ABSTRACT

This thesis report a study of the short and long-range magnetic interaction between the NiO antiferromagnetic (AF) layer and the NiFe ferromagnetic (FM) layer in the NiO/NiFe system with unidirectional anisotropy. This system was selected due, mainly to the appreciable value of its exchange bias field (H_{EB}) when compared to H_{EB} of other AF/FM bilayers, for instance, the bilayers composed by the FeMn AF alloy. Moreover, this is a system widely known and investigated, existing, therefore, a lot of information about their structural and magnetic properties.

The samples were produced by magnetron sputtering on single crystalline Si<100> substrates and are divided in three groups: the NiO/NiFe bilayers and the NiO/Cu/NiFe and NiO/Cr/NiFe trilayers. In all cases the unidirectional anisotropy was induced by a static magnetic field of 480 Oe applied in the films plane during the growth process. The first group aims to optimize the structural and magnetic characteristics of the NiO/NiFe system, reproducing some properties already reported in the literature, such as the short exchange interaction between the AF and FM layers and its interfacial origin. For this purpose, the growth conditions for each layer were carefully optimized and a study of the interfacial magnetism in samples with several FM layer thicknesses was performed. On the other hand, the trilayers allowed for studying the long-range interaction between the NiO and NiFe layers mediated by the Cu and Cr non-magnetic layers. These samples were prepared with thicknesses of 35 nm for NiO and 3 nm for NiFe, determined previously through the first samples group. The Cu and Cr layer thickness was ranged between 0.5 and 5 nm.

The techniques used for the analysis were the X-ray reflectivity and X-ray diffraction, magnetization measurement using a SQUID magnetometer, X-ray absorption spectroscopy (XAS) and X-ray magnetic circular dichroism (XMCD). With the X-ray reflectivity and X-ray diffraction measurements, the roughness, crystalline texture and the grain size of the samples were determined. From the magnetization measurement, the short and long-range exchange interaction between the NiO and NiFe layers were studied, determining the main parameters, such as the interfacial exchange energy, the exchange bias field and the coercivity. With the XMCD measurement, the Fe and Ni spin magnetic moments of bilayers and trilayers were determined separately at the interfaces, and also was possible to observe an induced magnetism in the non-magnetic layers.

In the NiO/NiFe bilayers was observed a linear dependence of H_{EB} with the inverse of the FM layer thickness, indicating the interfacial origin of the exchange bias effect. The fit of the Meiklejohn and Bean phenomenological model to data provides an interfacial exchange energy of $\sigma = 0.024 \text{ erg/cm}^2$. The Ni and Fe spin magnetic moment (m_{spin}) of bilayers, obtained from the fit of the XMCD measurement, are very

close to NiFe bulk in samples with FM thickness greater than 3nm. However, for NiFe thicknesses less than or equal to 3nm, is observed a decrease of both the Fe and Ni spin moments. This decrease is attributed to roughnesses and atomic interdiffusion, leading to the formation of AF alloys at the interfaces, becoming relevant for very thin FM layers.

The insertion of Cu and Cr spacer layers between the NiO and NiFe layers generate changes in the magnetic properties of the NiO/NiFe system. With magnetization measurements was observed a decrease of the H_{EB} as a function of the spacer layer thickness, indicating that the exchange bias effect is a long-range interaction. This decrease is observed up to a critical thickness of approximately 2.0 nm for Cu and 1.7 nm for Cr, above which, $H_{EB} = 0$, pointing out the absence of interlayer exchange coupling. The m_{spin} values of Fe and Ni of the trilayers, obtained from the XMCD measurements, are less than those of the bulk NiFe in samples with Cu and Cr thicknesses between 0 and 1,5 nm. However, in this interval is also observed an increase of m_{spin} in both the cases. For Cu and Cr thicknesses greater than 2 nm, the m_{spin} values are similar to those of NiFe bulk. One of the most important results is the observation of dichroism spectra for Cu and Cr in the trilayers, evidencing an induced magnetic moment in the non-magnetic spacers. Thus, these results provide more evidences of the long-range interaction in systems with unidirectional anisotropy.

Conteúdo

1	Teoria do Ferromagnetismo	9
1.1	Teoria do Magnetismo Itinerante	10
1.2	Termos de Energia em um Ferromagneto	12
1.2.1	Interação de Troca	13
1.2.2	Energia Zeeman	14
1.2.3	Energia Magneto-Estática	14
1.2.4	Energia de Anisotropia Magnetocristalina	15
2	Polarização de Troca	21
2.1	Fenomenologia	22
2.1.1	Deslocamento da Curva de Histerese	22
2.1.2	Dependência com a Espessura do AF	26
2.1.3	Dependência com a Espessura do FM	27
2.1.4	Dependência com a Temperatura	27
2.1.5	Efeito de Tendência	28
2.1.6	Efeito de Memória	29
2.2	Modelos Teóricos	29
2.2.1	Modelo de Meiklejohn e Bean	30
2.2.2	Modelo de Néel	33
2.2.3	Modelo de Fulcomer-Charap	33
2.2.4	Modelo de Malozemoff	34
2.2.5	Modelo de Mauri	35
2.2.6	Modelo de Koon	36
2.3	Aplicações	38
2.4	Ordem de Interação Magnética	40
3	Técnicas e Detalhes Experimentais	43
3.1	Pulverização Catódica	43
3.1.1	Fundamento Físico	44
3.1.2	Sistema de Pulverização Catódica	46
3.1.3	Sistema <i>Magnetron Sputtering</i> do CBPF	49
3.2	Caracterização Estrutural	50
3.2.1	Difração de Raios X em Baixos Ângulos	51
3.2.2	Difração de Raios X em Altos Ângulos	55

3.3	Caracterização Magnética	57
3.3.1	Descrição Experimental	57
3.4	Espectroscopia de Absorção de Raios X	59
3.4.1	Absorção de Raios X	59
3.4.2	Dicroísmo Circular Magnético de Raios X	61
4	Preparação de Amostras	75
4.1	Limpeza dos substratos	75
4.2	Alvos	76
4.3	Parâmetros de Deposição	76
4.4	Taxas de Deposição	77
4.5	Amostras Preparadas	80
5	Resultados Experimentais	83
5.1	Caracterização da Camada de NiO	84
5.2	Caracterização do Sistema NiO/NiFe	89
5.2.1	Caracterização estrutural	89
5.2.2	Caracterização magnética	93
5.2.3	Medidas de XMCD	100
5.3	Inserção da Camada Não-Magnética	109
5.4	Sistema NiO/Cu/NiFe	111
5.4.1	Caracterização estrutural	111
5.4.2	Caracterização magnética	114
5.4.3	Medidas de XMCD	118
5.5	Sistema NiO/Cr/NiFe	120
5.5.1	Caracterização estrutural	120
5.5.2	Caracterização magnética	123
5.5.3	Medidas de XMCD	127
5.6	Explicação do momento induzido no NM	128
6	Conclusões	131
A	Anisotropia Magnética	135

Lista de Figuras

1	Gráfico da variação do campo de polarização de troca em função da espessura da camada NM no sistema CoO/NM/NiFe onde NM: Cu, Ag e Au [9]. . .	3
2	Gráfico comparativo da variação do campo de polarização de troca em função da espessura da camada NM, no sistema (a) NiFe/Cu/FeMn [10] e (b) NiFe/NM/FeMn onde NM: Cu, Ag e Bi [11].	6
1.1	Densidade de estados para o Fe e o Ni.	11
2.1	Diagrama comparativo magnético de uma camada FM e de uma bicamada AF/FM crescida ou resfriada com campo magnético aplicado.	22
2.2	Diagrama esquemático da configuração de spins em um sistema FM/AF, nos diferentes estágios durante um processo magnetização.	23
2.3	Esquema das configurações interfaciais colineares de spin em um sistema FM/AF.	24
2.4	Esquema das configurações de spins interfacial não-colinear em sistema FM/AF.	25
2.5	Dependência do campo de polarização de troca com (a) espessura da camada FM e (b) temperatura, em bicamadas NiO/Co e NiO/Py [57].	28
2.6	Diagrama dos ângulos envolvidos em um sistema com polarização de troca. Neste caso é assumido que os eixos de anisotropia FM e AF são colineares.	31
2.7	Esquema da configuração de spins no sistema FM/AF apresentado no modelo de Malozemoff <i>et. al.</i>	34
2.8	Esquema da configuração de spins no modelo de Mauri <i>et. al.</i> , que apresenta um filme fino FM sobre um substrato AF, mostrando uma única sub-rede do AF. O AF possui uma anisotropia uniaxial dirigida ao longo do eixo Z . O campo aplicado é aplicado na direção $-Z$ e o acoplamento de troca é positivo	36
2.9	Esquema da configuração magnética interfacial no modelo de Koon.	37
2.10	Curva de magneto-resistência e magnetização de uma válvula de spin.	39
2.11	Sistema que apresenta acoplamento de troca de longo alcance, a dependência entre H_{EB} e a espessura da camada NM é do tipo exponencial, no sistema CoO/Co, [76].	41
2.12	Sistema que apresenta acoplamento de troca de longo alcance, a dependência entre H_{EB} e a espessura da camada NM e do tipo oscilatório, no sistema FeMn/NiFe, [30].	42

3.1	Esquema da colisão das partículas com a superfície do alvo nas diferentes escalas de energia.	45
3.2	Regime de energia nos diferentes processos de pulverização catódica. . . .	46
3.3	Sistema <i>Magnetron Sputtering</i>	47
3.4	Esquema do sistema de pulverização catódica por magnetron do Laboratório de Filmes Finos - LFF do CBPF.	50
3.5	Reflexão de raios X em incidência rasante em um filme de espessura t com índice de refração η_2 depositado sobre um substrato com índice de refração η_3 , ($\eta_2 < \eta_3$). O feixe incidente é parcialmente transmitido para a interface filme/substrato.	53
3.6	Curva de reflectividade de um filme fino puro de Cu depositado sobre um substrato de silício. O gráfico inserido mostra a ordem dos picos n versus $\sin^2\theta$, onde os pontos foram extraídos da curva de refletividade e a linha cheia é um ajuste obtido com a Equação [3.10].	54
3.7	Condição para a difração de Bragg numa família de planos separados de uma mesma distância d	55
3.8	Diagrama simplificado de um SQUID-DC.	58
3.9	Resposta do sistema MPMS a uma fonte de dipolo.	59
3.10	Diagrama de absorção de raios X por um átomo. Neste caso representamos um nível $3d$ hipotético. A densidade de estados está representada em função da energia e está dividida em elétrons com spin para acima ($+1/2$) e spin para abaixo ($-1/2$). A excitação de elétrons de diferentes níveis dá origem as diferentes bordas de absorção.	61
3.11	(a) Esquema ilustrativo do modelo de dois passos para os metais de transição $3d$. (b) Espectro de absorção de raios X com luz circularmente polarizada à esquerda e à direita e o espectro XMCD.	63
3.12	Esquema ilustrativo das principais componentes da linha de luz D08A-SGM no LNLS.	67
3.13	Processo de localização da polarização circular, (a) varredura vertical da fenda e (b) varredura do perfil vertical da fenda.	68
3.14	Média dos espectros de absorção nas bordas $L_{2,3}$ do Fe para a construção da função degrau.	71
3.15	Média dos espectros de absorção na borda $L_{2,3}$ do Fe mostrando a curva degrau, a area isotrópica é obtida a partir da diferença entre a média dos espectros de absorção e a curva degrau.	72
4.1	Curva de reflectividade experimental de um filme fino de NiO usado para determinar as taxas de deposição. (a) Ajuste feito usando a lei de Bragg e (b) ajuste usando o programa <i>WINGIXA</i>	79
4.2	Curva de reflectividade experimental de um filme fino de NiFe usado para determinar as taxas de deposição. (a) Ajuste feito usando a lei de Bragg e (b) ajuste usando o programa <i>WINGIXA</i>	79

5.1	Estrutura antiferromagnética do NiO. Os círculos (●) são os átomos de oxigênio. Os spins magnéticos ficam no plano ferromagnético (111).	85
5.2	Difração de raios X de um filme de NiO depositado sobre um substrato de Si<100>, por um tempo de 20 min, a uma pressão (Ar/O_2) constante e variando a potência da fonte RF.	87
5.3	Curvas de reflectividade experimental (—) e o respectivo ajuste (—) da estrutura Si<100>/NiO(35nm)/NiFe(t)/Ta(1nm) com $t = 1; 3; 5; 7$ e 10 nm . .	90
5.4	Difração de raios X da estrutura Si<100>/NiO(35nm)/NiFe(t)/Ta(1nm) com $t = 1; 3; 5; 7$ e 10, nm.	92
5.5	Ciclos de histerese da estrutura Si<100>/NiO(35nm)/NiFe(t)/Ta(1nm) com $t = 1; 2; 3; 4; 5; 7; 10$ e 15 nm, medidos à temperatura $T = 90$ K	94
5.6	Dependência de H_{EB} com a espessura da camada FM, na estrutura Si<100>-NiO(35nm)/NiFe(t)/Ta(1nm) com $t = 1; 2; 3; 4; 5; 7; 10$ e 15 nm. (a) Relação direta entre H_{EB} vs t e (b) relação inversa H_{EB} vs $1/t$	97
5.7	Dependência do H_C com a espessura da camada FM, na estrutura Si<100>-NiO(35nm)/NiFe(t)/Ta(1nm) com $t = 1; 2; 3; 4; 5; 7; 10$ e 15 nm. (a) Relação direta entre H_C e t e (b) Relação inversa $H_C \propto 1/t$	99
5.8	Curvas de magnetização, da estrutura Si<100>/NiO(35nm)/NiFe(t)/Ta(1nm) com $t = 1; 2; 3; 4; 5; 7; 10$ e 15 nm, medidos à temperatura $T = 90$ K. . .	100
5.9	Curvas de histeresis das amostras Si<100>/NiO(35nm)/NiFe(t)/Ta(1nm) com $t = 2, 3$ e 5 nm. O ângulo entre o campo magnético aplicado e a magnetização da amostra (m) para estas medidas foi de 45°	101
5.10	Espectro normalizado de absorção de raios X na borda K do oxigênio e $L_{2,3}$ do Ni de um filme padrão de Si<100>/NiO(35nm)/Ta(1nm)	102
5.11	Espectros normalizados de absorção de raios X (XAS) e de XMCD nas bordas $L_{2,3}$ do (a) Ni e (b) Co de um filme padrão de Si<100>/Ni(30nm)/Ta(1nm) e Si<100>/Co(40nm)/Ta(1nm), respectivamente.	103
5.12	Espectros normalizados de absorção de raios X (XAS) e de XMCD nas bordas $L_{2,3}$ do (a) Fe e (b) Ni de um filme padrão de Si<100>/NiFe(50nm)/Ta(1nm). 104	
5.13	Espectros normalizados de absorção de raios X (XAS) nas bordas $L_{2,3}$ do Fe na estrutura Si<100>/NiO(35nm)/NiFe(t)/Ta(1nm) com $t_{NiFe} = 1; 3; 4; e 10$ nm.	106
5.14	Razão $I_{Fe}/I_{o\ padro}$ na borda L_3 do Fe na estrutura Si<100>/NiO(35nm)/NiFe(t)/Ta(1nm) com $t = 1; 2; 3; 4; 5; 7$ e 10 nm.	107
5.15	Momento magnético de spin (m_{spin}) do (a) Fe e (b) Ni em função da espessura da camada de NiFe na amostra Si<100>/NiO(35nm)/NiFe(10nm)/Ta(1nm). As linhas pontilhadas representam os valores de m_{spin} do Fe e Ni de uma camada de 50 nm de NiFe depositado sobre Si<100>.	108
5.16	Desenho ilustrativo do sistema Si/NiO/Cu/NiFe/Ta.	111
5.17	Curvas de reflectividade experimental (—) e o respectivo ajuste representativa (—) do sistema NiO(35nm)/Cu(t)/NiFe(3nm)/Ta(1nm) com $t = 0; 1; 2; 3; e 5$ nm.	112

5.18	Difração de raios X do sistema $\text{NiO}(35\text{nm})/\text{Cu}(t)/\text{NiFe}(3\text{nm})/\text{Ta}(1\text{nm})$ com $t = 0; 1; 2; 3; \text{ e } 5 \text{ nm}$	114
5.19	Ciclos de histerese normalizadas da estrutura $\text{NiO}(35\text{nm})/\text{Cu}(t)/\text{NiFe}(3\text{nm})/\text{Ta}(1\text{nm})$ com $t = 0,5; 0,7; 1; 1,5; 2; 3; \text{ e } 4 \text{ nm}$, medidos à temperatura $T = 90 \text{ K}$. Note a escala diferente para $t = 0 \text{ nm}$	115
5.20	Dependência de H_{EB} com a espessura da camada NM, na estrutura $\text{NiO}(35\text{nm})/\text{Cu}(t)/\text{NiFe}(3\text{nm})/\text{Ta}(1\text{nm})$ com $t = 0,5; 0,7; 1; 1,5; 2; 3; \text{ e } 5 \text{ nm}$	117
5.21	Dependência de H_C com a espessura da camada NM, na estrutura $\text{NiO}(35\text{nm})/\text{Cu}(t)/\text{NiFe}(3\text{nm})/\text{Ta}(1\text{nm})$ com $t = 0,5; 0,7; 1; 1,5; 2; 3 \text{ e } 5 \text{ nm}$	117
5.22	Momento magnético de spin (m_s) do (a) Fe e (b) Ni em função da espessura da camada de Cu na amostra $\text{NiO}(35\text{nm})/\text{Cu}(t)/\text{NiFe}(3\text{nm})/\text{Ta}(1\text{nm})$. As linhas pontilhadas representam os valores de m_{spin} do Fe e Ni de uma camada de 50 nm de NiFe depositado sobre $\text{Si}\langle 100 \rangle$	118
5.23	Espectros XAS e XMCD medidos nas bordas $L_{2,3}$ de Cu da tricamada $\text{NiO}(35\text{nm})/\text{Cu}(t)/\text{NiFe}(3\text{nm})$ com $t = 0,5; 0,7; 1,0; \text{ e } 1,5 \text{ nm}$	119
5.24	Desenho ilustrativo do sistema $\text{Si}/\text{NiO}/\text{Cr}/\text{NiFe}/\text{Ta}$	120
5.25	Curvas de reflectividade experimental (—) e o respectivo ajuste (—) do sistema $\text{NiO}(35\text{nm})/\text{Cr}(t)/\text{NiFe}(3\text{nm})/\text{Ta}(1\text{nm})$ com $t = 0; 1; 2; 3; \text{ e } 5 \text{ nm}$	121
5.26	Difração de raios X do sistema $\text{NiO}(35\text{nm})/\text{Cr}(t)/\text{NiFe}(3\text{nm})/\text{Ta}(1\text{nm})$ com $t = 0; 1; 2; 3 \text{ e } 5 \text{ nm}$	123
5.27	Ciclos de histerese normalizados no sistema $\text{NiO}(35\text{nm})/\text{Cr}(t)/\text{NiFe}(3\text{nm})/\text{Ta}(1\text{nm})$ com $t = 0,5; 0,7; 1; 1,5; 2; 3 \text{ e } 5 \text{ nm}$, medidos à temperatura $T = 90 \text{ K}$. Note a escala diferente para $t = 0 \text{ nm}$	124
5.28	Dependência de H_{EB} com a espessura da camada de Cr, do sistema $\text{NiO}(35\text{nm})/\text{Cr}(t)/\text{NiFe}(3\text{nm})/\text{Ta}(1\text{nm})$ com $t = 0,5; 0,7; 1; 1,5; 2; 3 \text{ e } 5 \text{ nm}$	126
5.29	Dependência de H_C com a espessura da camada de Cr, do sistema $\text{NiO}(35\text{nm})/\text{Cr}(t)/\text{NiFe}(3\text{nm})/\text{Ta}(1\text{nm})$ com $t = 0,5; 0,7; 1; 1,5; 2; 3 \text{ e } 5 \text{ nm}$	127
5.30	Momento magnético de spin (m_{spin}) do (a) Fe e (b) Ni em função da espessura da camada de Cr na amostra $\text{NiO}(35\text{nm})/\text{Cr}(t)/\text{NiFe}(3\text{nm})/\text{Ta}(1\text{nm})$. As linhas pontilhadas representam os valores de m_{spin} do Fe e Ni de uma camada de 50 nm de NiFe depositado sobre $\text{Si}\langle 100 \rangle$	128
5.31	Espectros XAS e XMCD medidos nas bordas $L_{2,3}$ do Cr da tricamada $\text{NiO}(35\text{nm})/\text{Cr}(t)/\text{NiFe}(3\text{nm})$ com $t_{Cr} = 0,5; 0,7; 1,0 \text{ e } 1,5 \text{ nm}$	129
5.32	Esquema da variação do momento magnético induzido na camada NM, a magnitude deste parâmetro diminui conforme a espessura da camada NM aumenta.	130

Lista de Tabelas

2.1	Principais características e resultados obtidos a partir dos modelos teóricos propostos para descrever o efeito de polarização de troca.	38
3.1	Valores do operador dipolar magnético $7\langle T_Z \rangle$ para um átomo de Fe(001), Co(0001) e Ni(001), na superfície e no volume do sólido, calculados a partir de análises de estrutura eletrônica.	65
3.2	Momento magnético orbital para FM $3d$ onde m_l (a) é obtido a partir de cálculos teóricos e m_l é obtido através das regras de soma. m_s é o momento magnético de spin e n_h é o número de buracos na banda $3d$, Kunes[43]. . .	73
4.1	Alvos utilizados na preparação das multicamadas através da técnica de erosão catódica.	76
4.2	Detalhes dos parâmetros de deposição usados durante todo o processo de produção das amostras. Os valores da corrente, tensão e potência correspondem às fontes de ignição DC para os alvos de natureza condutora e RF para o alvo de NiO.	77
4.3	Taxas de deposição dos alvos usados na preparação das multicamadas. . .	80
4.4	Relação dos sistemas produzidos, caracterizados e analisados na elaboração do presente trabalho. Todas estas amostras foram depositadas sobre substratos de silício Si<100>.	81
5.1	Algumas das propriedades dos óxidos antiferromagnéticos, onde T_N é a temperatura de Neel, T_B é a temperatura de bloqueio, T_F é a temperatura de fusão, a estrutura cristalina refere-se ao estado paramagnético e a simetria refere-se ao estado ordenado.	84
5.2	Espessuras e rugosidades nas interfaces NiO/NiFe e NiFe/Ta obtidas mediante o ajuste das curvas de reflectividade com o programa <i>WinGixa</i>	91
5.3	Valores do campo de polarização de troca (H_{EB}) e do campo coercitivo (H_C), extraídos a partir das curvas de magnetização, medidas à $T = 90$ K, da estrutura Si<100>/NiO(35nm)/NiFe(t)/Ta(1nm) com $t = 1; 2; 3; 4; 5; 7; 10$ e 15 nm.	96
5.4	Valores da energia interfacial (σ_{int}), calculados no sistema NiO/NiFe. . . .	98

5.5	Momento magnético orbital m_{orb} e momento magnético de spin m_{spin} para os elementos Fe e Ni na liga NiFe e os elementos puros Ni e Co; obtido através das regras de soma. Estes valores foram calculados utilizando o grau de polarização linear $P_C=0,75$	105
5.6	Momento magnético de spin m_{spin} para os elementos Fe e Ni, na estrutura Si<100>/NiO(35nm)/NiFe(t)/Ta(1nm) com $t = 1; 2; 3; 4; 5; 7; e 10$ nm.	107
5.7	Algumas das propriedades dos metais não magnéticos Cu e Cr.	110
5.8	Espessuras e rugosidades nas interfaces NiO/Cu e Cu/NiFe obtidas mediante o ajuste das curvas de reflectividade com o programa <i>WinGixa</i>	113
5.9	Valores do H_{EB} e do H_C , extraídos das curvas de magnetização, do sistema NiO(35nm)/Cu(t)/NiFe(3nm)/Ta(1nm) com $t = 0,5; 0,7; 1; 1,5; 2; 3; e 4$ nm	116
5.10	Espessuras e rugosidades nas interfaces NiO/Cr e e Cr/NiFe obtidas mediante o ajuste das curvas de reflectividade com o programa <i>WinGixa</i>	122
5.11	Valores do H_{EB} e do H_C , extraídos a partir das curvas de magnetização, no sistema NiO(35nm)/Cr(t)/NiFe(3nm)/Ta(1nm) com $t = 0,5; 0,7; 1; 1,5; 2; 3 e 5$ nm.	125

Introdução

O avanço no campo da física do estado sólido tem sido possível, na maioria dos casos, por dois fatos importantes. Primeiro, pelo desenvolvimento e pela aplicação de novos métodos de pesquisa e segundo, pelas modernas técnicas de preparação, que permitem a produção de materiais com novas características e propriedades relevantes tanto para aplicações tecnológicas bem como para a pesquisa fundamental. Recentemente, este campo da física de baixa dimensionalidade tem recebido uma maior notoriedade em virtude da obtenção do Premio Nobel de Física para A. Fert e Peter Grünberg, pela descoberta da magnetoresistência gigante em multicamadas magnéticas [1, 2].

Uma multicamada magnética é definida como uma estrutura formada pelo empilhamento ordenado e alternado de filmes finos de dois ou mais metais, quando ao menos um deles é magnético [3]. Assim, um sistema de multicamada magnética pode ser representado da seguinte forma FM1/NM/FM2, onde FM1 e FM2 são metais ferromagnéticos e NM é um metal não magnético. Assumindo que FM1 e FM2 sejam iguais, as propriedades de transporte eletrônico são fortemente dependentes do tipo de material NM. Assim, quando NM for um material condutor temos o caso da magneto-resistência gigante (GMR) e quando o NM for um material isolante, teremos o caso da magneto-resistência túnel (TMR). Outro sistema de multicamada magnética pode ser formado pela seguinte configuração, AF/FM, onde AF é um material antiferromagnético. Este tipo de sistema, se preparado em condições especiais, pode conduzir a uma quebra de simetria na curva de magnetização, efeito que foi denominado polarização de troca.

O efeito de polarização de troca tem sido amplamente analisado e estudado devido a suas potenciais aplicações em dispositivos magneto-eletrônicos [4] e aos desafios científicos que apresenta. A interação magnética interfacial nos sistemas FM/AF con-

duz ao fenômeno denominado anisotropia unidirecional (AU), o qual é caracterizado por um deslocamento no ciclo de histerese ao longo do eixo de campo magnético. Este fenômeno, descoberto por Meiklejohn e Bean [5], geralmente surge do acoplamento magnético entre spins interfaciais existentes em materiais ferromagnéticos (FM) e antiferromagnéticos (AF) justapostos, quando uma amostra é resfriada, desde uma temperatura acima, até uma temperatura abaixo da temperatura de Néel, sob ação de um campo magnético externo. Este acoplamento também pode ser produzido se o sistema for depositado sob a ação de um campo magnético.

Como o efeito de polarização de troca é uma representação macroscópica da interação de troca entre os spins interfaciais, a AU pode surgir em sistemas compostos por duas fases magnéticas acopladas: (i) uma fase reversível onde a direção do momento magnético pode ser invertida pela ação do campo magnético e (ii) uma fase magnética fixa, isto é, com um momento magnético rígido, cujo sentido é invariante perante a ação do campo magnético externo. Por exemplo, o efeito pode também surgir da junção de materiais AF e vidros de spin (VS) [6]. O primeiro sistema, que foi estudado por Meiklejohn e Bean [5], tratava-se de pequenas partículas de cobalto com oxidação superficial, formando o sistema Co/CoO (FM/AF) [5]. Porém, a polarização de troca pode também ser encontrada em outros tipos de estruturas, como por exemplo, os filmes finos [6, 7].

A origem do efeito de polarização de troca ainda não está totalmente compreendida, devido ao papel de muitos parâmetros envolvidos, tais como anisotropia, rugosidades, tamanho de grão, estrutura de domínio ferromagnético e antiferromagnético, estrutura de spin interfacial, espessura da camada FM e AF, textura, entre outros, que não estão totalmente entendidos. Além disso, existe uma outra controvérsia a respeito da ordem da interação magnética nos sistemas AF/FM, isto é, se elas são de curto [8] ou longo alcance [9].

Como citado, a ordem de interação magnética em sistemas com anisotropia unidirecional tornou-se um tema de muita controvérsia. O primeiro trabalho que aborda este fato foi elaborado por Gökemeijer *et. al.* [9], inserindo uma camada de Cu, Ag ou Au no meio da bicamada CoO/NiFe, observando um decaimento do tipo ex-

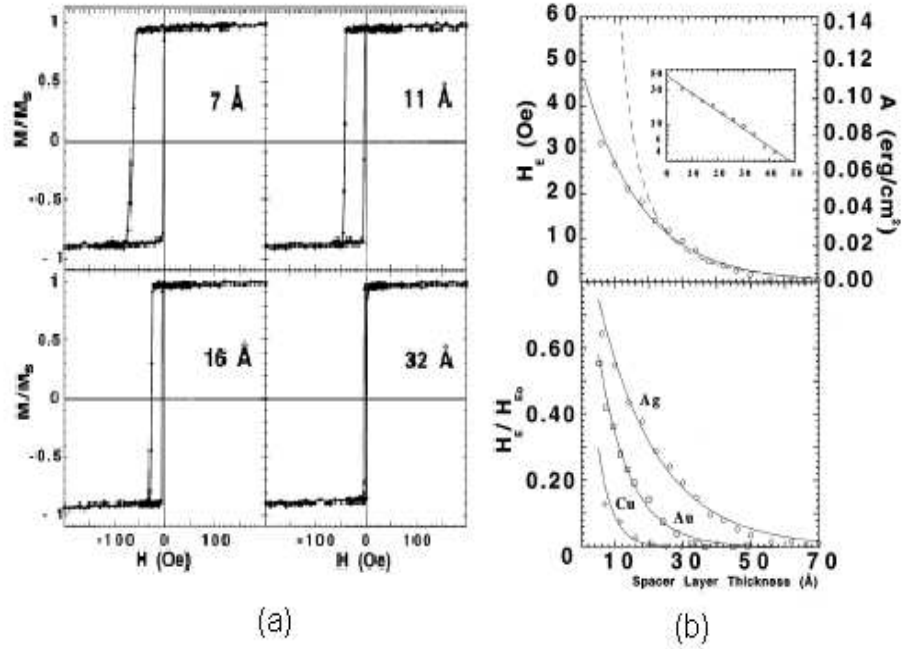


Figura 1: Gráfico da variação do campo de polarização de troca em função da espessura da camada NM no sistema CoO/NM/NiFe onde NM: Cu, Ag e Au [9].

ponencial do campo de polarização de troca conforme a espessura da camada NM aumenta, estendendo-se até várias dezenas de nm, Figura [1]. Sua análise fornece valores do parâmetro do alcance da interação magnética, (L), diferentes para Cu, Ag e Au. A partir destes resultados, o autor conclui que a polarização de troca é um acoplamento de longo alcance dependente da camada separadora e, portanto, de natureza eletrônica.

Um segundo trabalho que aborda este problema foi realizado por Mewes *et. al.* [10] nas estruturas NiFe/Cu/FeMn ou NiFe/Cr/FeMn. Seus resultados revelam uma contribuição oscilatória além do decaimento exponencial do campo de polarização de troca em função da espessura da camada separadora. O período de oscilação encontrado corresponde à metade do valor relatado para o sistema NiFe/NM/NiFe, concluindo que esta interação tem uma origem análoga ao caso das multicamadas FM/NM/FM, sendo sensível ao valor absoluto da intensidade do acoplamento, mas não ao sinal. Quer dizer, ao tipo de acoplamento. Um trabalho recente feito por Li *et. al.* [11] no mesmo sistema NiFe/NM/FeMn usando como material não magnético

os elementos Cu, Ag e Bi, relata um decaimento exponencial abrupto, sem presença de oscilações, do campo de polarização de troca em função da espessura da camada NM. Seus resultados são explicados com base na estrutura cristalina das camadas e há processos de migração atômica na interface.

Um resultado que está em divergência com os descritos no parágrafo anterior foi apresentado por Luc Thomas *et. al.* [8], inserindo uma camada de Al, Ag, Au, Si, Pd, Ru e Ti no meio da bicamada IrMn/CoFe e CoFe/IrMn. Eles analisam a dependência do campo de polarização de troca e do campo coercitivo em função da espessura da camada separadora. Os resultados mostram que o campo de polarização de troca diminui exponencialmente conforme a espessura da camada NM aumenta e esta interação desaparece para espessuras maiores de 1 nm. Seus resultados não fornecem evidências de um acoplamento de longo alcance do campo de polarização de troca através da camada separadora, argumentando que os resultados obtidos podem ser melhor entendidos considerando um acoplamento através de buracos e processos de difusão através da camada separadora.

Gruyters *et. al.* [12] analisando a tracamada CoO/Au/Co relatam uma forte interação de longo alcance do campo de polarização de troca que é mantida até uma espessura de 2.25 nm da camada separadora. Seus resultados mostram uma dependência exponencial do campo de polarização de troca em função da espessura da camada separadora, porém o decaimento resulta mais abrupto quando comparado aos resultados de Gökemeijer [9].

Lin *et. al.* [13] estudam a dependência do alcance da interação por polarização de troca em função da espessura da camada separadora na tracamada NiO/Cu/NiFe, em diferentes temperaturas. Seus resultados mostram que a baixas temperaturas o campo de polarização de troca diminui conforme a espessura da camada de Cu aumenta. Quando a temperatura aproxima-se à temperatura de Néel do NiO esta dependência resulta oscilatória. Estes autores propõem um modelo baseado em uma competição dependente da temperatura entre a interação do tipo RKKY com o acoplamento AF da camada de NiO e também incluem a contribuição da interação dipolar magnética entre o NiO e o NiFe. Encontram que o acoplamento do tipo RKKY

aumenta lentamente com a diminuição da temperatura. Bem abaixo da temperatura de Néel, a interação dipolar e o acoplamento AF na camada de NiO são dominantes e o comportamento oscilatório devido a interação do tipo RKKY é suprimido.

Outro resultado surpreendente aos descritos nos parágrafos anteriores foi apresentado por A. Paul *et. al.* [14] mostrando o acréscimo do campo de polarização de troca quando uma fina camada de AlO_x é inserida na bicamada CoO/Co. A dependência do campo de polarização de troca com a espessura da camada separadora resulta não-monótona com um máximo para uma espessura de 1 nm da camada de AlO_x . Os autores sugerem que estes fatos têm origem em descontinuidades da camada separadora e ao modo de crescimento da camada separadora, concluindo que não existe interação magnética através da camada de AlO_x .

Wang *et. al.* [15] analisaram o magnetismo da tracamada Co/Cu/FeMn através da formação de imagem de domínios pela técnica de dicroísmo circular magnético de raios X usando um microscópio de emissão de fotoelétrons. Os resultados mostram a dinâmica da formação de domínios magnéticos conforme a espessura da camada de Cu aumenta. Assim o tamanho dos domínios magnéticos é pequeno quando a camada separadora está ausente. A inserção da camada de Cu conduz ao crescimento do tamanho dos domínios magnéticos na camada de FM de Co, o qual é atribuído à diminuição do acoplamento de troca entre a camada de FeMn e Co através da camada de Cu. Concluindo que a intensidade do acoplamento por polarização de troca diminui conforme a espessura da camada de Cu aumenta, seus resultados são similares aos reportados por Gökemeijer *et. al.* [9]. A primeira evidência de um momento induzido na camada NM é reportada por Gierlings *et. al.* [16], na tracamada CoO/Au/Co usando a técnica de orientação nuclear a baixa temperatura (LNTO). Seus resultados são explicados abordando um processo de hibridização $s - d$ com os átomos interfaciais de Au, e a um processo de relaxamento da estrutura magnética na interface.

Assim, o problema da ordem de interação magnética em sistemas com anisotropia unidirecional foi a principal motivação para a elaboração do presente trabalho, devido ao fato de apresentarem resultados divergentes, como por exemplo o apresentado

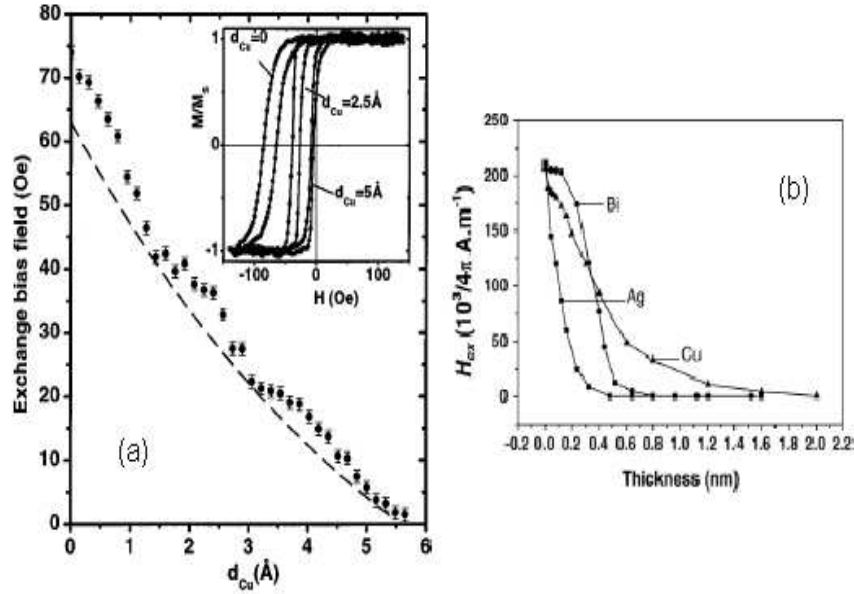


Figura 2: Gráfico comparativo da variação do campo de polarização de troca em função da espessura da camada NM, no sistema (a) NiFe/Cu/FeMn [10] e (b) NiFe/NM/FeMn onde NM: Cu, Ag e Bi [11].

na Figura [2]. Os poucos sistemas analisados e o fato de não existir na literatura abordagens usando a técnica de dicroísmo circular magnético de raios X. Para abordar este problema o sistema NiO/NiFe foi escolhido, pois ele apresenta várias propriedades de importância tecnológica, tais como alta temperatura de bloqueio, boa resistência à corrosão, campo de polarização de troca relativamente grande, além de ser um sistema amplamente conhecido e estudado.

Nesta dissertação é apresentado um estudo detalhado do comportamento estrutural e magnético dos sistemas NiO/NiFe, NiO/Cu/NiFe e NiO/Cr/NiFe. As amostras foram preparadas pela técnica de *Magnetron Sputtering* em presença de um campo magnético estático. Para analisar as propriedades estruturais e interfaciais foram realizadas medidas de reflectividade e difração de raios X. Conhecendo as propriedades estruturais das amostras, várias propriedades magnéticas têm sido investigadas usando diferentes e apropriadas técnicas de medição, tais como magnetometria SQUID (Dispositivo supercondutor de interferência quântica), absorção de raios X (XAS) e dicroísmo circular de raios X (XMCD). A magnetometria foi usada para de-

terminar as características magnéticas relacionadas ao efeito de polarização de troca, como o deslocamento da curva de histerese, o campo coercitivo entre outras, antes de realizar medidas de XAS e XMCD nestas amostras.

No presente trabalho, diferentes tricamadas do tipo NiO/NM/NiFe, onde NM é Cu e Cr, foram estudadas por magnetometria SQUID, esta técnica é somente sensível para às camadas magnéticas. Geralmente, informação da dependência da intensidade do campo de polarização de troca com a camada NM é obtida através das análises das mudanças das propriedades magnéticas do material FM variando a espessura da camada separadora. Para abordar este problema foi necessário realizar um trabalho exploratório sistemático de preparação e caracterização para conseguir um conjunto de amostras do sistema NiO/NiFe com as propriedades relatadas na literatura.

Um parâmetro fundamental em magnetismo é o momento magnético, sendo objeto de estudo como os momentos magnéticos são induzidos ou transferidos através de uma camada separadora NM. Para isso, utilizamos a técnica de XMCD que fornece esta informação através da aplicação das regras de soma.

A presente tese está organizada da seguinte maneira, no capítulo um é dada uma descrição geral do magnetismo em filmes finos; no capítulo 2 fornecemos uma descrição geral do efeito de polarização de troca resumindo as mais importantes características destes sistemas, no capítulo 3 descrevemos as técnicas, tanto de preparação como de caracterização, utilizadas. No capítulo 4 detalhamos o processo de preparação e produção das amostras. O capítulo 5 é dedicado à apresentação e discussão dos resultados experimentais, revelando as propriedades dos sistemas pesquisados. Finalmente apresentamos as conclusões gerais obtidas durante o desenvolvimento do presente trabalho.

Capítulo 1

Teoria do Ferromagnetismo

O magnetismo é uma manifestação macroscópica de um fenômeno microscópico que é conhecido desde a antigüidade, mas seu entendimento teve que aguardar o desenvolvimento da teoria quântica da matéria. O magnetismo é um fenômeno de condução eletrônica, fraco quando comparado aos efeitos eletrostáticos e sutil em suas manifestações, têm sua origem no princípio de exclusão de Pauli e na existência do spin do elétron, conduzindo a uma grande variedade de forças de curto e longo alcance.

Weiss, em 1907, propôs a existência de momentos magnéticos, os quais estão acoplados em um ferromagnético (FM) por um campo macroscópico, conhecido como campo molecular. Este modelo que relaciona a natureza dos momentos magnéticos em materiais FM, conduz a dois pontos de vista diferentes: pode estar associado ao modelo de Heisenberg (teoria do magnetismo localizado) ou ao modelo de Stoner (teoria do magnetismo itinerante ou teoria de bandas). O primeiro inclui os modelos de spin clássico (tipo Heisenberg $3D$, Ising $2D$ ou modelo XY com anisotropia axial e planar). Este modelo é apropriado para sistemas isolantes ou para metais onde o magnetismo surge de camadas atômicas internas, como é o caso da camada $4f$ dos lantanídeos. O segundo, a teoria proposta por Stoner, será desenvolvida na seção seguinte devido ao seu importante papel para a descrição teórica do dicroísmo circular magnético de raios X, apresentada posteriormente.

O comportamento magnético próximo a uma superfície (ou interface) de um sólido magneticamente ordenado difere em muitos aspectos do magnetismo no interior do sólido. Basicamente, esse fato decorre da diminuição da simetria, do abaixamento do número de coordenação e da sensibilidade dos estados eletrônicos superficiais (ou

interfaciais) por efeitos de vizinhança e proximidade. Fenômenos magnéticos originados na superfície ou interface, ou a poucos planos atômicos abaixo dela, constituem o campo do magnetismo de superfície. No entanto, a existência de uma superfície ou interface pode gerar perturbações que podem propagar-se por várias centenas de nanômetro afetando as propriedades magnéticas no interior do material. Como exemplo, podemos citar a estrutura de domínios e o transporte eletrônico.

Assim, por exemplo, o momento magnético de um átomo na superfície ou interface de um filme FM está menos vinculado à direção média da magnetização do que a um momento magnético de um átomo no interior do filme, uma vez que suas interações estão ausentes no lado externo da superfície. Assim, podemos esperar que quando a espessura do filme é reduzida e a razão de átomos superficiais para átomos interiores aumenta, as interações que produzem o alinhamento cooperativo dos momentos magnéticos tornam-se cada vez mais fracas. Através desse raciocínio, a temperatura crítica T_c de um filme fino deve decrescer com a diminuição da temperatura. De fato, um sistema tipo Heisenberg $2D$ com interação isotrópica de curto alcance não admite o estabelecimento de ordem de longo alcance dos momentos magnéticos, mesmo à temperatura de $0K$, conhecido como o teorema de Mermin-Wagner.

1.1 Teoria do Magnetismo Itinerante

A teoria dos elétrons itinerantes é usada para descrever as propriedades magnéticas dos metais. Ela está baseada no fato de que os elétrons não permanecem ligados aos átomos, ou seja, eles se deslocam através de todo o sólido. O magnetismo dos elementos de transição $3d$ origina-se principalmente dos elétrons itinerantes da camada $3d$; os elétrons das camadas mais internas $4s$ e $4p$ dão uma contribuição menor às propriedades magnéticas [17]. A densidade de estados dentro da primeira zona de Brillouin dos elétrons $3d$ e $4s$ (Figura 1.1) é dependente da energia e todos os orbitais abaixo do nível de Fermi (E_F) estão ocupados no estado fundamental. Acima de E_F existem orbitais vazios ou buracos $3d$ que serão ocupados excitando os elétrons que se encontram abaixo de E_F , sendo o número destes buracos n_h diferente em cada elemento. Entretanto, no modelo de Stoner, que trata as interações elétron-elétron na aproximação de campo molecular, uma banda d parcialmente vazia pode ser dividida

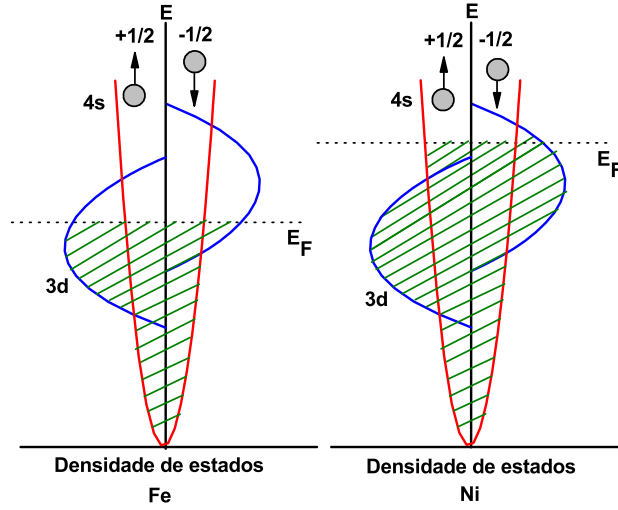


Figura 1.1: Densidade de estados para o Fe e o Ni.

em duas bandas, uma tendo elétrons com spin para cima ($+1/2$) e a outra com spin para abaixo ($-1/2$), sem momento orbital.

A interação de troca entre os spins dos elétrons provoca uma diferença de energia entre as duas bandas e isso causa uma diferença de estados ocupados entre estas, quer dizer, uma diferença entre o número de elétrons de spin para cima e os spins para baixo. Como a diferença de estados ocupados (elétrons) entre as duas bandas é a mesma que nos estados vazios (buracos), podemos usar a representação buraco para definir os momentos magnéticos. O módulo do momento de spin (m_s) é dado pela relação: $m_s = (n^\uparrow - n^\downarrow)\mu_B$, onde $n^\uparrow$ e $n^\downarrow$ são os números de buracos de spin para cima e spin para baixo, respectivamente, e μ_B é o magnetron de Bohr. O momento orbital (m_{orb}) surge devido à interação spin-órbita. Esta interação conduz a um desbalanceamento de estados com números quânticos $l = +1, +2$ e $l = -1, -2$. Como a energia da interação spin-órbita é muito menor do que a energia da interação de troca, o momento orbital é muito menor do que o momento de spin, mas é importante para o entendimento da anisotropia magneto-cristalina [18]. Os elétrons 4s não têm contribuição no momento orbital, mas têm uma pequena contribuição no momento de spin da ordem de $\approx 5\%$. Assim, o momento magnético total m_{tot} é simplesmente

a soma das contribuições orbital e de spin e, na maioria dos casos, é dominada pelo momento de spin.

$$m_{tot} = m_{orb} + m_{spin} \quad (1.1)$$

1.2 Termos de Energia em um Ferromagneto

A primeira teoria sobre o FM em filmes finos foi desenvolvida por Kittel [19]. Basicamente, quando a espessura do filme fino torna-se menor do que aproximadamente $0,1\mu m$, se estabelece um monodomínio magnetizado ao longo de sua superfície. Para descrever na escala mesoscópica o comportamento de um filme fino FM com uma magnetização M em presença de um campo magnético H , é necessário considerar a contribuição de vários termos de energia [17].

Quando falamos das contribuições de energia num material ferromagnético devemos distinguir entre termos de energia local e não-local. Os termos de energia local são baseados em densidades de energia, dadas pelos valores locais da direção de magnetização. Seu valor é calculado por uma integral da forma $E_{loc} = \int f(\mathbf{m})dV$ em todo o volume do material, onde a função densidade de energia $f(\mathbf{m})$ é uma função arbitrária da magnetização $\mathbf{m}$. Exemplos de termos de energia local são a energia *Zeeman*, a energia de anisotropia e a energia de interação magneto-elástica. A energia de troca é também local, já que é calculada também pela integral de uma função das derivadas da direção de magnetização. Um termo de energia não-local é a energia de magnetotrição.

A energia total de um sistema micromagnético é dada pela energia livre de Gibbs, que depende da magnetização, do campo magnético aplicado e de alguns parâmetros dependentes da temperatura. Os termos que contribuem para a energia livre podem ser classificados dependendo do tipo de interação entre os momentos magnéticos. Assim, a energia livre total de um sistema magnético é dada pela seguinte equação:

$$G(M, H) = \int_V F_{total}(M, H)dV = \int_V (f_{ex} + f_{an} + f_z + f_{me})dV \quad (1.2)$$

onde $G(M, H)$ é a densidade de energia total que é dada pela soma dos seguintes termos: a energia de interação de troca (f_{ex}), a energia *Zeeman* (f_z), a energia magneto-estática (f_{ms}), a energia de anisotropia magnética (f_{anisot}), e H é o campo magnético aplicado. Cada uma dessas interações será descrita brevemente a seguir.

Além destes termos de energia, podemos incluir a energia de acoplamento de troca intercamada, que acopla duas ou mais camadas FM, separadas por uma camada não-magnética (NM). Este termo de energia pode ser expresso pela seguinte equação:

$$\begin{aligned} E_i &= -J_1 \frac{M_1 \cdot M_2}{|M_1||M_2|} - J_2 \left(\frac{M_1 \cdot M_2}{|M_1||M_2|} \right)^2 \\ E_i &= -J_1 \cos(\Delta\phi) - J_2 (\cos(\Delta\phi))^2 \end{aligned} \quad (1.3)$$

onde M_1 e M_2 são as magnetizações das camadas FM. Os coeficientes J_1 e J_2 são chamados de constante de troca bilinear (troca convencional) e de constante de troca biquadrático, respectivamente. Na equação 1.3, se J_1 é dominante, o acoplamento entre as camadas será ferromagnético para $J_1 > 0$ ou antiferromagnético para $J_1 < 0$. No caso de acoplamento biquadrático, $J_2 > 0$ faz com que as magnetizações das camadas se orientem em 90° uma com respeito a outra. Temos que o acoplamento é FM (AF) para positivo (negativo) J_1 , respectivamente. Quando J_2 domina e é negativo ocorre um acoplamento de 90° [20, 21].

1.2.1 Interação de Troca

Além da interação indireta produzida pelos elétrons de condução em metais, existe uma interação de troca direta entre os spins nos sítios da rede. Esta interação não têm análogo clássico e é causada pela sobreposição das funções de onda eletrônica da mecânica quântica. Consideremos um sistema com dois elétrons com spin S_i e S_j . Quando a orientação entre estes spins é anti-paralela, os dois elétrons terão a mesma órbita e, portanto, a energia eletrostática será maior. Agora, se a orientação entre os spins é paralela, como uma consequência do princípio de Pauli, os dois elétrons terão órbitas diferentes e, assim, uma interação de Coulomb reduzida. Essa interação de troca associada com o spin S_i e S_j é dada pela seguinte equação:

$$f_{ex} = H_{ex} = -2 \sum_{i < j} J_{i,j} S_i \cdot S_j \quad (1.4)$$

onde J é a integral de troca; $J > 0$ para um ferromagnético e $J < 0$ para um antiferromagnético. A interação de troca é isotrópica, seus níveis de energia não dependem da direção espacial na qual o cristal é magnetizado. Existe também um acoplamento de troca interfacial. Quando um material ferromagnético está em contato com outro (como em sistemas de multicamadas), uma interação de troca pode acoplar estas duas camadas. Em geral, a intensidade do acoplamento não pode ser derivada a partir de propriedades volumétricas das duas camadas, dependendo da natureza da interface.

1.2.2 Energia Zeeman

A interação entre a magnetização $\mathbf{m}(\mathbf{r})$ e o campo magnético aplicado H_a resulta na energia *Zeeman*, que é a energia potencial de um momento magnético na presença de um campo magnético aplicado.

$$f_z = -M_s H_a \cdot \mathbf{m}(\mathbf{r}) \quad (1.5)$$

Para um campo magnético aplicado uniforme esta energia depende somente da magnetização média e não da estrutura de um domínio particular ou da forma da amostra.

1.2.3 Energia Magneto-Estática

Para determinar a distribuição de equilíbrio da magnetização espontânea, é importante conhecer a energia do campo desmagnetizante; neste caso a densidade de energia é dada pela seguinte equação:

$$f_{ms} = -\frac{1}{2} H_d \cdot M(r) \quad (1.6)$$

onde o campo desmagnetizante H_d é gerado pelo próprio sistema, o fator $\frac{1}{2}$ é introduzido para evitar a dupla contagem da interação do momento magnético. A origem desta energia é a interação dipolar clássica e é a responsável pela formação de domínios magnéticos. Pode parecer raro que uma estrutura de domínio seja mais favorável

do que uma magnetização uniforme. A razão é que as forças dipolares são de longo alcance, caindo lentamente com a distância. Considerando um corpo de forma elipsoidal, o campo desmagnetizante pode ser dado por $H_d = -N_d M$, onde N_d é um tensor. Se M é paralelo ao eixo principal do elipsóide, D é um número chamado fator desmagnetizante. Em uma esfera, por simetria, $D_x = D_y = D_z = \frac{1}{3}$, em um cilindro infinito ao longo do eixo z , $D_z = 0$ e $D_x = D_y = \frac{1}{2}$. Para um filme infinito ao longo do plano xy , o fator desmagnetizante é $D_x = D_y = 0$ e $D_z = 1$. Em todos esses casos a densidade de energia magneto-estática pode ser calculada a partir da equação:

$$f_{ms} = \frac{1}{2}(D_x M_x^2 + D_y M_y^2 + D_z M_z^2) \quad (1.7)$$

onde o M_i é a projeção da magnetização ao longo do eixo de referência. Para um filme fino, a Equação 1.6 resulta:

$$f_{ms} = \frac{M^2 \cos^2 \theta}{2} \quad (1.8)$$

onde θ é o ângulo da magnetização com o eixo z . Essa equação é característica de sistemas com anisotropia uniaxial e é denominada anisotropia de forma. A energia magneto-estática é importante em filmes e fios finos, pois força a magnetização a ficar no plano do filme ou ao longo do fio. Se as interfaces em um sistema de camadas é rugosa, existem contribuições dipolares que advêm dos "pólos" gerados nas extremidades dos degraus e vales que podem ser usados para simular a rugosidade.

1.2.4 Energia de Anisotropia Magnetocristalina

Na descrição quântica não relativística do ferromagnetismo, o spin é introduzido no formalismo de uma maneira que existe liberdade absoluta na escolha de seu eixo de quantização. Assim, a energia de troca do sistema é independente da direção da magnetização e, portanto, esta interação é de natureza isotrópica. Por outro lado, sabemos que a magnetização têm direções preferenciais, que podem estar associadas a eixos cristalinos ou então a morfologias como forma, geometria, superfícies, degraus ou ainda a tensões mecânicas, direções preferenciais de crescimento e outras. A anisotropia magnética é uma consequência do desvio da simetria esférica do

comportamento magnético do material, tanto em situações macroscópicas quanto nanoscópicas. Os efeitos macroscópicos são facilmente calculados a partir das equações de Maxwell, mas os nanoscópicos exigem uma descrição relativística, pois envolvem detalhes da estrutura eletrônica do material.

A energia associada com a anisotropia é uma componente da energia livre do material que depende somente da direção da magnetização espontânea em relação a algum eixo de simetria do mesmo. Ou seja, existem direções para as quais o material é mais facilmente magnetizado (eixos fáceis) do que para outras e, por simetria, existem direções que exigem os campos mais altos para levar o material para saturação magnética. Esta energia é muito menor do que a energia de troca, e na realidade, resulta de pequenas correções relativísticas à hamiltoniana (que quebram a invariância rotacional com relação ao eixo de quantização de spin) e que são a interação dipolo-dipolo e o acoplamento spin-órbita.

Fenomenologicamente, a energia de anisotropia magnética têm a mesma forma funcional para os materiais que têm a mesma simetria esférica, independente do mecanismo microscópico que é responsável por ela¹. No caso de uma estrutura cúbica, a densidade de energia pode ser escrita como uma expansão em série de cossenos diretores α_i da magnetização de saturação M_s com relação aos eixos de coordenadas no sistema cartesiano:

$$E_{anisot} = K_o + K_1(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_1^2\alpha_3^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2) + K_2\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2 + K_3(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_1^2\alpha_3^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2) \quad (1.9)$$

onde os α_i referem-se aos eixos $< 100 >$ e os K_i são as constantes de anisotropia do material em questão. Para outras simetrias usa-se, em geral, a expansão em harmônicos esféricos dos ângulos polar (θ) e azimuthal (φ) da magnetização. Para simetria hexagonal e uniaxial temos a seguinte equação:

$$E_{anisot} = K_o + K_1 \sin^2\theta + K_2 \sin^4\theta \quad (1.10)$$

Como vimos anteriormente, o magnetismo é um fenômeno cooperativo, sendo possível manipular suas propriedades mudando a vizinhança de uma determinada

¹Uma abordagem fenomenológica sobre a anisotropia magnética é apresentada no Apêndice A.

entidade magnética: átomos, partículas, linhas e planos de átomos, etc. Para os metais magnéticos, as funções de onda dos elétrons devem mudar quando existe uma restrição de confinamento em dimensões comparáveis com o seu comprimento de onda de Fermi que é da ordem de poucas distâncias atômicas. O confinamento de elétrons em nanoestruturas pode levar a uma discretização de uma banda contínua, como acontece com filmes finos de camadas similares gerando estados quânticos tipo o que se consegue com poços de potencial. Se um dos materiais for magnético, as suas propriedades magnéticas, inclusive a anisotropia, serão alteradas.

Anisotropia em filmes finos

A anisotropia é afetada quando a simetria de volume é reduzida em nanoestruturas devido à existência de uma superfície ou interface e, portanto, os orbitais paralelos ou perpendiculares à interface não ficam equivalentes. Se existem descasamentos entre as redes cristalinas, os momentos magnéticos em superfícies e interfaces estão sujeitos a intensos campos de anisotropia e, como vemos, a anisotropia é um importante termo da energia magnética de um sistema. No caso de um filme, a anisotropia tem enorme influência sobre seu comportamento magnético global. Em filmes finos formados de metais de transição, a energia de anisotropia por unidade de volume é definida como:

$$E_{anisot} = K \sin^2 \theta \quad (1.11)$$

onde K é a chamada constante de anisotropia e θ é o ângulo entre a magnetização e a normal a superfície (ou interface). Basicamente, K inclui três contribuições diferentes:

$$K = K_V + K_D + 2 \times \frac{K_S}{d_{FM}} \quad (1.12)$$

K_V é a anisotropia magnetocristalina de volume decorrente da interação spin-órbita, importante em filmes monocristalinos; $K_D = -\frac{1}{2}DM^2$, é a anisotropia de forma, associada ao efeito desmagnetizante dos campos dipolares formados quando a amostra encontra-se imersa em um campo magnético externo. K_S é a anisotropia de superfície (ou de interface), sendo d_{FM} a espessura do material FM. Basicamente sua origem

está na redução de simetria nos sítios superficiais (ou interfaciais) e num conseqüente aumento da anisotropia magnetocristalina.

Um tema interessante em filmes finos refere-se à estrutura das paredes de domínio. Enquanto no caso dos sólidos praticamente todas as paredes de domínio são de tipo Bloch, no caso de filmes finos paredes de Néel e outras de tipo intermediário podem ocorrer e se tornarem dominantes. As paredes de Néel são normalmente muito mais largas do que as paredes de Bloch. Além disso, devido a sua configuração magnética, as paredes de Néel podem facilmente se acumular acoplando-se umas as outras normalmente "ancorando-se" em torno de inclusões e defeitos durante processos de magnetização. A estrutura dessas paredes é basicamente descrita assumindo-se que a magnetização no interior da parede é constante através da espessura d do filme e ao longo do comprimento da parede, variando somente com a componente normal à parede. A energia por unidade de área γ associada a uma parede de domínio decorre também de um balanço dos diversos termos de energia magnética. Normalmente, utiliza-se uma expressão considerando os termos de anisotropia uniaxial, interação de troca e magnetos-estático da forma:

$$\gamma = \frac{1}{2}dK_u + \frac{\pi^2 J}{d^2} + \frac{1}{4}DM^2 \quad (1.13)$$

onde M é planar e paralela ao eixo maior do filme e K_u é uma constante de anisotropia uniaxial. O processo de magnetização de filmes finos com anisotropia uniaxial é, em geral, descrito através do modelo de Stoner-Wohlfart. Neste modelo, considera-se um filme fino magnético de espessura d e diâmetro l como equivalente a um elipsóide de revolução oblato. Considera-se ainda o filme como um mono-domínio com anisotropia uniaxial, K_u , tendo uma magnetização M paralela à superfície. Quando H é aplicado no plano do filme, um processo de rotação coerente se estabelece. Da soma de todas as contribuições, a energia livre $G(M, H)$ resulta em:

$$G(M, H) = K_u \sin^2 \beta - M \cdot H \cos \theta \cos \beta - M \cdot H \sin \theta \cos \beta \quad (1.14)$$

onde θ é o ângulo entre M e o eixo de fácil magnetização, e β é o ângulo entre H e o eixo de anisotropia. O fator desmagnetizante D , nesse caso, vale $\frac{4\pi d}{(d+l)}$, sendo

desprezado ao adotar-se $d \ll l$. A condição estável é que $\frac{\partial G(M,H)}{\partial \varphi} = 0$ e $\frac{\partial^2 G(M,H)}{\partial^2 \varphi} > 0$.

Para concluir este capítulo podemos ressaltar que todo sistema FM em equilíbrio resulta de uma competição de energias com diferentes origens. As energias fundamentais e que envolvem diretamente o momento magnético são as de troca, anisotropia, Zeeman e magnetostática. Os momentos magnéticos interagem com o campo externo através do termo *Zeeman*. A interação dipolo-dipolo (magnetostática) originara o campo desmagnetizante, gerado pelo próprio corpo. Este campo origina a formação de domínios magnéticos e assim minimizando a energia do sistema. A interação de troca é devida à sobreposição entre as funções de onda eletrônica, que estão limitadas pelo princípio de Pauli. Assim, a densidade de energia magnética $G(M, H)$, Equação 1.2, é em geral uma função da posição (do corpo) e da orientação de M nessa posição. $G(M, H)$ deve ser minimizada em cada ponto da amostra em relação aos ângulos que definem a direção de M . Desse processo complexo de minimização, decorre a estrutura de domínios.

Capítulo 2

Polarização de Troca

Neste capítulo explicaremos o efeito de polarização de troca ¹, apresentando uma interpretação fenomenológica e os modelos teóricos que tentam descrever este fenômeno. Também descreveremos algumas das aplicações deste efeito que estão sendo utilizadas na indústria.

Após ter revisado a fenomenologia e os modelos teóricos propostos para descrever o efeito de polarização de troca, abordaremos o tema principal da presente tese que é a ordem de interação magnética em sistemas com anisotropia unidirecional. Esta abordagem vem sendo um tema de amplo debate devido aos diferentes resultados obtidos. Considerando esse fato, faremos um resumo de cada um desses resultados e apresentaremos a nossa proposta sobre este tema.

Nos últimos 15 ou 20 anos a polarização de troca atraiu um enorme interesse motivado pelas suas propriedades físicas e por sua aplicação tecnológica, como por exemplo, cabeças de leitura e dispositivos *spintrônicos* como as válvulas de spin. Diferentes sistemas que apresentam a polarização de troca têm sido estudados na última década e há uma tentativa, tanto teórica como experimental, para descrever este fenômeno, mas até agora a origem microscópica deste efeito continua sendo desconhecida.

¹Nesta tese usaremos esta expressão traduzida do inglês *Exchange Bias*

2.1 Fenomenologia

2.1.1 Deslocamento da Curva de Histerese

Quando materiais constituídos de uma camada ferromagnética (FM) em contato atômico com uma camada anti-ferromagnética (AF) são resfriados através da temperatura de *Neel* do AF na presença de um campo magnético externo, uma anisotropia unidirecional é induzida na interface FM/AF. Esta anisotropia induzida dá origem a um deslocamento horizontal da curva de histerese. Este deslocamento é assumido como sendo originado pela interação de troca na interface entre os spins do material FM e AF. Podemos atribuir a esta interação de troca uma energia de anisotropia unidirecional, que pode ser expressa na seguinte forma:

$$E = -J \cos \beta \quad (2.1)$$

onde J é a constante de interação de troca e β é o ângulo entre os momentos magnéticos do FM e AF. Esta equação reflete o fato de que o único estado de equilíbrio estável é quando a magnetização do material FM é paralela à magnetização do material AF.

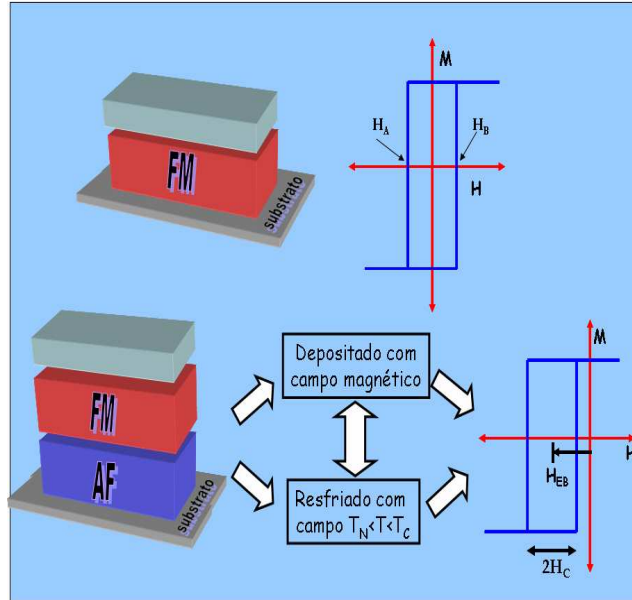


Figura 2.1: Diagrama comparativo magnético de uma camada FM e de uma bicamada AF/FM crescida ou resfriada com campo magnético aplicado.

A abordagem intuitiva fornecida por Nogues [6], será descrita a seguir. Baseado no trabalho seminal de Meiklejohn e Bean [5], supomos que o sistema é constituído por uma bicamada FM/AF na forma de filmes finos. Considerando que o sistema FM/AF esteja em uma temperatura $T_N < T < T_C$, quando aplicado um campo externo H , os spins da camada FM alinham-se com o campo, enquanto que os spins da camada AF estão no estado paramagnético (Figura 2.2-a). Resfriando o sistema, com H aplicado e $T < T_N$, os spins da camada AF próximos à interface com o FM se alinham paralelamente aos spins da camada FM (Figura 2.2-b).

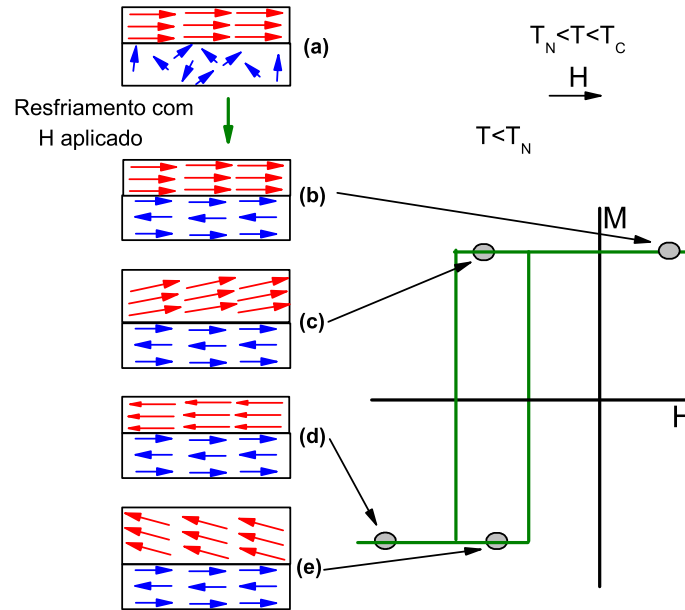


Figura 2.2: Diagrama esquemático da configuração de spins em um sistema FM/AF, nos diferentes estágios durante um processo magnetização.

Na medida em que o campo aplicado é revertido, os spins da camada FM tendem a girar, enquanto os spins da camada AF mantêm-se fixos, devido à sua forte anisotropia. Assim, os spins da interface AF exercem um torque sobre os spins da camada FM, tentando mantê-los na posição inicial Figura 2.2-c. Com o acréscimo da magnitude do campo magnético aplicado no sentido reverso ao do campo de resfriamento, consegue-se vencer o torque exercido pelos spins interfaciais da camada AF e assim os spins da camada FM giram até ser atingida a situação de saturação Figura

2.2-d. Mudando agora o campo magnético aplicado no mesmo sentido do campo de resfriamento, os spins da camada FM giram, coerentemente, mesmo antes de haver a reversão do campo externo, pois agora os spins da interface AF exercem um torque no mesmo sentido do campo aplicado Figura 2.2-e.

Podemos descrever este fenômeno como se houvesse um campo de polarização (H_{EB}) interno gerando um deslocamento da curva de histerese. Assim, para a maioria dos sistemas FM/AF, o centro da curva de histerese desloca-se para campos negativos se o campo durante o processo de resfriamento for aplicado no sentido positivo, onde, conforme o modelo intuitivo descrito no parágrafo anterior, os spins da interface FM/AF têm um acoplamento ferromagnético. As configurações de spin apresentadas na Figura 2.2 são ilustradas usando um arranjo colinear na interface, ou seja, onde os spins na interface FM/AF estão alinhados sobre uma mesma direção.

Podemos definir dois tipos de configurações interfaciais, como pode ser observado na Figura 2.3, a estrutura interfacial com spins não compensados, onde a orientação dos spins interfaciais da camada AF são paralelos, dando uma magnetização diferente de zero na interface AF e a estrutura interfacial com spins compensados onde a orientação dos spins interfaciais da camada AF são antiparalelas, dando como resultado uma magnetização nula dos spins interfaciais da camada AF [7].

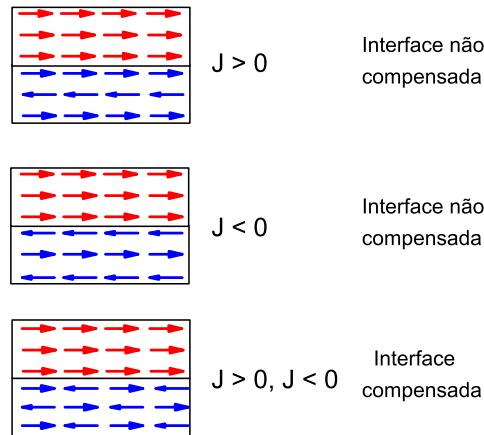


Figura 2.3: Esquema das configurações interfaciais colineares de spin em um sistema FM/AF.

Na Figura 2.3, $J < 0$ corresponde a um acoplamento antiferromagnético entre os spins interfaciais da camada FM e AF, dando como resultado um deslocamento para campos positivos da curva de histerese que denominaremos campo de polarização de troca positivo H_{EB} ².

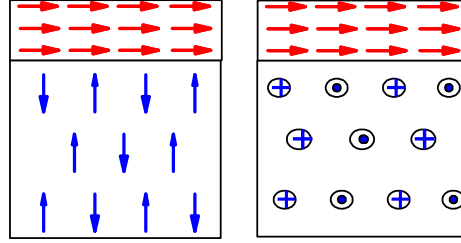


Figura 2.4: Esquema das configurações de spins interfacial não-colinear em sistema FM/AF.

Os spins na interface FM/AF ainda podem formar outros tipos de configurações não colineares, como é apresentado na Figura 2.4. Neste caso particular, os spins da camada FM e AF formam um ângulo de 90° , os spins da camada AF são perpendiculares à interface FM/AF. Além disso pode ocorrer a formação de paredes de domínio no FM e no AF e o processo *spin flop*³ dos spins interfaciais do AF, entre outros [7].

Outro conceito importante na teoria da configuração dos spins interfaciais FM/AF é a idéia dos spins fixos ou presos e os spins livres pela anisotropia da camada AF, pois somente os spins presos participam do mecanismo que gera o efeito de polarização de troca. Nas camadas AF, ainda podemos dividir os spins interfaciais entre reversíveis e irreversíveis, frente à ação da magnetização, ou seja, alguns spins da camada AF podem reverter sua magnetização junto com os spins do FM, enquanto outros continuam presos.

²Também denominado *Exchange Bias* positivo H_{EB}

³Orientação transversal dos momentos magnéticos em relação ao campo externo aplicado.

2.1.2 Dependência com a Espessura do AF

A polarização de troca não é observada se a espessura da camada AF está abaixo de uma espessura crítica a qual depende do material AF. Acima desta espessura o campo de polarização de troca aumenta até atingir um limite. Esta dependência é complicada para ser descrita por um modelo teórico geral, pois as propriedades como tamanho de grão ou a temperatura de Néel, as quais são quase sempre desconhecidas, dependem fortemente da espessura do filme.

Um fato importante é a existência da dependência entre o acoplamento de troca e a anisotropia magneto-cristalina da camada AF. Podemos considerar duas situações de interesse; quando $k_{AF}t_{AF} \ll J_{AF/FM}$ onde k_{AF} e t_{AF} são a constante de anisotropia do AF e a espessura da camada AF, neste caso estamos em uma situação de uma anisotropia fraca, os momentos magnéticos do AF e FM respondem em conjunto a ação de um campo externo, de maneira que não acontece o efeito de polarização de troca. Esta condição, de fraca anisotropia, define um parâmetro importante, a espessura mínima ou crítica da camada AF, abaixo da qual este efeito não é observado:

$$t_{AF} = \frac{J_{AF/FM}}{t_{AF}} = t_{AF}^{critica} \quad (2.2)$$

Se a situação que descreve a Equação [2.2] é satisfeita, os momentos da camada AF podem ser deslocados do seu eixo preferencial durante a inversão dos momentos do FM, uma vez que a anisotropia magneto-cristalina do AF não é suficiente para barrar os seus movimentos. A outra situação $k_{AF}t_{AF} \gg J_{AF/FM}$ a anisotropia do AF é maior do que $J_{AF/FM}$ de modo que temos o caso do modelo intuitivo, descrito anteriormente.

2.1.3 Dependência com a Espessura do FM

O trabalho de Kouvel [22], mostra que o H_{EB} é inversamente proporcional à espessura da camada FM.

$$H_{EB} \propto \frac{1}{t_{FM}} \quad (2.3)$$

A partir desta dependência ele concluiu que o efeito de polarização de troca têm uma origem interfacial. Entretanto esta relação não é observada quando a espessura da camada FM é menor do que a espessura mínima de uma possível parede de domínio nesta camada. Provavelmente isto ocorre porque nesta escala a camada FM deve apresentar descontinuidades estruturais [6]. A espessura crítica depende da microestrutura e do processo de crescimento do sistema e deve variar de algumas dezenas até poucas centenas de nm [23]. A Figura [2.5-a] mostra a dependência do campo de polarização de troca com a espessura da camada FM no caso de uma bicamada de NiO/NiFe [24]. Recentemente, Gokemeijer [9] mostrou que o campo de polarização de troca diminui quando as duas camadas magnéticas estão separadas por uma camada não-magnética (NM). Assim, esse resultado proporciona uma evidência adicional para a natureza interfacial deste efeito.

2.1.4 Dependência com a Temperatura

Intuitivamente supomos que o efeito de polarização de troca desaparece acima da temperatura de Néel do AF. Para diferentes materiais AF, têm sido observado que a anisotropia unidirecional já desaparece em baixas temperaturas. A temperatura onde a anisotropia unidirecional desaparece é denominada *temperatura de bloqueio* T_B . Por exemplo, em sistemas onde o AF é o NiO, com temperatura de Néel de $523K$, a anisotropia unidirecional desaparece em torno de $475K$.

A origem desta dependência entre T_B e H_{EB} deve estar relacionada com o tamanho de grão e a espessura da camada AF, através de um efeito de tamanho. Assim, a temperatura de Néel do AF será reduzida, se estes parâmetros, tamanho de grão e a espessura da camada AF, forem menor que uma dimensão característica do AF, (largura de uma parede de domínio) que por sua vez depende do sistema escolhido.

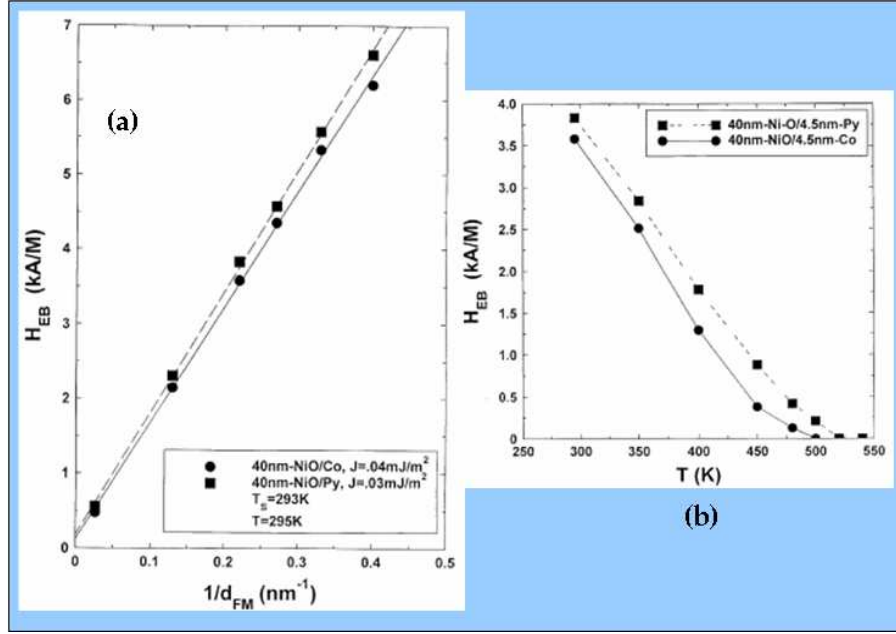


Figura 2.5: Dependência do campo de polarização de troca com (a) espessura da camada FM e (b) temperatura, em bicamadas NiO/Co e NiO/Py [57].

Esta hipótese se fundamenta no fato de que sistemas compostos de materiais AF mono-cristalinos e camadas AF grossas, com grãos relativamente grandes, tendem a ter $T_B = T_N$, enquanto que para a camada AF finas $T_B < T_N$. Deve-se tomar em conta também a dependência da anisotropia magneto-cristalina do AF (k_{AF}) com a espessura da camada AF (t_{AF}), quando t_{AF} decresce a k_{AF} é menor, de forma que uma redução na temperatura de bloqueio deve ser esperada.

2.1.5 Efeito de Tendência

O comportamento dos sistemas com polarização de troca é dependente da história magnética⁴ da amostra. Assim, a magnitude do campo de polarização de troca H_{EB} e do campo coercitivo H_C é dependente do número de medições magnéticas previamente realizadas na amostra, e seus valores caem assintoticamente com o número de medidas feitas.

Usualmente H_{EB} e H_C resultam constantes após quase 10 ciclos de varredura à temperatura ambiente. Este efeito é mais notável em amostras AF poli-cristalinas

⁴Historia magnética se refere ao número de medidas $M \times H$ feitas na mesma amostra

do que em amostras monocristalinas [6]. Supõe-se que a re-organização na interface FM/AF poderia ter contribuído ao efeito de treinamento [25]. Quando a camada AF é depositada ou resfriada com campo acima de T_N , os spins na interface estão num estado de equilíbrio meta-estável. Varrendo o campo aplicado entre valores positivo e negativo da saturação magnética, este processo ajuda os spins a localizar as posições de equilíbrio, reduzindo a proporção de spins meta-estáveis interfaciais.

2.1.6 Efeito de Memória

O acoplamento de troca é dependente do estado magnético da camada FM e da temperatura desde a qual o processo de resfriamento começa. Um campo de resfriamento com um valor da magnetização diferente do estado de saturação pode produzir curvas de histerese totalmente diferentes [26].

O H_{EB} pode ainda ser alterado ou revertido se o processo de resfriamento é perturbado entre o estágio de temperatura inicial e final (durante a medição), embora os efeitos de memória não pareçam ter nenhum efeito no H_C em sistemas com polarização de troca [26]. As idéias anteriores ressaltam a importância de qualquer perturbação magnética no comportamento de sistemas com polarização de troca, especialmente quando a variação de temperatura está envolvida.

2.2 Modelos Teóricos

O fato de que a relevância tecnológica da polarização de troca aumentou consideravelmente durante a década de 1990, conduz a uma busca de um melhor entendimento deste efeito. Muitos sistemas exibindo a polarização de troca foram estudados experimentalmente [12, 24]. Paralelamente, modelos teóricos foram desenvolvidos para dar uma descrição aproximada do fenômeno observado. Os diferentes modelos teóricos estão resumidos principalmente nos artigos feitos por Nogues-Schuller [6] e Berkowitz-Takano [27]. Os trabalhos reportados por Stamps [28] e Kiwi [7] focalizam os diferentes modelos teóricos e incluem uma descrição de sistemas poli-cristalinos.

2.2.1 Modelo de Meiklejohn e Bean

O primeiro modelo fenomenológico para descrever a polarização de troca foi proposto por Meiklejohn e Bean [5, 29, 30], para explicar seus resultados no sistema Co/CoO. Algumas suposições foram feitas neste modelo, e são descritas a seguir:

1. A interface AF é perfeitamente lisa, não compensada e têm um acoplamento ferromagnético com os spins da camada FM.
2. O eixo de anisotropia da camada AF é colinear com o eixo de anisotropia da camada FM.
3. A magnetização da camada AF é rígida ao longo do seu eixo de anisotropia.
4. A magnetização das camadas FM e AF é homogênea, não possui variações espaciais no interior das camadas correspondentes.

A energia livre magnética por unidade de superfície na bicamada FM/AF pode ser expressa, de acordo com a Equação [2.2], da seguinte forma:

$$G(m, H) = -H_{ext}m_{FM}t_{FM}\cos(\theta - \beta) + k_{FM}t_{FM}\sin^2\beta + k_{AF}t_{AF}\sin^2\alpha - \sigma_{int}\cos(\beta - \alpha) \quad (2.4)$$

onde H_{ext} é o campo externo aplicado, M_{FM} é a magnetização de saturação da camada FM, t_{FM} e t_{AF} são as espessuras das camadas FM e AF, k_{FM} e k_{AF} são as constantes de anisotropia da camada FM e AF e σ_{int} é a constante de acoplamento de troca na interface. Os ângulos α , β e θ são definidos de acordo com a Figura 2.6.

Podemos dizer, a partir da Equação [2.4], que quando $\sigma_{int} = 0$ não existe acoplamento entre a camada FM e AF e quando $H_{ext} = 0$, toda a energia livre do sistema FM/AF é dada apenas pelos termos de anisotropia magnética (segundo e terceiro termo). O trabalho feito pelo campo externo para girar os spins é dado pelo primeiro termo, e o quarto termo representa o acoplamento FM/AF. Assim, podemos obter o valor do H_{EB} , fazendo uso das suposições feitas anteriormente. De acordo com esses

fatores, se o campo externo H_{ext} é aplicado ao longo do eixo fácil da camada FM, *i.e.* $\theta \rightarrow 0$, se k_{AF} é muito grande, $\alpha \approx 0$, a Equação [2.4] fica da seguinte forma:

$$G(m, H) = -(Hm_{FM}t_{FM} + \sigma_{int})\cos\beta + k_{FM}t_{FM}\sin^2\beta \quad (2.5)$$

Essa equação é análoga à equação de Stoner-Wohlfarth para a energia de um mono-domínio de partículas não-interagentes com anisotropia uniaxial,

$$G(m, H) = -Hm_{FM}t_{FM}\cos\beta + k_{FM}t_{FM}\sin^2\beta \quad (2.6)$$

Notemos que as Equações [2.5] e [2.6] resultam idênticas, somente se;

$$H_{ef} = H + \frac{\sigma_{int}}{m_{FM}t_{FM}} \quad (2.7)$$

Nesse caso, a curva de histerese da bicamada é deslocada por uma quantidade:

$$H_{ef} = \frac{\sigma_{int}}{m_{FM}t_{FM}} \quad (2.8)$$

ao longo do eixo do campo aplicado. Isto implica que σ_{int} é igual a energia interfacial por unidade de superfície, segundo a definição:

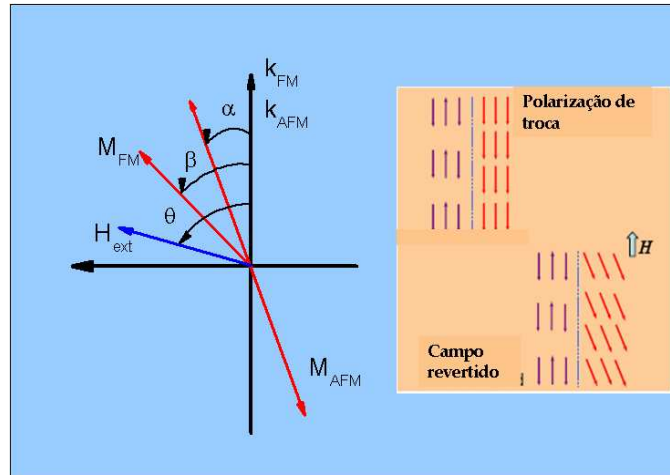


Figura 2.6: Diagrama dos ângulos envolvidos em um sistema com polarização de troca. Neste caso é assumido que os eixos de anisotropia FM e AF são colineares.

$$\Delta E = m_{FM} t_{FM} H_{EB} \quad (2.9)$$

Assim, quando a anisotropia magnética da camada AF é pequena, é energeticamente mais favorável que durante o processo de histerese os spins no FM e AF girem juntos *i.e.* $\beta - \theta \approx 0$. Assumindo que H_{ext} é aplicado ao longo do eixo fácil da camada FM, a Equação [2.3] resulta:

$$G(m, H) = -H m_{FM} t_{FM} \cos \beta + (k_{FM} t_{FM} + k_{AF} t_{AF}) \sin^2 \alpha - \sigma_{int} \quad (2.10)$$

Comparando as Equações [2.5] e [2.10] vemos que $H = H_{ef}$ e não ocorre o deslocamento da curva de histerese, no caso de uma anisotropia fraca da camada AF. Porém, o valor do campo coercitivo H_c mudará desde que a anisotropia magnética seja modificada devido ao acoplamento na interface. Para uma anisotropia fraca da camada AF, qualquer configuração que seja atingida pelo campo de resfriamento será destruída por um único processo de reverter o campo aplicado. O critério para uma fraca anisotropia da camada AF pode ser expresso como:

$$k_{AF} t_{AF} < \sigma_{int} \quad (2.11)$$

No caso intermediário, quando a energia interfacial é comparável à energia de anisotropia do AF, a formação de uma parede de domínio no AF têm que ser considerada. Estes modelos serão abordados nas seções seguintes.

Embora o modelo fenomenológico apresentado acima proporcione um bom quadro intuitivo da polarização de troca, ele fornece um fraco entendimento quantitativo deste efeito. O deslocamento predito pela Equação [2.7] depende do valor assumido para σ_{int} . Assim, se o valor de σ_{int} é similar ao valor da interação de troca do FM, H_{EB} calculado é várias ordens de magnitude maior do que o valor experimental [31]. O modelo intuitivo somente descreve o deslocamento negativo da curva de histerese e espera-se que interfaces não-compensadas apresentem o maior valor de polarização de troca. Interfaces compensadas não devem apresentar nenhum efeito de polarização

de troca. Para solucionar esta deficiência, o modelo de Binek *et. al.* [32] apresenta uma abordagem generalizada da aproximação do Meiklejohn e Bean.

Assim, modelos mais complexos foram desenvolvidos, nos quais, muitos outros efeitos são consideradas. Alguns destes efeitos são por exemplo, o acoplamento *spin-flop*, rugosidades na interface, formação de domínios ferromagnéticos, etc. Nas próximas seções alguns destes modelos serão apresentados mais detalhadamente.

2.2.2 Modelo de Néel

L. Néel fez uma abordagem geral da interação entre um FM e AF sem a suposição de um AF rígido. Ele calculou a magnetização contínua que evolui entre um AF não-compensado e um FM sob a reversão do FM. Neste modelo $\varphi(i)$ é o ângulo entre a magnetização do FM e o AF é o eixo fácil comum na i -ésima camada. A magnetização de cada camada é homogênea, o que conduz à seguinte equação diferencial:

$$J \frac{d^2 \varphi(i)}{di^2} - 4k \sin \varphi(i) = 0 \quad (2.12)$$

O modelo é limitado para interfaces não-compensadas e mono-cristais. Para valores típicos de J e k , Néel derivou o perfil da magnetização assumindo camadas FM e AF grossas (10-100nm). Para essas espessuras, configurações estáveis dos domínios magnéticos são estabelecidas em cada camada, separada por uma parede de domínio paralela à interface. O modelo de Néel prediz que é necessário uma espessura mínima do AF para a existência de uma polarização de troca. Além disso, forma a base para futuros modelos assumindo a formação de paredes de domínios planares paralelas à interface FM/AF.

2.2.3 Modelo de Fulcomer-Charap

Para tentar descrever as flutuações térmicas em sistemas com polarização de troca, Fulcomer e Charap desenvolveram um modelo [33], onde a camada AF é considerada como um conjunto de partículas pequenas uniaxiais com diferentes diâmetros. Estas partículas estão acopladas a um FM. Acima da temperatura de bloqueio, que depende do diâmetro da partícula AF, elas podem reverter-se devido às flutuações

térmicas. Esse modelo explica a dependência da coercitividade com a frequência (da medição) e com a temperatura. Uma consequência deste modelo é a introdução de uma temperatura de bloqueio na qual o efeito de polarização de troca desaparece.

2.2.4 Modelo de Malozemoff

Outro modelo para efetivamente minimizar a energia de troca interfacial foi proposto por Malozemoff [34, 35]. Nesse modelo, assume-se um AF mono-cristalino rígido com uma superfície rugosa. A idéia básica na aproximação de Malozemoff é que qualquer imperfeição devido a passos ou defeitos na interface causará perturbações na ordem magnética da superfície, seja compensada ou não-compensada. Os defeitos, como apresentados na Figura 2.7, causam um desequilíbrio entre o acoplamento positivo e negativo através da interface e, portanto, uma anisotropia unidirecional sob uma interface não-compensada.

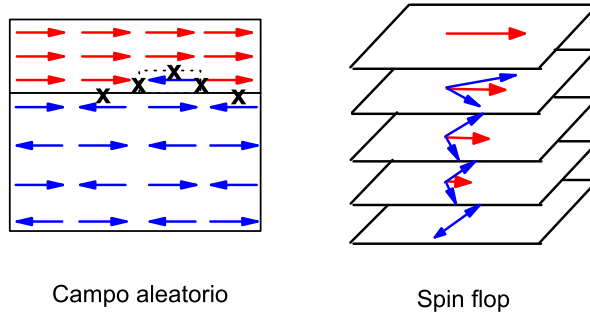


Figura 2.7: Esquema da configuração de spins no sistema FM/AF apresentado no modelo de Malozemoff *et. al.*

No modelo de campo aleatório, a energia de troca σ_{int} é aleatoriamente distribuída e seu valor médio sobre uma pequena área não desaparecerá. Por exemplo, as posições das interações frustradas na ordem magnética devido a um defeito sob uma superfície não-compensada são representadas por x na Figura 2.7. O sistema tratará de minimizar o acréscimo na energia magneto-estática causada pelo defeito fazendo um re-arranjo da magnetização ao redor do defeito sob um típico compri-

mento de largura de uma parede de domínio $L = \pi\sqrt{A_{AF}k_{AF}}$. Dentro desta pequena área (L^2) formada pelo defeito a energia interfacial é agora reduzida para $1/\sqrt{N}$ com $\sqrt{N} = L/a$, onde N é o número de sítios dentro desta área e a é a constante da rede. Uma análise mais aprofundada fornece a energia de troca na interface com um parâmetro de rugosidade z de acordo com:

$$\sigma_{int} = \frac{4zJ_{FM/AF}}{\pi aL} \quad (2.13)$$

Esta energia têm um valor reduzido se comparada à energia obtida do modelo de Meiklejohn e Bean

2.2.5 Modelo de Mauri

Após a proposta de Malozemoff, Mauri *et al.* [36, 37] sugeriram um modelo alternativo que considera: (a) um filme FM ultrafino sobre um substrato AF espesso com anisotropia uniaxial na direção Z ; (2) uma interface FM/AF de espessura ε perfeitamente lisa onde os spins do substrato AF e da camada FM têm um acoplamento ferromagnético e (3) a espessura do FM (t) que é muito menor do que a largura da parede de domínio da camada FM. Assim, podemos assumir que todos os spins na camada FM estão na mesma direção formando um ângulo β com o eixo Z . Os spins interfaciais do substrato AF formam um ângulo α com o eixo Z . Se $\alpha \neq 0$, uma parede de domínio se forma dentro do substrato AF. Dessa forma, a energia total magnética da interface é:

$$\begin{aligned} \delta = & 2\sqrt{A_{AF}k_{AF}}(1 - \cos\alpha) + \frac{A_{int}}{\varepsilon}(1 - \cos(\alpha - \beta)) \\ & + k_{FM}t_{FM}\cos^2\beta + H_{ext}m_{FM}t_{FM}(1 - \cos\beta) \end{aligned} \quad (2.14)$$

onde o primeiro termo é a energia de formação da parede de domínio dentro do AF, sendo $A = J_{AF}/a$, onde a é o parâmetro de rede do AF e J_{AF} é a constante de troca do AF; o segundo termo é a energia de troca, sendo A_{int} a constante de rigidez da interface; o terceiro termo é a energia de anisotropia do FM e o último termo é a energia magneto-estática. Minimizando a equação da energia [2.14], Mauri *et al.*, encontraram uma expressão para a magnitude do H_{EB} :

$$H_{EB} = -\frac{2\sqrt{A_{AF}k_{AF}}}{m_{FM}t_{FM}} \quad (2.15)$$

que fornece valores razoáveis de H_{EB} , já que um limite superior para a energia de troca é imposto pela formação da parede de domínio no AF. Uma das limitações deste modelo é que a energia de anisotropia deve ser pequena, caso contrário, torna-se energeticamente favorável a formação de paredes de domínio no FM.

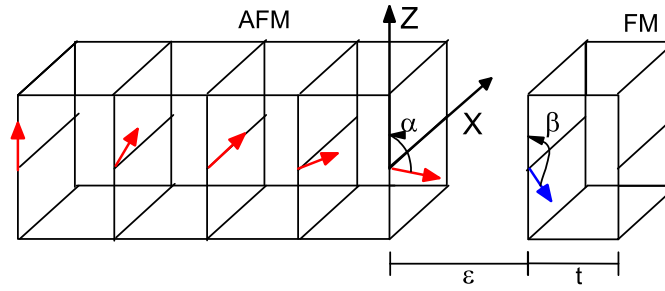


Figura 2.8: Esquema da configuração de spins no modelo de Mauri *et. al.*, que apresenta um filme fino FM sobre um substrato AF, mostrando uma única sub-rede do AF. O AF possui uma anisotropia uniaxial dirigida ao longo do eixo Z. O campo aplicado é aplicado na direção $-Z$ e o acoplamento de troca é positivo

2.2.6 Modelo de Koon

O modelo de Koon [38] focaliza as superfícies AF compensadas. Este modelo fornece a configuração magnética estável na interface, utilizando um cálculo micromagnético. Os resultados estão baseados no modelo de Heisenberg, o modelo de Koon descreve um acoplamento perpendicular entre os momentos da camada FM e o eixo de fácil magnetização da camada AF. Esse modelo mostra também que os momentos magnéticos na interface da camada AF exibem o efeito de rotação no plano ⁵, um efeito de minimização da energia. Dessa forma, os spins interfaciais da camada AF giram no plano, formando uma parede de domínio na camada AF, de forma que os spins

⁵Também denominado *canting* em inglês.

mais afastados da interface AF ⁶ se acoplam perpendicularmente ao campo aplicado durante o processo de resfriamento com campo aplicado, Figura [2.9].

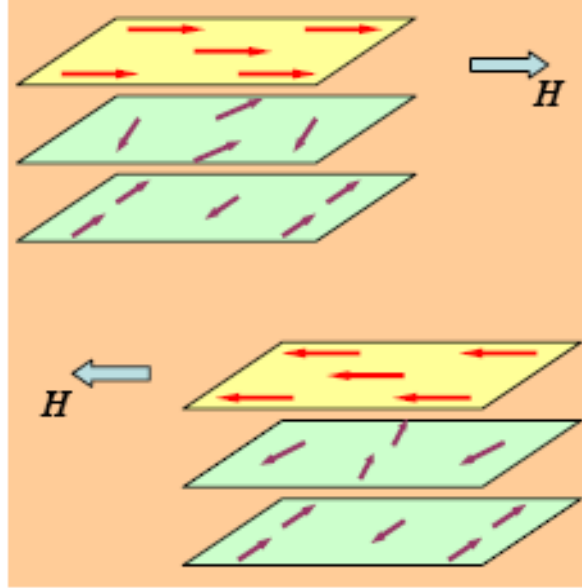


Figura 2.9: Esquema da configuração magnética interfacial no modelo de Koon.

O modelo de Koon, apesar de descrever de forma satisfatória a estrutura micro-magnética interfacial e fornecer uma explicação para o efeito de polarização de troca positiva, apresenta incapacidade para descrever o efeito de polarização de troca negativa, já que a presença de uma interface AF rotacionada não é suficiente para gerar o efeito de polarização de troca, ou seja, produzir uma anisotropia unidirecional.

Durante os últimos anos, outros modelos foram desenvolvidos, tais como o modelo de Kiwi [39], que explica o efeito de polarização de troca positiva, e o modelo de variação de campo local proposto por Stiles *et al.* [40], que é baseado na interação de

⁶Podemos dizer que estes spins pertencem ao volume da camada, do inglês *bulk*.

átomos individuais ou nos momentos magnéticos. No entanto, a maioria dos modelos é um aperfeiçoamento ou uma combinação dos modelos já descritos.

A tabela 2.1 resume os modelos propostos sobre a polarização de troca descritos. O estudo deste efeito é uma área de rápido crescimento. As teorias existentes não são suficientemente gerais para cobrir todos os tópicos deste efeito em qualquer sistema.

Modelo	Propriedades	Tipo de Interface	Resultado
Modelo intuitivo	Rotação coerente da magnetização	Interface AF não compensada	H_{EB} muito maior do valor experimental
Modelo de Néel	Aproximação contínua	Interface AF não compensada	Parede de domínio no AF precisa ser mais longo que o bloco da camada FM
Modelo de Fulcomer e Charap	Camada AF formada por partículas uniaxiais		Define a Temperatura de bloqueio
Modelo de Malozemoff	Defeitos aleatórios originam campos aleatórios	Interface AF não compensada	Valor razoável do H_{EB}
Modelo de Mauri	Acoplamento FM na interface	Interface AF não compensada	Razoável valor do H_{EB}
Modelo de Koon	Spins oblíquos na interface	compensada	Estrutura interfacial magnética realística

Tabela 2.1: Principais características e resultados obtidos a partir dos modelos teóricos propostos para descrever o efeito de polarização de troca.

2.3 Aplicações

O fenômeno de polarização de troca vem tendo uma aplicação tecnológica importante. Inicialmente ele foi usado para estabilizar domínios em cabeças de leitura baseados no efeito da magneto-resistência anisotrópica (AMR). Hoje em dia, a polarização de troca vem sendo aplicada para fixar uma das camadas FM nas estruturas do tipo válvulas de spin, que exibem o efeito de magneto resistência gigante (GMR).

As válvulas de spin são estruturas que consistem de duas camadas FM separadas por uma camada NM. Uma destas camadas FM, é definida como a camada fixa ou presa que é formada ou crescida sobre uma camada AF, onde a magnetização desta camada fica presa pelo efeito de polarização de troca dando origem a uma anisotropia

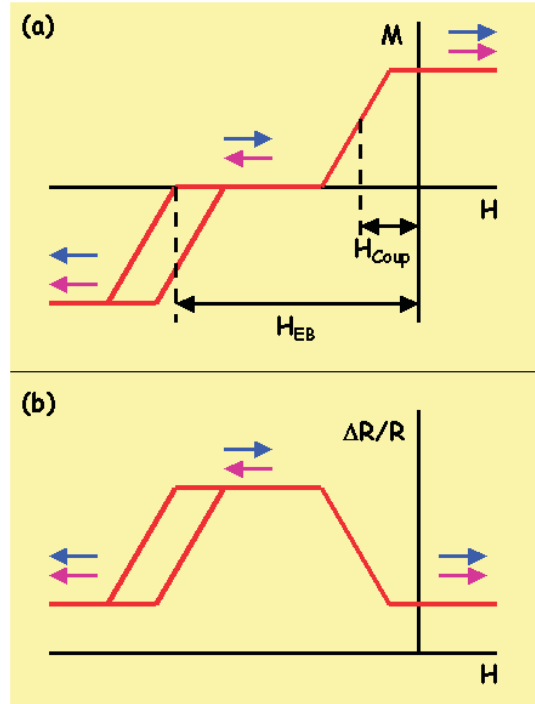


Figura 2.10: Curva de magneto-resistência e magnetização de uma válvula de spin.

unidirecional. A outra camada, definida como a camada livre, tem uma curva de histerese normal. Portanto, existe um intervalo de campo magnético aplicado onde a magnetização da camada FM livre é oposta à magnetização da camada FM presa.

O efeito GMR acontece quando uma corrente flui através desta estrutura de válvula de spin. Devido ao efeito de espalhamento dependente de spin, a resistência da válvula de spin é baixa no intervalo de campo onde a direção da magnetização das camadas FM são paralelas e o estado de alta resistência é obtido quando a orientação entre as magnetizações das camadas FM é anti-paralela, (Figura [2.10]). As estruturas baseadas neste princípio são usadas nas modernas cabeças de leitura.

Estruturas parecidas podem ser usadas para construir uma memória magnética ou MRAM ⁷, onde a informação é armazenada magneticamente. Com este propósito, a camada não magnética é quase sempre trocada por uma camada com propriedades isolantes, denominando-se, neste caso, magneto-resistência por efeito túnel (TMR) e a corrente flui na direção perpendicular às interfaces.

⁷Do inglês, *magnetic random access memory MRAM*

2.4 Ordem de Interação Magnética

Nas seções anteriores, revisamos os modelos teóricos propostos para descrever o efeito de polarização de troca. Uma idéia constante em todas estas teorias é que elas se baseiam em uma interação de curto alcance. A camada FM sempre está em contato atômico com a camada AF, assim, todos esses modelos assumem um acoplamento de primeiros vizinhos na interface. Portanto, em todos estes modelos, o campo de polarização de troca H_{EB} é o resultado do acoplamento entre as primeiras camadas atômicas do FM e AF.

As teorias propostas para descrever a interação de troca entre camadas magnéticas, abordam este problema assumindo um sistema do tipo FM/NM/FM, onde a única mudança possível é a troca do tipo de espaçador variando entre um metal, um isolante ou um semiconductor. O acoplamento de troca oscilatório através de camadas separadoras têm sido estabelecido com um fenômeno geral para muitos metais de transição não magnéticos, tendo um caracter de longo alcance. Mas, diversas experiências mostram que o acoplamento magnético através de uma camada NM pode também existir em sistemas com polarização de troca [9].

A primeira abordagem mostrando que o campo de polarização de troca pode também ser de longo alcance foi feita por Gokemeijer *et al.* [9], indicando que o campo de polarização de troca exibe um decaimento do tipo exponencial dependente da espessura da camada NM estendendo-se até várias dezenas de nm. Também têm sido reportadas oscilações do campo de polarização de troca em função da espessura da camada NM no sistema NiFe/Cu/FeMn [10], Figura [2.12]. Como uns poucos sistemas têm sido estudados até o momento, e ainda não fica claro se este acoplamento de troca indireto é um fenômeno geral em sistemas com polarização de troca, Figura [[12]]. Têm sido reportados resultados opostos também, Thomas *et al.* [8] mostraram que o campo de polarização de troca no sistema IrMn/NM/CoFe têm um decaimento não oscilatório que depende da espessura da camada NM e desaparece para espessuras menores que 1nm.

Apesar destes resultados contraditórios sobre a possível presença de uma interação de longo alcance, é seguro e razoável prever que a intensidade do acoplamento de troca entre uma camada AF e FM diminui, com o acréscimo da espessura da camada NM. Esta diminuição da energia do acoplamento pode induzir algumas mudanças correlacionadas com as propriedades magnéticas da camada FM.

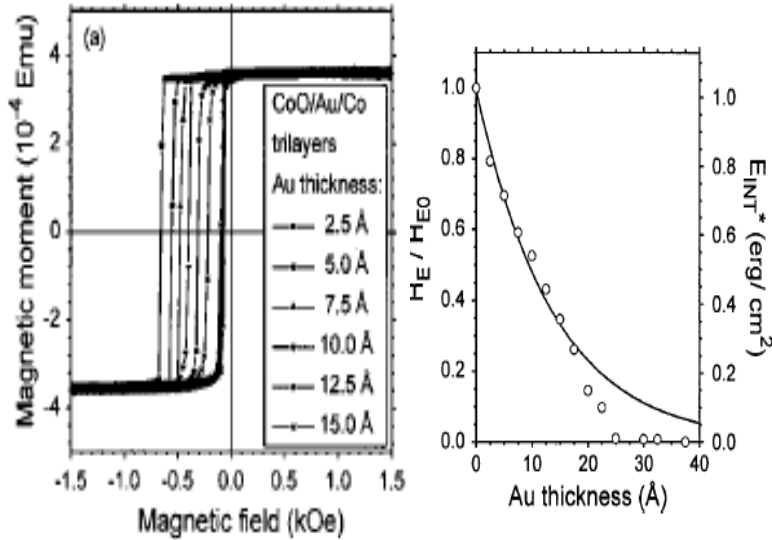


Figura 2.11: Sistema que apresenta acoplamento de troca de longo alcance, a dependência entre H_{EB} e a espessura da camada NM é do tipo exponencial, no sistema CoO/Co, [76].

A mudança da configuração padrão FM/NM/FM de uma MM por uma do tipo AF/NM/FM traz um novo cenário físico, pois as características desta nova estrutura são muito diferentes. Enquanto em uma interface de uma camada FM cada átomo contribui igualmente ao acoplamento, a interface de uma camada AF compreende átomos com direções de spin diferentes, isto porque a estrutura de spin de um AF conduz ao cancelamento dos momentos magnéticos no plano interfacial (também denominado interface compensada AF) ou devido a passos mono-atômicos na interface, no caso de uma interface AF não-compensada. Esta é a razão pela qual a magnitude do acoplamento na interface AF/FM é muito menor que o acoplamento entre duas camadas ferromagnéticas em contato direto.

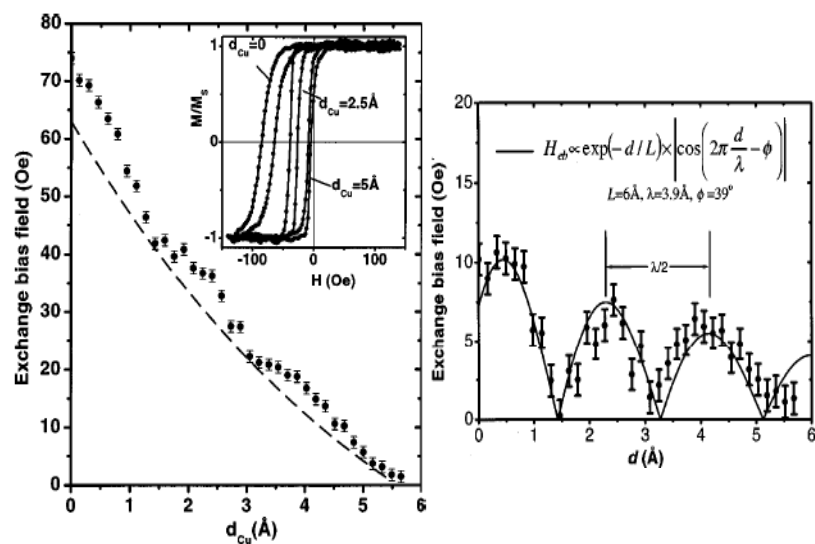


Figura 2.12: Sistema que apresenta acoplamento de troca de longo alcance, a dependência entre H_{EB} e a espessura da camada NM e do tipo oscilatório, no sistema FeMn/NiFe, [30].

Capítulo 3

Técnicas e Detalhes Experimentais

A técnica de preparação das amostras assim como as técnicas experimentais usadas para a sua caracterização serão apresentadas a seguir. Começaremos fazendo uma breve descrição dos princípios básicos da pulverização catódica¹, logo revisaremos a montagem experimental do sistema de pulverização catódica no Laboratório de Filmes Finos do Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas CBPF-MCT.

Após ter revisado o método de preparação das amostras, passaremos a detalhar os princípios físicos básicos das técnicas experimentais de caracterização usadas na presente tese. Iniciaremos com as técnicas de caracterização estrutural, magnética e por último a técnica de dicroísmo circular magnético de raios X.

3.1 Pulverização Catódica

A técnica utilizada na preparação dos filmes finos foi a pulverização catódica por magnetron (*Magnetron Sputtering*). Esta técnica pertence ao grupo de processos de crescimento de filmes chamado deposição física a partir da fase de vapor (PVD)². Estes processos se fundamentam na formação de vapor do material por métodos físicos, com o propósito de que estes se condensem sobre a superfície de um substrato formando uma camada ou um filme fino.

O princípio físico geral que fundamenta o método de pulverização catódica é a transferência de momentum. O processo consiste em fazer incidir moléculas ou átomos com alta velocidade sobre um material determinado usado como alvo. A colisão da

¹Do inglês *Sputtering*.

²Do inglês *Physical vapor deposition*.

partícula com a superfície do alvo desaloja cineticamente átomos ou aglomerados de átomos do alvo. Estes átomos arrancados são condensados sobre um substrato, localizado em frente do alvo. A diferença entre os diversos sistemas de deposição por pulverização catódica está na forma de gerar o plasma, por exemplo, a pulverização catódica DC³ e a pulverização catódica RF⁴.

O rendimento do fluxo em pulverização catódica se define como a razão dos átomos tirados do alvo ao número de partículas incidentes e depende da massa e energia das partículas incidentes assim como também do ângulo de incidência. Além disso, o fluxo está diretamente relacionado com o tipo de material usado como alvo e a energia de enlace que têm suas partículas.

3.1.1 Fundamento Físico

O fenômeno de pulverização catódica se produz em uma câmara que deve estar em condições de ultra alto vacuo (UHV)⁵. Nesta câmara se injeta um gás inerte (He, Ar, Xe, Ne) cujos átomos ou partículas incidem sobre a superfície do alvo. As maioria das vezes se usa argônio preço competitivo. Se em lugar de usar um gás inerte injetamos um gás reativo, isto afetará a composição do filme resultante. Neste caso se diz que a deposição é por pulverização catódica reativa⁶.

A pressão de trabalho na câmara deve estar em condições de UHV para que permita a ionização das partículas extraídas e a formação de plasma. Em geral, as partículas (sejam ions, átomos ou moléculas) devem ter energia suficiente para remover os átomos do alvo. Portanto é de interesse conhecer a escala de energia que devem ter estas partículas. Diversos estudos teóricos e experimentais estabelecem o conceito de limite de pulverização catódica, o qual é calculado para conhecer a mínima energia com que devem incidir as partículas no alvo para que se produza a emissão dos átomos. Assim, podemos descrever três escalas de energia no processo de pulverização catódica, de acordo com a Figura 3.1.

Na região entre 100 e 1000 eV o momentum é transferido aos átomos na região

³Do inglês *Sputtering DC*.

⁴Do inglês *Sputtering RF*.

⁵Das siglas do inglês *Ultra High Vacuum*.

⁶Também denominado *Sputtering reativo*.

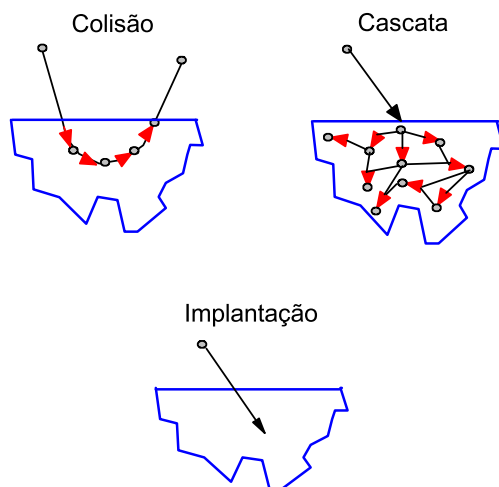


Figura 3.1: Esquema da colisão das partículas com a superfície do alvo nas diferentes escalas de energia.

próxima à superfície do alvo e está caracterizada pela sequência das colisões perto ao ponto de impacto. Nesta região o processo é denominado colisional⁷. Como algumas partículas voltam, os átomos próximos à superfície podem ser golpeados e tirados já que a transferência de energia se difunde e é suficiente para vencer a energia de enlace dos átomos. Assim, a seção transversal de espalhamento é pequena e as partículas incidentes atingem uma profundidade de penetração da ordem de algumas mono-camadas. Quando as partículas têm uma energia superior à 1000 eV a seção transversal de espalhamento aumenta e rapidamente se transfere esta energia para toda a região e as ligações de um grande número de átomos próximos ao ponto de impacto se quebram simultaneamente. Nesta região o processo é chamado de cascata e pode causar o re-ordenamento dos átomos; assim, para efeitos de deposição esta região deve ser evitada. Na região dos KeV, a seção transversal de espalhamento se torna menor, a cascata de colisão somente acontece muito por abaixo da superfície e as partículas incidentes perdem suficiente energia de tal modo que se implanta no material e o fluxo de espalhamento decai notoriamente. Nesta região o processo é chamado de implantação.

⁷Do inglês *knock on*.

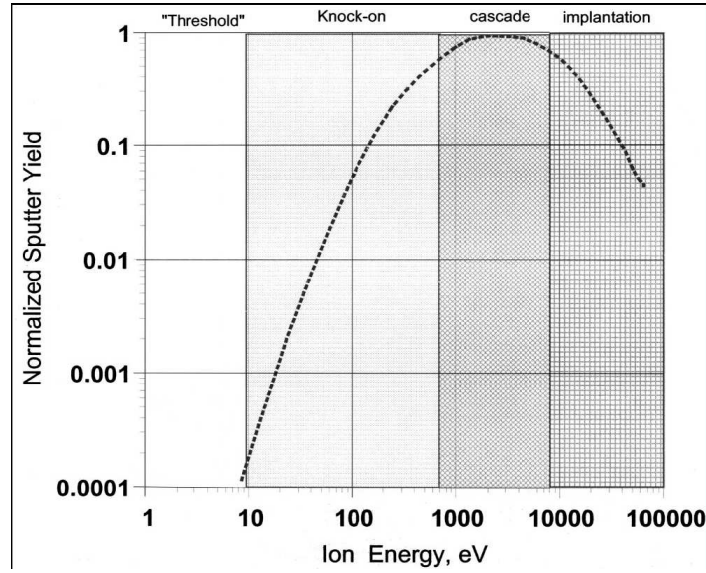


Figura 3.2: Regime de energia nos diferentes processos de pulverização catódica.

Para a região de energia entre 100 e 1000 eV na Figura 3.2, tomada da Ref. [41], o fluxo de pulverização catódica S que descreve o número médio de átomos extraídos por íon incidente, está entre 0.2 e 2 para a maioria dos materiais. A distribuição de energia dos átomos liberados do alvo têm um máximo que se encontra, na maioria dos casos, entre 10 e 40 eV, dependendo dos parâmetros do processo de pulverização catódica.

3.1.2 Sistema de Pulverização Catódica

Como já vimos, o processo de pulverização catódica depende da massa, da energia das partículas que atingem o alvo e das condições de UHV; para que se produza este processo necessitamos ionizar as moléculas do gás presente na câmara, isto é obtido iniciando uma descarga elétrica entre os eletrodos. No sistema, o cátodo (sobre o qual fica o alvo) está conectado a uma fonte de potência e o ânodo (onde fica o substrato e o aquecedor) está conectado à terra. Quando fornecemos energia ao cátodo, o gás se ioniza de tal forma que se produz uma descarga elétrica entre os eletrodos, produzindo o plasma que contém partículas tanto neutras como carregadas (íons positivos e negativos). O efeito magnetron, que resulta da combinação de um campo

magnético constante e um campo elétrico variável permite energizar as partículas e confina-las, aumentando o número de partículas por unidade de tempo que colidem com o alvo.

O sistema *magnetron sputtering DC* trabalha com uma pressão mínima de argônio de 2mTorr e trabalha sem dificuldades em pressões relativamente maiores (10-25 mTorr), as quais são recomendáveis para processos de limpeza dos alvos (*pre-sputtering*). No sistema *magnetron sputtering* apresentado na Figura 3.3 colocam-se ímãs permanentes abaixo do cátodo de tal forma que o campo magnético sobre a superfície deste eletrodo seja de alguns poucos Oersteds. A aplicação de um campo magnético transversal ao campo magnético gera as forças de Lorentz, que obrigam aos elétrons, no plasma, a ter órbitas em espiral e perpendiculares aos campos elétrico (E) e magnético (B). Assim, este campo magnético obriga os elétrons a confinar-se seguindo uma trajetória fechada sobre a superfície do alvo. Em cada momento os elétrons confinados no plasma atingem um alto grau de ionização próximo ao alvo. Devido à trajetória seguida pelos elétrons confinados, a erosão do alvo não é uniforme e têm a forma de um anel.

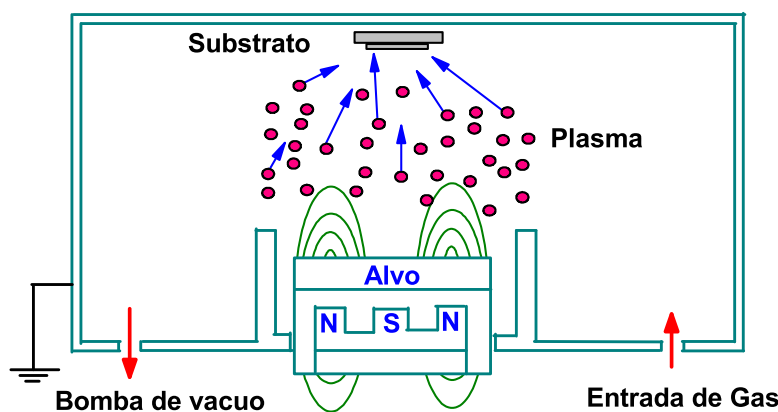


Figura 3.3: Sistema *Magnetron Sputtering*.

Existem várias geometrias de cátodo para gerar o efeito magnetron; os mais usados na prática são o de cátodo circular-planar o retangular-planar e o cilíndrico. Estes se fundamentam no mesmo efeito de confinamento de elétrons em uma trajetória fechada. Para cada uma das geometrias a direção de campo magnético B varia. Assim B é radial na geometria de cátodo planar e tangencial para o caso de cátodo cilíndrico. Dependendo da geometria do cátodo, a taxa de deposição vem dada pela seguinte expressão:

$$R = \frac{kW_o}{t} \quad (3.1)$$

onde k é uma constante, que para o sistema circular-planar é 1 e para o sistema cilíndrico é $k_o = \frac{r_c}{r_a}$, r_c é o raio do cátodo e r_a é o raio do ânodo. W_o é a média de partículas por unidade de área do cátodo e vem dada pela seguinte expressão:

$$W_o = \frac{j_+}{e} St \frac{A}{N} \quad (3.2)$$

onde j_+ é a densidade de corrente de ions incidentes sobre o cátodo, e é a carga do elétron, S é o rendimento do *sputtering*, t é o tempo do processo, A é a massa atômica do material alvo e N é o número de Avogadro.

Dentro das vantagens que apresenta o sistema *magnetron sputtering* quando comparado a outros sistemas de deposição de filmes (incluindo os outros tipos de *sputtering*) podemos dizer que fornece uma alta taxa de deposição devido ao confinamento do plasma e evita a remoção de átomos do substrato e das paredes da câmara. Materiais que têm um alto ponto de fusão e fortes ligações moleculares são difíceis de depositar por outros métodos. Por *magnetron sputtering* resultam relativamente fáceis e é possível obter filmes de alta qualidade oferecendo um nível baixo de impurezas e rapidez na deposição. Quanto as desvantagens temos o aproveitamento do material alvo reduzido, devido ao confinamento dos elétrons em uma região específica e em forma de anel. Para o caso de pulverização catódica DC, o material alvo deve ser de natureza condutora. Se utilizarmos um gás reativo para o crescimento de filmes semicondutores, a câmara e o alvo podem apresentar problemas de contaminação, o que afetará de diferentes formas o processo de crescimento dos filmes. O sistema magne-

tron quando operado em radio-freqüência (RF), além das vantagens referidas acima, oferece a possibilidade de crescer filmes a partir de alvos isolantes e semi-condutores.

3.1.3 Sistema *Magnetron Sputtering* do CBPF

Os filmes finos na forma de multi-camadas, desenvolvidas no presente trabalho, foram preparadas no sistema de pulverização catódica do Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas CBPF-MCT. Este sistema, modelo ATC-2400, construído conforme especificações do CBPF com base do sistema de pulverização catódica por magnetron do Prof. I. Schuller, Figura 3.4 [42], possui duas câmaras cilíndricas. A principal têm as seguintes dimensões: 750 mm de diâmetro por 350 mm de altura, no interior desta câmara estão instaladas cinco fontes magnetron dispostos circularmente na base da câmara (cada uma destas constam de um anel de gás, obturadores pneumáticos e chaminés de blindagem). Destas cinco fontes, três são para alvos de 50 mm de diâmetro e duas para alvos de 40 mm de diâmetro. Estes alvos, com diferentes espessuras, dependendo do fabricante, são colocados sobre os magnetrons, os quais estão ligados às fontes de energia. Dependendo do tipo de material do alvo, estas fontes podem ser de tipo DC ou RF. O sistema possui, atualmente, três fontes de potência DC e duas fontes de potência RF e permite a colocação de até cinco porta-substratos dentro da câmara principal. Estes são montados sobre uma base rotatória. Nesta mesma base rotatória encontra-se a caixa suporte, dentro da qual é inserido o porta-substrato para a deposição. Esta caixa possui também um sistema de resfriamento e aquecimento que permite variar a temperatura entre 5°C e 1000°C . A câmara principal também dispõe de uma célula de *Knudsen* para a deposição de filmes por evaporação térmica.

A câmara secundária ou ante-câmara, de 100 mm de diâmetro está acoplada à câmara principal através de uma válvula de ultra alto vácuo. A idéia de usar uma ante-câmara é a facilidade de colocar e retirar os porta-substratos da câmara principal sem quebrar o alto vácuo desta última. Ambas as câmaras têm sistemas de bombeamento independentes, assim o vácuo da câmara principal pode atingir o valor de 2×10^{-8} Torr e da ante-câmara de 2×10^{-7} Torr. O processo de *sputtering* é realizado em uma atmosfera de argônio de alta pureza com uma pressão que é controlada de acordo com taxa de deposição desejada, que também é função do material alvo. O

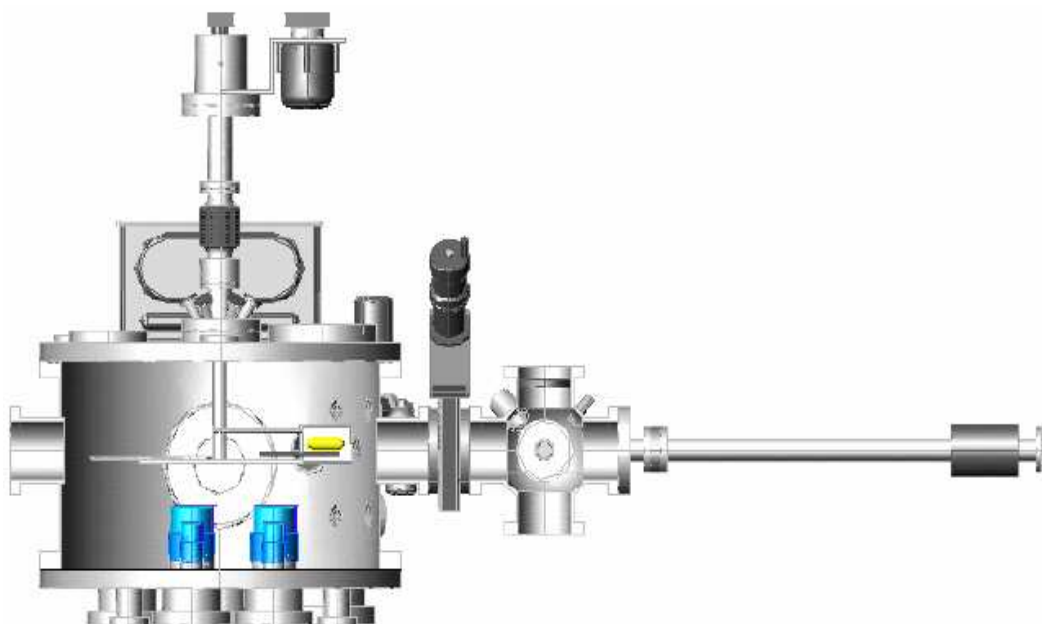


Figura 3.4: Esquema do sistema de pulverização catódica por magnetron do Laboratório de Filmes Finos - LFF do CBPF.

controle do posicionamento do porta-substrato inserido na caixa suporte, a sequência do processo de deposição, o acionamento da abertura e fechamento dos obturadores das fontes magnetrons, assim como o tempo de deposição, são controlados por um computador. Porém o controle da pressão de trabalho e o acionamento do plasma são manuais. Maiores detalhes sobre a montagem, estrutura e funcionamento podem ser encontrados nas referências [43, 44].

3.2 Caracterização Estrutural

As análises estruturais das amostras foram feitas pela técnica de difração de raios X, que é uma técnica não destrutiva e fornece informação estrutural na escala atômica. As medidas de difração de raios X foram realizadas no Laboratório de Cristalografia e Difração de Raios X do CBPF. Os principais equipamentos deste laboratório são: um gerador de raios X, da marca *Seifert* modelo ID-3000 e um difratômetro de alta resolução da marca *Zeiss* modelo HZG4.

O difratograma de raios X na geometria $\theta - 2\theta$ é comumente dividido em duas regiões: baixo ângulo que compreende a região $2\theta < 15^\circ$ e o alto ângulo na região $2\theta > 15^\circ$. A região de baixo ângulo é resultado do espalhamento proveniente da modulação química das camadas, enquanto a região de alto ângulo depende do comprimento de coerência estrutural normal das camadas [45].

3.2.1 Difração de Raios X em Baixos Ângulos

As medidas de reflectividade servem para determinar a espessura, a rugosidade e o grau de interdifusão atômica dos filmes finos. Assim, quando trabalhamos em difração com ângulos de incidência baixos, os efeitos de refração tornam-se importantes. O índice de refração para um material, vem dado pela seguinte relação [46]:

$$\eta = 1 - \delta - i\beta < 1 \quad (3.3)$$

onde, δ representa a parte real e β a parte imaginária da absorção do material, conhecidas como:

$$\delta = \frac{e^2 \lambda N}{2\pi m c^2} (Z + \Delta f') \quad (3.4)$$

$$\beta = \frac{e^2 \lambda N}{2\pi m c^2} \Delta f'' \quad (3.5)$$

Na equação [3.5], $\frac{e^2}{m c^2} = 2,82 \times 10^{-15}$ m é o raio clássico do elétron, λ é o comprimento de onda da radiação utilizada, N o número total de átomos de carga Z por unidade de volume, sendo assim, Z é o número de carga eletrônica. f' e f'' , as correções de dispersão do espalhamento.

Das lei da ótica, temos:

$$\text{sen}\omega_i = \eta \text{sen}\omega_r \quad (3.6)$$

$$\text{cos}\omega_i = \eta \text{cos}\omega_t \quad (3.7)$$

onde ω_i, ω_r e ω_t são os ângulos incidente, refletido e transmitido, respectivamente. Podemos expandir o termo cosseno em série de Taylor até segunda ordem (isto para ângulos pequenos), na equação [3.3], o ângulo transmitido ω_t será igual a:

$$\omega_t = \sqrt{\omega_i^2 - 2\delta} \quad (3.8)$$

pois $\beta = 0$ considerando que na amostra não haja absorção de raios X e o termo $2\omega_t^2$ é praticamente desprezível. Na condição de reflexão total ($\omega_t = 0$), o ângulo incidente ω_i é muito pequeno e é conhecido como ângulo crítico (por exemplo, para o Si $\omega_i = 0,23^\circ$). Então a equação [3.8] fica:

$$\omega_i = \omega_c = \sqrt{2\delta} \quad (3.9)$$

Quando o ângulo de incidência do feixe de raios X na amostra é maior do que o ângulo crítico, $\omega_i > \omega_c$, boa parte do feixe incidente é refratada no material e uma pequena parte é refletida especularmente. Se a amostra analisada é um filme fino depositado sobre um substrato, o feixe de raios X refletido pelo filme ou pela interface filme/substrato poderá apresentar uma interferência construtiva ou destrutiva na intensidade, como mostra a Figura 3.5. Logo, a diferença de caminho entre o feixe refletido e transmitido determina o padrão de interferência dos dois feixes.

Quando o ângulo de incidência ω_i do feixe de raios X incidente excede o ângulo crítico ω_c , a reflectividade mostrará oscilações como função de ω_i devido às interferências das ondas refletidas na superfície do filme e aquelas refletidas na interface. Esta interferência aparece como uma série de franjas na curva de reflectividade, cujas estruturas, que são sensíveis à fase, são ressonâncias geométricas ou interferências de Fabry-Perot. O espaçamento angular entre os máximos da franja, ω_m , foi medido pela primeira vez por Kiessig e forneceu a espessura do filme fino analisado. Agora, usando a Figura 3.5, quando $\eta_2 < \eta_3$ a espessura t é relacionada com a posição angular dos máximos ω_m por:

$$\frac{1}{2}(2m+1)\lambda = 2t\sqrt{\omega_m^2 - \omega_c^2}, \quad (3.10)$$

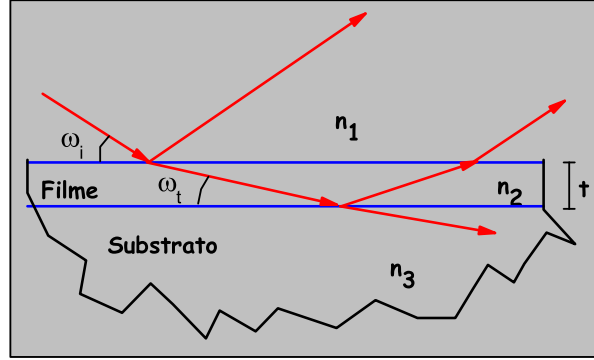


Figura 3.5: Reflexão de raios X em incidência rasante em um filme de espessura t com índice de refração n_2 depositado sobre um substrato com índice de refração n_3 , ($n_2 < n_3$). O feixe incidente é parcialmente transmitido para a interface filme/substrato.

onde m é um número inteiro e λ o comprimento de onda da radiação incidente. Isto leva a uma relação linear para o gráfico ω_m^2 versus $(m + 1/2)^2$. As oscilações no perfil da refletividade resultam da espessura da amostra e as amplitudes dessas oscilações dependem do contraste em ambas as interfaces, que é a diferença no termo dispersivo δ da equação [3.5], na interface filme/substrato. Assim, quanto maior a diferença entre os índices de refração nas duas interfaces, mais pronunciadas serão as oscilações.

A rugosidade interfacial das multicamadas é diretamente proporcional à declividade da curva de refletividade. Supondo que a rugosidade da interface $Q(z)$ possa ser descrita por uma função gaussiana, a função densidade de probabilidade em termos da posição na interface é [47]:

$$Q(z) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{z^2}{2\sigma_y^2}\right) \quad (3.11)$$

onde z é a posição na interface e σ é o desvio médio padrão ou rugosidade média quadrática. Experimentalmente, um dos parâmetros que geralmente é extraído das medidas de reflectividade é a rugosidade média. É importante salientar que um simples número (σ) pode fornecer somente uma descrição incompleta da rugosidade

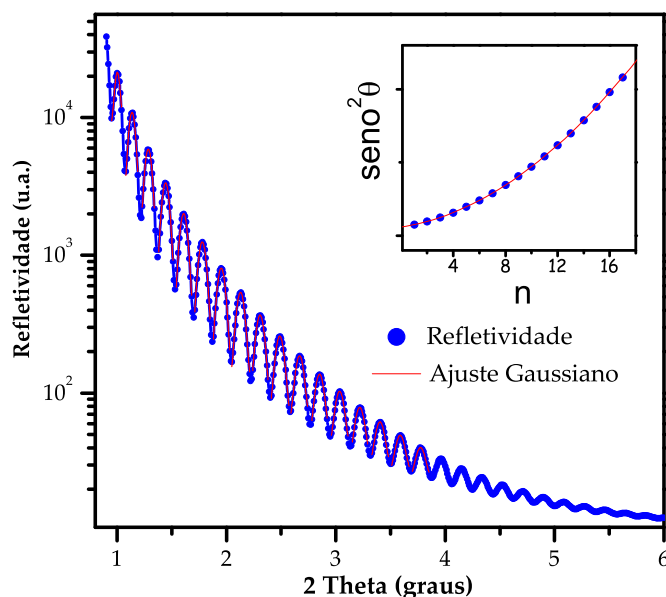


Figura 3.6: Curva de reflectividade de um filme fino puro de Cu depositado sobre um substrato de silício. O gráfico inserido mostra a ordem dos picos n versus $\text{sen}^2\theta$, onde os pontos foram extraídos da curva de refletividade e a linha cheia é um ajuste obtido com a Equação [3.10].

da superfície ou interface. A presença de irregularidades na superfície, como por exemplo, ondulações, depressões e outros defeitos, não podem ser revelados pelo valor de σ . No entanto, estas propriedades são importantes para descrever o estado de uma superfície ou de uma interface. Além disso, baixos valores de σ podem estar escondendo a presença de riscos profundos que logo podem causar descontinuidades nos filmes subsequentes a serem depositados. Nesse contexto, é importante o uso de técnicas complementares como a microscopia eletrônica de transmissão de alta resolução (HRTEM) e a microscopia de força atômica que servem para verificar a presença de alguns defeitos.

3.2.2 Difração de Raios X em Altos Ângulos

A técnica de difração de raios X em alto ângulo é baseado no espalhamento de raios X pela interação de átomos com os materiais que se encontram em diferentes planos cristalinos. A formação dos picos de difração segue a lei de Brag, que expressa de forma matemática a condição que deve existir entre o ângulo de incidência da radiação θ e a distância d entre os planos atômicos adjacentes para ter interferência construtiva das ondas espalhadas, Figura [3.7].

$$n\lambda = 2d\sin\theta \quad (3.12)$$

onde λ é o comprimento de onda dos raios X incidentes e n é um número inteiro conhecido como a ordem de reflexão. Nesta equação podemos observar que para a difração construtiva entre planos cristalinos adjacentes possa acontecer, a diferença no caminho ótico Λ entre ambas as ondas deve ser exatamente $\Lambda = \lambda$. Isso acontece quando o ângulo de incidência do feixe de raios X é exatamente θ e nessa condição os feixes refletidos por todos os planos paralelos que compõem o cristal estão exatamente

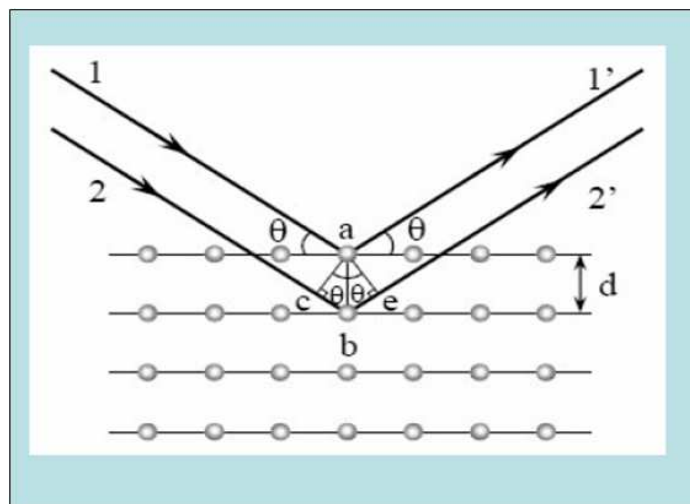


Figura 3.7: Condição para a difração de Bragg numa família de planos separados de uma mesma distância d .

em fase. Na medida em que o cristal é levemente girado em relação ao feixe incidente, o ângulo sai da condição de Brag e a diferença de caminho ótico entre planos adjacentes não é mais λ . Por exemplo, supondo que λ seja $1,01\lambda$, então a diferença de caminho ótico entre um dos feixes refletidos e outro refletido por um plano que se encontra N períodos mais profundo dentro do cristal será N vezes maior, ou seja, $\Lambda = 1,01N\lambda$. Considerando o caso para $N = 50$, a diferença de caminho ótico entre ambos os feixes será $\Lambda = 50,5\lambda$ ou $101\lambda/2$. Como Λ corresponde exatamente a um número inteiro de vezes $\lambda/2$, então a diferença entre ambos feixes será exatamente destrutiva. Em um cristal infinitamente grande, para cada plano sempre haverá um outro 50 períodos mais profundo e então os feixes refletidos nos mesmos farão interferência destrutiva. Por esse motivo, em cristais únicos de tamanho macroscópico a interferência construtiva é destruída imediatamente quando o ângulo sai da condição de Brag e os picos de difração são extremamente finos. No entanto, quando o cristal é pequeno, como acontece em materiais nano-cristalinos, os planos profundos não são mais disponíveis e então a condição de interferência destrutiva com ondas espalhadas por planos profundos não acontece. Assim, nos materiais nano-cristalinos observa-se um alargamento dos picos de difração conforme o tamanho de grão meio, D , diminui. A largura dos picos, B , pode ser relacionada com D através da equação de Scherrer [48], a qual é válida para grãos de tamanho sub-micro-métricos.

$$D = \frac{0,9\lambda}{B\cos\theta} \quad (3.13)$$

onde θ é o ângulo de difração λ é o comprimento de onda da radiação incidente.

3.3 Caracterização Magnética

O uso de equipamentos para medidas magnéticas de alta sensibilidade torna-se um ponto importante para a caracterização magnética quando trabalhamos com sistemas de baixas dimensões, por exemplo, nano-estruturas, seja em forma de multicamadas ou filmes finos. Nesta seção faremos uma descrição dos fundamentos físicos básicos do seu funcionamento.

As medidas de magnetização foram feitas num magnetômetro do tipo SQUID⁸ *Quantum Design* MPMS⁹ modelo MPMS-XL5. O MPMS é um sofisticado instrumento analítico configurado especificamente para o estudo da magnetização (M) e suscetibilidade (χ) de pequenas amostras experimentais sobre uma ampla região de temperaturas (1,9 até 400 K) e campos magnéticos altos ($\pm 5T$), com uma sensibilidade da ordem de 10^{-7} emu a $2T$.

3.3.1 Descrição Experimental

O magnetômetro do tipo SQUID é uma mistura de uniões supercondutoras que permitem detectar campos magnéticos tão minúsculos que podem chegar a ser da ordem de um quanto de fluxo magnético. Estes magnetômetros constam de um sensor SQUID para a medição dos momentos magnéticos em diferentes condições experimentais (temperatura, frequência, etc.), nos quais se deduzem tanto M como χ .

O dispositivo SQUID apresenta um anel supercondutor fechado, com uma (SQUID RF) ou duas (SQUID DC) junções Josephson. Seu funcionamento é baseado no efeito Josephson e na quantização do fluxo magnético em um circuito supercondutor fechado. A união Josephson trata-se de um sistema que funciona em devido ao tunelamento dos pares de Cooper, o qual é sensível a mudanças de estado no transcurso de uns poucos pico-segundos e pelo qual é ótimo para a observação direta dos efeitos eletrodinâmicos quânticos. Neste caso, esta união serve como padrão primário de calibração da voltagem, cuja origem encontra-se na quantização do fluxo magnético no interior do anel supercondutor. Este *quanto*, recebe o nome de fluxo e é definido como $\phi_0 = h/2e = 2,07 \times 10^{-7} \text{ Wb}$.

⁸Das siglas do inglês *Superconducting Quantum Interference Device*

⁹Das siglas do inglês *Magnetic Property Measurement System*

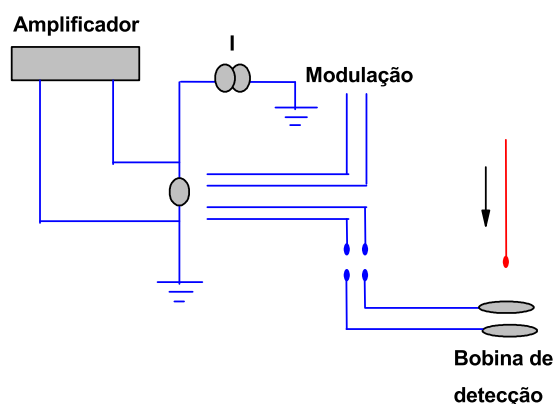


Figura 3.8: Diagrama simplificado de um SQUID-DC.

O sistema MPMS-SQUID apresenta um conjunto de anéis detetores SQUID enlaçados com um sensor SQUID por meio de uma série de conexões supercondutoras entre as quais se encontra um transformador para a redução do ruído e uma bobina de entrada de sinal para que a corrente procedente dos anéis detetores se acople indutivamente ao sensor SQUID. Na continuação encontra-se uma bobina que registra o sinal de rádio-freqüência de saída do sensor SQUID e a transmite a um amplificador de freqüência para re-converter este sinal em uma voltagem analógica proporcional à intensidade de corrente circulante na bobina de entrada do SQUID. A amostra comumente se mede exercendo um movimento repetitivo desta para cima ao longo de certa distância e posteriormente lendo a voltagem de saída do detector SQUID. Se a voltagem do SQUID apresenta um número suficiente de dados pontuais, ela pode ser representada graficamente como uma função da posição da amostra. Uma seqüência em série de tais dados denomina-se varredura. Esta situação encontra-se ilustrada na Figura 3.9, onde a forma correspondente à curva do gráfico é uma função da geometria dos anéis de detecção usadas no sistema MPMS.

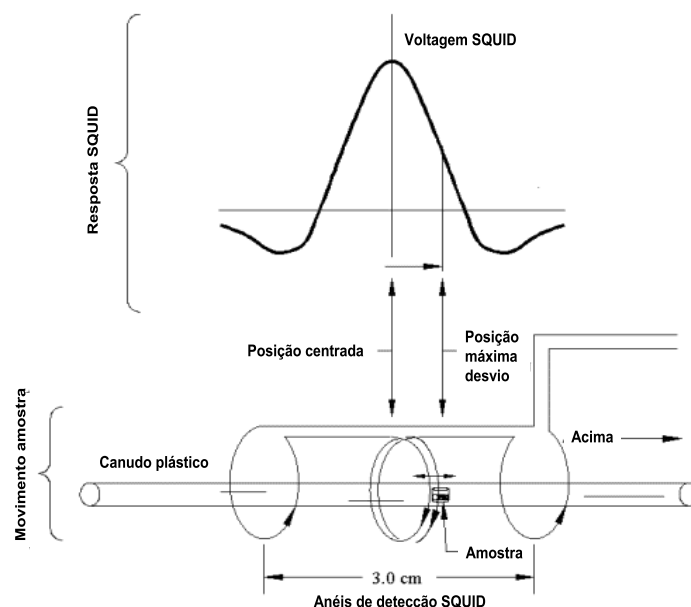


Figura 3.9: Resposta do sistema MPMS a uma fonte de dipolo.

3.4 Espectroscopia de Absorção de Raios X

Descreveremos nesta seção os fundamentos da técnica de absorção de raios X (XAS) e o dicroísmo circular magnético de raios X utilizando luz síncrotron, e como, a partir do estudo detalhado deste fenômeno, é possível obter uma série de informações importantes sobre a estrutura da matéria, sobre sua estrutura eletrônica e, principalmente, sobre suas propriedades magnéticas.

3.4.1 Absorção de Raios X

Um fóton pode ser absorvido ou espalhado por um átomo devido a diferentes processos, entre eles o efeito Compton, o efeito fotoelétrico, a formação de pares elétron-positron, etc. Cada um destes processos têm uma probabilidade de ocorrer, dependendo tanto do material absorvedor, como da energia do fóton incidente. Na região de raios X duros ($E > 1\text{KeV}$), o processo comum é o efeito fotoelétrico, enquanto o efeito Compton e a criação de pares passa a ser mais relevante para energias muito maiores ($E < 1\text{MeV}$).

O processo de absorção de raios X ocorre devido à absorção de um fóton por um átomo quando possui energia suficiente para promover elétrons desse átomo para níveis superiores de energia desocupados ou para o contínuo de energias. Para casos em que o elétron é arrancado do átomo, a energia cinética do mesmo é determinada pela diferença entre a energia do fóton absorvido e a energia de ligação desse elétron ao átomo e, portanto, é uma característica de cada elemento químico.

Quando um feixe de raios X monocromático incide sobre uma amostra de espessura t , a intensidade I , transmitida através do material, está relacionada ao coeficiente de absorção μ , pela seguinte equação:

$$I = I_0 e^{-\mu t} \quad (3.14)$$

onde I_0 é a intensidade do fóton incidente. O coeficiente de absorção depende do material que se analisa e é função da energia. O produto μt é denominado absorvância e decresce monotonicamente com o aumento da energia.

É fácil visualizar a absorção de raios X, considerando a aproximação de um elétron: a absorção é vista com um único fóton sendo absorvido por um único elétron, que por sua vez é excitado a um nível atômico de energia mais alto. O gráfico que relaciona a absorvância de um material com a energia é chamado de espectro de absorção.

Quando a energia do fóton incidente é suficiente para excitar um elétron dos níveis profundos do átomo (níveis K ou L , no caso de raios X) a absorção aumenta e observamos um salto no espectro de dispersão, conforme mostrado na Figura 3.10. Esse salto é chamado de borda de absorção e a energia onde ocorre depende da energia de ligação dos elétrons de nível profundo e, portanto, é uma característica de cada elemento químico. No caso de átomos isolados, para energias superiores à borda de absorção, o espectro continua em um decréscimo monotônico até a borda de absorção seguinte.

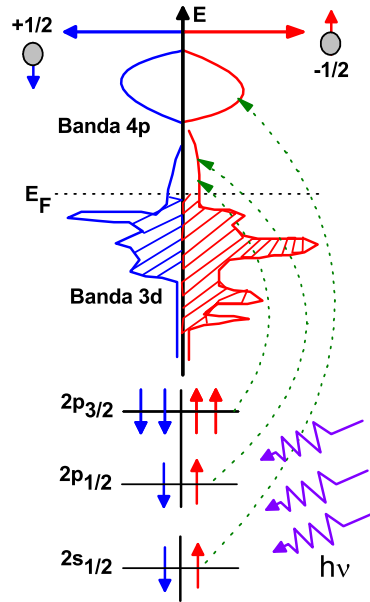


Figura 3.10: Diagrama de absorção de raios X por um átomo. Neste caso representamos um nível $3d$ hipotético. A densidade de estados está representada em função da energia e está dividida em elétrons com spin para acima ($+1/2$) e spin para abaixo ($-1/2$). A excitação de elétrons de diferentes níveis dá origem às diferentes bordas de absorção.

3.4.2 Dicroísmo Circular Magnético de Raios X

Nesta parte descreveremos os princípios físicos básicos do dicroísmo circular magnético de raios X (XMCD) e sua potencialidade no estudo das propriedades da matéria. O XMCD define-se como a diferença dos coeficientes de absorção μ^+ e μ^- de raios X circularmente polarizados à direita e à esquerda, respectivamente, na presença de um campo magnético estático aplicado na direção do vetor de onda do fóton incidente no material absorvedor. Essa técnica, tornou-se uma ferramenta importante para o estudo das propriedades magnéticas de filmes finos e multicamadas formadas com metais de transição. Através da aplicação das regras de soma [49, 50], pode-se determinar quantitativamente os valores dos momentos magnéticos tanto orbital (m_{orb}) como de spin (m_{spin}) e a anisotropia de cada elemento presente na amostra. Além disso, o XMCD possui uma alta sensibilidade química que é da ordem de monocamadas [51].

As propriedades dos elétrons $3d$ são mais facilmente evidenciadas através de excitações de elétrons do sub-nível $2p$ para estados não preenchidos do sub-nível $3d$. Em princípio, o espectro de absorção de raios X na borda L contém contribuições das transições $p \rightarrow d$ e $s \rightarrow p$, mas as transições $p \rightarrow d$ são 20 vezes mais intensas do que a transição $s \rightarrow p$ [52]. A origem do XMCD é melhor entendida se assumirmos que a banda $3d$ têm somente momento de spin. Para medir a diferença no número de buracos $3d$, com spin para cima e spin para baixo, é necessário fazer processos de absorção de raios X circularmente polarizados dependentes do spin. Como os fotoelétrons de spin para cima (para baixo) dos estados de caroço $2p$ podem ser excitados somente para preencher buracos $3d$ de spin para cima (para baixo), então pode-se excitar preferencialmente fotoelétrons de spin para cima numa medida e fotoelétrons de spin para baixo em outra medida. Assim, a diferença destas duas intensidades, chamada XMCD, refletirá simplesmente na diferença entre o número de buracos de spin para cima e spin para baixo da banda $3d$. Isto é, o momento de spin, de acordo com a equação $m_s = (n^\uparrow - n^\downarrow)\mu_B$, como será descrito no modelo de dois passos [53], detalhado na seção seguinte.

Modelo de dois passos

A origem do XMCD, pode ser melhor explicada pelo modelo qualitativo de dois passos, assim o XMCD nas bordas $L_{2,3}$ dos metais de transição $3d$ se originam devido à interação spin-órbita no estado de caroço $2p$ e à interação de troca na banda de valência $3d$.

Primeiro Passo: acontece o processo de absorção, assume-se que o vetor magnetização M e o vetor de onda k do fóton incidente são colineares. O raio X polarizado circularmente têm seu spin paralelo $+\hbar$ (spin para cima) ou antiparalelo $-\hbar$ (spin para baixo) em relação ao vetor M . Um fóton polarizado circularmente excita e polariza um elétron de caroço desde a camada p ; ele ganha polarização de spin na interação e pode-se dizer, que o fóton transfere seu momento angular, $\pm\hbar$ ao fotoelétron excitado. Como o estado $2p$ é dividido pela interação spin-órbita em dois sub-níveis $2p_{3/2}$ (borda L_3) e $2p_{1/2}$ (borda L_2), o momento angular do fóton é transferido a ambos os graus de liberdade spin e orbital do elétron excitado. Nessa primeira fase,

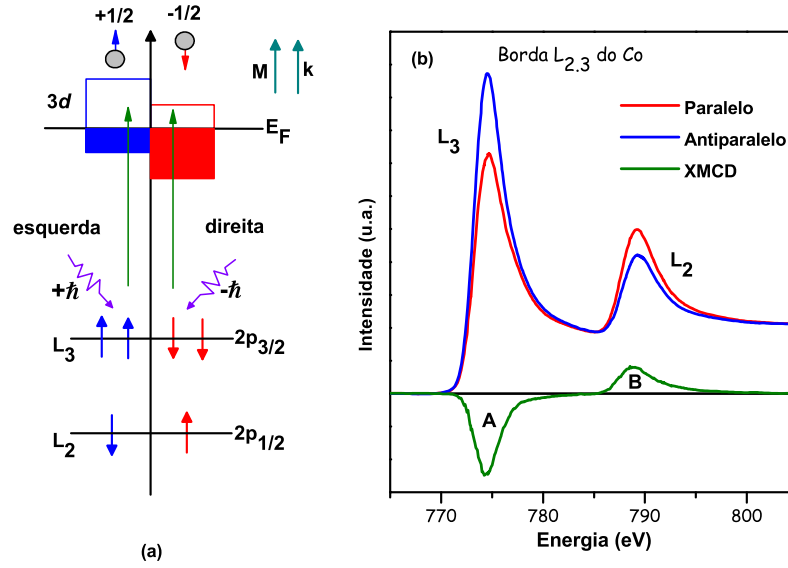


Figura 3.11: (a) Esquema ilustrativo do modelo de dois passos para os metais de transição $3d$. (b) Espectro de absorção de raios X com luz circularmente polarizada à esquerda e à direita e o espectro XMCD.

a absorção do fóton pelo elétron pode ser vista como uma fonte de elétrons com spins polarizados. Como vimos anteriormente, no modelo de Stoner para o FM, existe uma assimetria no número de estados com spin para cima e spin para baixo e a interação de troca origina uma diferença de energia entre as duas bandas, gerando um momento magnético resultante.

Segundo Passo: Os fotoelétrons excitados com spin para cima (para baixo) ocupam os estados vazios das sub-bandas d de spin para cima (para baixo) como visto na Figura 3.11-(a). Quer dizer, as sub-bandas de energia da banda de valência $3d$ funcionam como detetores de spin dos fotoelétrons excitados. O eixo de quantização do detector é dado pela direção de magnetização M , que para um efeito dicróico máximo, deve estar alinhado com a direção do spin do fóton incidente. Devido à conservação do spin, os fotoelétrons excitados do sub-nível $2p_{3/2}$ ($2p_{1/2}$) por fótons com momento angular $+\hbar$ ocupam principalmente estados vazios de spin para cima (para baixo) acima do nível de Fermi. Assim, a intensidade de absorção de raios X circularmente polarizados à esquerda será aumentada na borda L_3 e reduzida na

borda L_2 . Esse efeito é oposto para o fóton circularmente polarizado à direita, já que os fótons incidentes têm momento angular $-\hbar$. A diferença entre estas duas intensidades é o que se define como XMCD. Num espectro típico de XMCD, para um material FM, as áreas representadas por A (borda L_3) e B (borda L_2), como na Figura [3.11-b] têm sinais opostos, refletindo o acoplamento spin-órbita oposto relativo aos sub-níveis $2p_{3/2}$ ($2p_{1/2}$).

Uma forma equivalente à explicada acima de obter um espectro XMCD é fixar um dos estados de polarização dos fótons e tomar dois espectros de absorção, sendo um com a direção da magnetização da amostra paralela à direção do vetor de onda do fóton incidente e a outra com a magnetização no sentido oposto. Assim, o espectro dicróico é a diferença dos espectros de absorção medidos nessas condições.

Regras de soma

As regras de soma, com algumas aproximações, relacionam quantitativamente o valor do sinal das áreas integradas do espectro do XMCD ao valor no estado fundamental do operador magnético de spin S_z e orbital L_z , projetados sobre o eixo de quantização.

De acordo com Thole [49], a primeira regra de soma está relacionada ao momento orbital, está associada à área sobre a curva XMCD na borda de um nível fundamental com o valor médio por elétron do operador momento orbital L_z da camada de valência, segundo a expressão:

$$\langle L_z \rangle = \frac{2l(l+1)(4l+2-n_h)}{l(l+1)+2-c(c+1)} \times \frac{\sigma_{tot}^+ - \sigma_{tot}^-}{\sigma_{tot}^+ + \sigma_{tot}^- + \sigma_{tot}^o}, \quad (3.15)$$

onde l é o número quântico principal do estado final no processo de absorção, c é do caroço, n_h é o número de vacâncias na banda de valência (isto é a banda que recebe o fotoelétrão) e σ_{tot}^+ , σ_{tot}^- e σ_{tot}^o são as integrais dos espectros de absorção para a luz circularmente polarizada à esquerda, à direita e linearmente polarizada, respectivamente.

Entretanto, a regra de soma para o momento de spin, fundamenta-se na separação num nível profundo por efeito do acoplamento spin-órbita. Esta regra fornece um resultado que é uma combinação linear dos valores médios do operador de momento

de spin S_z e do operador de dipolo magnético T_z . Esta regra de soma têm uma expressão complexa, já que envolve algumas aproximações adicionais. De acordo com Carra, [50], a expressão completa para a regra de soma de spin, é a seguinte:

$$\langle S_Z \rangle = \frac{3c(4l+2-n_h)}{l(l+1)-2-c(c+1)} \times \frac{\sigma_{j+}^+ - \sigma_{j+}^- - \frac{c+1}{c}(\sigma_{j-}^+ - \sigma_{j-}^-)}{\sigma_{tot}^+ + \sigma_{tot}^- - \sigma_{tot}^0} - \frac{l(l+1)[l(l+1)+2c(c+1)+4] - 3(c-1)^2(c+2)^2}{6lc(l+1)(4l+2-n_h)} \langle T_Z \rangle, \quad (3.16)$$

onde σ_{j+} e σ_{j-} são as seções de choque parciais para os estados finais $c+1/2$ e $(c-1/2)$ que correspondem às bordas L_3 e L_2 , respectivamente, e $\langle T_Z \rangle$ é o valor esperado do operador momento magnético dipolar. O momento dipolar é diferente de zero para estruturas com bandas de energia de ligação anisotrópicas e indica que o número de spins na célula unitária difere para diferentes direções cristalográficas. Para a validade da varredura angular é necessário que a amostra esteja magneticamente saturada em todas as direções. Na prática, o melhor é que as medidas sejam efetuadas em campos magnéticos muito intensos. O termo que inclui $\langle T_Z \rangle$ pode ser desprezível para átomos em amostras sólidas, mas resulta relevante para superfícies e interfaces, como pode ser visto na Tabela 3.1, [54].

Átomo	Superfície	Volume
Fe (001)	0,23 μ_B	0,028 μ_B
Co (0001)	0,24 μ_B	0,014 μ_B
Ni (001)	-0,082 μ_B	-0,027 μ_B

Tabela 3.1: Valores do operador dipolar magnético $7\langle T_Z \rangle$ para um átomo de Fe(001), Co(0001) e Ni(001), na superfície e no volume do sólido, calculados a partir de análises de estrutura eletrônica.

Validade das regras de soma

As regras de soma foram desenvolvidas baseadas em um modelo de um único ion com várias aproximações [49, 50]. Através do estudo detalhado do cálculo de estrutura de bandas eletrônicas, foi mostrado que a regra de soma orbital é válida dentro de uma incerteza de 10% e a incerteza da regra de soma de spin é de 40% para o Ni(001), 20% para o Co(0001) e 15% para o Fe(001) [54]. Isto ocorre essencialmente devido à dificuldade de determinar o número de buracos apropriados a partir da seção transversal de absorção isotrópica que é afetada pela hibridização entre as camadas, à dependência energética dos elementos de matriz radial e o ponto de corte para calcular as áreas A e B , de acordo com a Figura [3.11-b].

Descrição da linha SGM

As medidas de XMCD foram realizadas no Laboratório Nacional de Luz Síncrotron (LNLS), a qual é uma fonte de radiação de segunda geração e é composta de um anel de armazenamento que pode atingir uma energia máxima de 1,37 GeV. Contem 12 dipolos que garantem a órbita fechada dos elétrons. Na atualidade, o LNLS têm 11 linhas de luz ativas de um total previsto de 24 linhas.

A linha de luz D08A-SGM foi usada para realizar as medidas de dicroísmo circular magnético, a qual possui as seguintes componentes, uma fenda horizontal (HFM), uma fenda transversal (TFM) e um monocromador de grade esférica (SGM) que opera na faixa de energia de 250 a 1KeV, faixa de energia que inclui a radiação ultravioleta de vácuo e os raios X moles, que é ideal para fazer pesquisas relacionadas às propriedades magnéticas da matéria. Devido à natureza da radiação que se usa nesta linha, são necessárias condições de ultra alto vácuo, já que a estação experimental está diretamente conectada com o anel principal, Figura [3.12].

A câmara de dicroísmo têm como componentes básicos um sistema porta-amostra, um manipulador de precisão para o alinhamento da amostra com o feixe, um monocromador que permite escolher a frequência da luz síncrotron a ser utilizada, um canhão de Ar para limpar a superfície ou remover material das amostras mediante bombardeio com íons de Ar controlados por uma fonte de tensão. A luz branca pro-

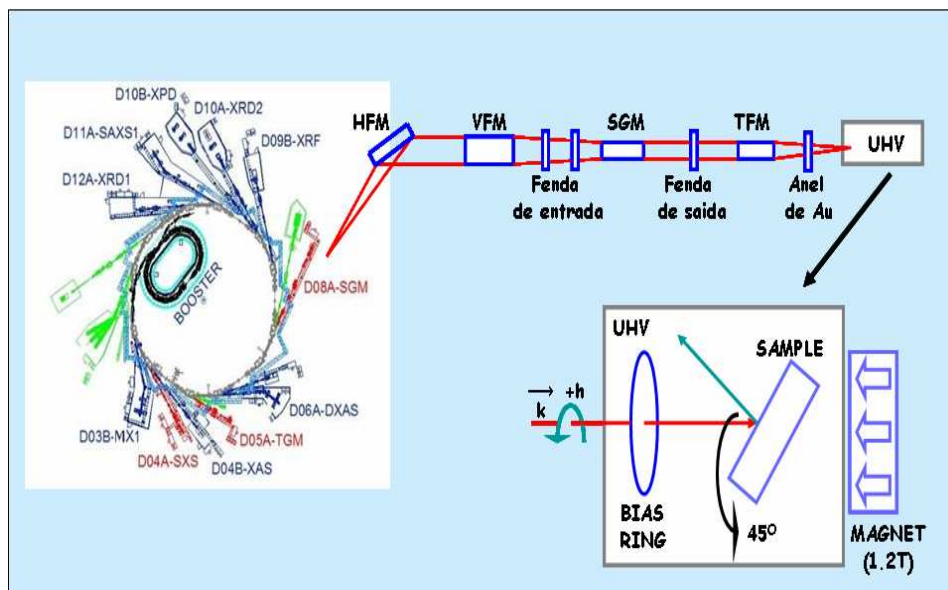


Figura 3.12: Esquema ilustrativo das principais componentes da linha de luz D08A-SGM no LNLS.

veniente do anel atravessa uma fenda vertical (VFM) automatizada com um motor de passo, logo a radiação atravessa uma fina telinha de ouro onde mede-se o fluxo de entrada e, finalmente, a radiação entra na câmara onde está localizada a amostra. Na frente da amostra é posicionado um anel metálico, mantido a um potencial de +400 V, que gera um campo elétrico a fim de coletar os elétrons ejetados e evitar a reabsorção. Um ímã permanente dentro da câmara fica posicionado atrás da amostra e fornece um campo de 2KOe. Este ímã pode ser girado de modo a orientar o campo em forma paralela ou antiparalela ao vetor de onda da radiação incidente.

Para as medidas de XMCD, as amostras foram posicionadas formando um ângulo de 45° entre a normal ao plano do filme e a direção de propagação dos fótons. O método de detecção do sinal de absorção dos raios X foi medir a foto-corrente elétrica, também conhecida como TEY¹⁰. O feixe de raio X que atinge a amostra é linearmente polarizado quando observado no plano da órbita, com o ajuste da fenda¹¹ vertical automatizada e sincronizada com o motor de passo, é possível selecionar

¹⁰Do inglês *Total electron yield*

¹¹Esta linha de luz contém duas fendas manuais, uma de entrada e de saída que estão separadas pelo monocromador de grade esférica. Estas fendas selecionam a quantidade de feixe que vai atingir na amostra.

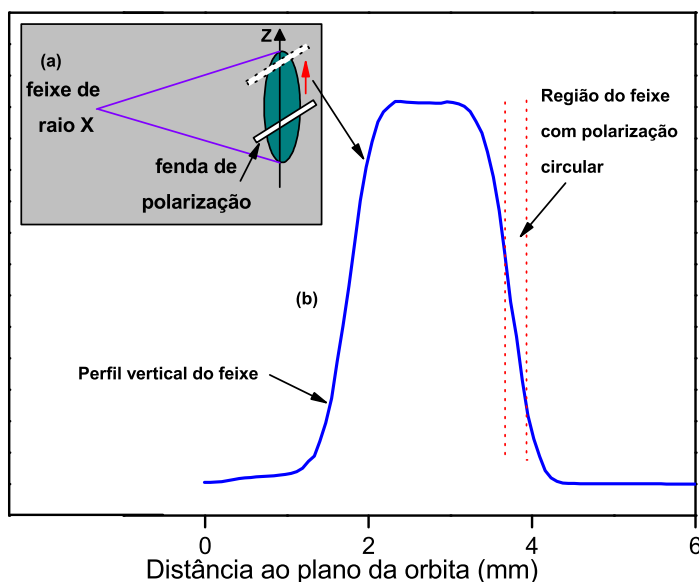


Figura 3.13: Processo de localização da polarização circular, (a) varredura vertical da fenda e (b) varredura do perfil vertical da fenda.

uma região do feixe que forneça um alto grau de polarização circular. Para determinar esta região, o procedimento consiste em fazer uma varredura do perfil vertical do feixe, movendo a fenda por toda a extensão vertical do feixe, Figura [3.13-a], resultando na curva mostrada na Figura [3.13-b]. Logo, localizamos o ponto de máxima intensidade, que corresponde ao plano da órbita. A partir da localização da posição deste plano, é escolhida uma região (acostuma-se escolher a terceira parte da intensidade máxima) afastada do plano, onde a radiação é circularmente polarizada e, pelo trabalho rotineiro, a fenda é afastada 1,3 mm abaixo do plano da órbita.

Logo que a região com polarização é localizada, surge a pergunta sobre qual é o grau de polarização desta radiação. Para calcular este valor utilizam-se amostras padrões, no nosso caso utilizamos filmes puros de Co, Fe e Ni, cujos valores dos momentos magnéticos são bem conhecidos na literatura.

Normalização dos espectros de absorção

O primeiro passo é obter os espectros experimentais de absorção de raios X com uma polarização circular fixa e mudando a orientação do campo magnético aplicado, seja paralelo ou antiparalelo ao vetor de onda do fóton incidente. Para isso, faz-se necessário adquirir espectros desde 30 eV antes da borda L_3 e 30 eV depois da borda L_2 . O processo de normalização dos espectros leva em conta a diminuição da energia e permite minimizar os efeitos de instabilidade do feixe. Assim, a presença de uma fina tela de ouro anterior à amostra nos permite acompanhar as oscilações e a diminuição temporal da corrente em cada espectro medido e é praticamente transparente à radiação nas faixas de energia utilizadas neste trabalho, possuindo apenas a absorção do contínuo.

A normalização é feita dividindo a intensidade absorvida na amostra pela intensidade absorvida na tela de ouro. Alguns problemas surgem devido a efeitos de fuga de corrente, isolamento elétrico, instabilidade do feixe, etc, o que origina um descasamento dos dois espectros nas regiões de pré-borda e pós-borda da absorção. Para suprimir este problema utilizamos um método de multiplicar um dos espectros de absorção por um número, perto da unidade, até que houvesse um casamento dos espectros nas regiões pré-borda e pós-borda. Após o processo de normalização, o sinal dicróico é obtido através da diferença destes dois espectros, mediante à relação seguinte:

$$\Delta\sigma(E) = \sigma_{tot}^+(E) - \sigma_{tot}^-(E) \quad (3.17)$$

É necessário também extrair uma média dos espectros de absorção para formar um espectro de absorção isotrópica, $\sigma^\circ(E)$:

$$\sigma^\circ(E) = \frac{1}{2}(\sigma_{tot}^+(E) + \sigma_{tot}^-(E)) \quad (3.18)$$

Pode-se dizer que o espectro isotrópico é equivalente a um espectro obtido com luz linearmente polarizada. Já que para amostras cristalinas a seção transversal de absorção isotrópica é normalizada para luz linearmente polarizada, $\sigma^\circ(E)$ é aproximada-

mente igual à média entre as seções transversais normalizadas para luz circularmente polarizada à esquerda e à direita [55].

Aplicando as regras de soma nas bordas $L_{2,3}$ para o caso dos metais de transição, onde $l = 2$ e $c = 1$ e substituindo estes valores na equação [4.15] e [4.16], temos o seguinte resultado:

$$\langle L_z \rangle = 2(10 - n_h) \times \frac{\sigma_{tot}^+ - \sigma_{tot}^-}{\sigma_{tot}^+ + \sigma_{tot}^- - \sigma_{tot}^o} \quad (3.19)$$

$$\langle S_z \rangle = \frac{3(10 - n_h)}{2} \times \frac{\sigma_{j+}^+ - \sigma_{j+}^- - 2(\sigma_{j-}^+ - \sigma_{j-}^-)}{\sigma_{tot}^+ + \sigma_{tot}^- - \sigma_{tot}^o} - \frac{7}{2} \langle T_z \rangle \quad (3.20)$$

Um fator que gera erros nos resultados obtidos é o número de buracos na banda $3d$. O valor de n_h é uma quantidade que pode apresentar grande margem de incerteza e não se têm um procedimento apropriado para o cálculo da integral de normalização que aparece no denominador (no caso principal que se refere à separação das bordas L_2 e L_3 e na retirada da parte contínua do espectro de absorção). Estes problemas, em parte, podem ser eliminados se, ao invés de calcularmos $\langle L_z \rangle$ e $\langle S_z \rangle$ separadamente, calcularmos a razão entre estas duas grandezas. Nesse caso, o fator de normalização que aparece nos denominadores das equações [4.19] e [4.20] e o número de buracos (n_h) são simplificadas. Assim, de acordo com Wu [54] temos a seguinte relação:

$$\frac{\langle L_z \rangle}{2\langle S_z \rangle + 7\langle T_z \rangle} = \frac{2}{3} \times \frac{\sigma_{tot}^+ - \sigma_{tot}^-}{\sigma_{j+}^+ - \sigma_{j+}^- - 2(\sigma_{j-}^+ - \sigma_{j-}^-)} \quad (3.21)$$

A função degrau e a area isotrópica

Para a aplicação das regras de soma é necessário eliminar as contribuições das excitações dos fotoelétrons dos estados do contínuo, que é modelado por uma função de dois degraus Figura [3.14]. Os saltos dos degraus ocorrem na posição dos picos de absorção X_3 e X_2 das linhas brancas L_3 e L_2 , respectivamente. As alturas dos degrau L_3 e X_2 e $2/3$ e $1/3$ da intensidade média h dos últimos 15 eV do espectro de absorção isotrópica. Esta função de dois degraus pode ser escrita da seguinte forma:

$$\sigma^{cont} = \frac{2}{3} \times \frac{h}{1 + e^{-k_3(x-x_3)}} + \frac{1}{3} \times \frac{h}{1 + e^{-k_2(x-x_2)}} \quad (3.22)$$

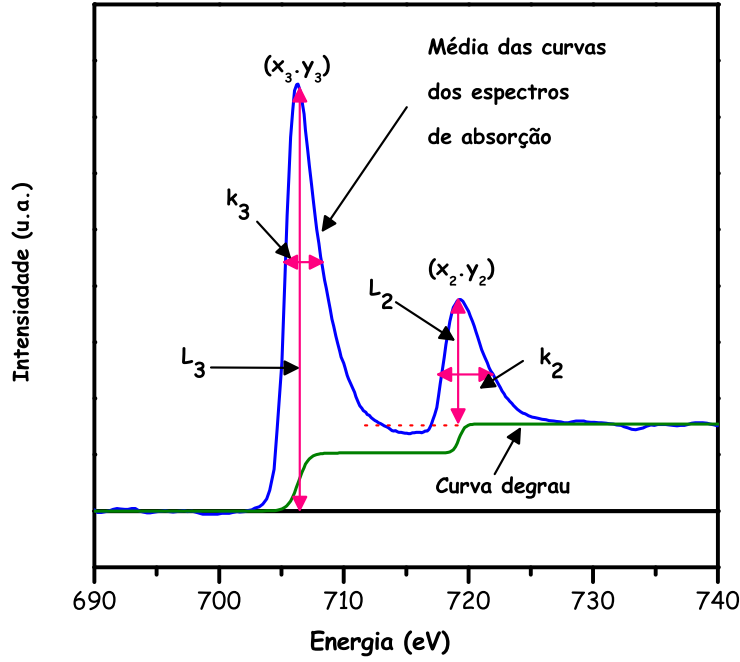


Figura 3.14: Média dos espectros de absorção nas bordas $L_{2,3}$ do Fe para a construção da função degrau.

onde h é a altura total do degrau, a qual corresponde à intensidade média dos últimos 15 eV do espectro de absorção isotrópica. Os saltos dos degraus ocorrem na posição dos picos de absorção x_2 e x_3 das linhas L_2 e L_3 , respectivamente. A área isotrópica, A_{iso} , é a área integrada do espectro isotrópico, σ° , após a subtração do contínuo:

$$A_{iso} = \int_{L_i} (\sigma^\circ(E) - \sigma^{cont}) dE, \quad i = 2, 3 \quad (3.23)$$

Aplicação das regras de soma

A aplicação das regras de soma, como já vimos, nos fornece a magnitude do momento magnético orbital e o momento magnético de spin, que podem ser rapidamente determinados, a partir das equações [52]:

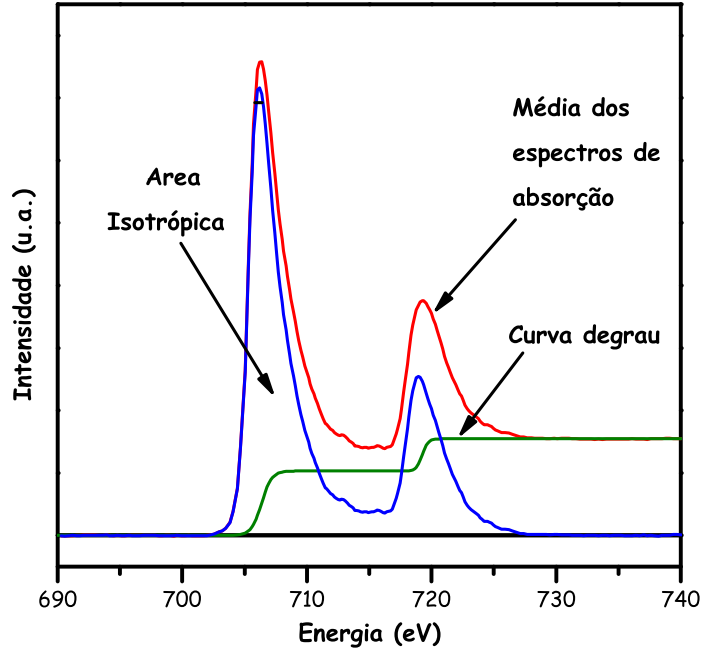


Figura 3.15: Média dos espectros de absorção na borda $L_{2,3}$ do Fe mostrando a curva degrau, a area isotrópica é obtida a partir da diferença entre a média dos espectros de absorção e a curva degrau.

$$m_{spin}^{eff} = -\frac{2n_h}{P_c \cos \theta} \times \frac{A - 2B}{2A_{iso}} \quad (3.24)$$

$$m_{orb} = -\frac{4n_h}{3P_c \cos \theta} \times \frac{A + B}{2A_{iso}} \quad (3.25)$$

$$\frac{m_{orb}}{m_{spin}^{eff}} = \frac{2}{3} \times \frac{A + B}{A - 2B} \quad (3.26)$$

onde n_h é o número de estados- d vazios, P_c é o grau de polarização circular dos raios X e A e B são as areas dos espectros XMCD, representadas na Figura 3.11-b. O valor de n_h é obtido de cálculos teóricos feitos por Kunes [56] e fornecidos na Tabela 3.2 e P_c é uma quantidade específica da linha do feixe.

Por definição, o momento magnético é a soma do momento magnético orbital com o momento magnético de spin, de acordo com a Equação [2.1]. Não existe mais outra

contribuição como o momento magnético dipolar, portanto definimos o momento de spin efetivo m_{spin}^{eff} como a soma das contribuições do momento magnético de spin m_s e do momento do dipolo magnético m_T . Esse fator, de acordo com a Equação [3.16], têm a seguinte forma [52]:

$$m_{spin}^{eff} = m_s + \frac{4l + 6}{l} m_T \quad (3.27)$$

Elemento	m_l (a)	m_l (b)	n_h	m_s
Fe ($Ni_{50}Fe_{50}$)	0.072	0.067	6.04	2.76
Ni ($Ni_{50}Fe_{50}$)	0.056	0.052	8.26	0.71
Fe bcc	0.047	0.041	6.04	2.23
Ni fcc	0.052	0.043	8.18	0.62
Co fcc	0.075	0.070	7.20	1.64

Tabela 3.2: Momento magnético orbital para FM $3d$ onde m_l (a) é obtido a partir de cálculos teóricos e m_l é obtido através das regras de soma. m_s é o momento magnético de spin e n_h é o número de buracos na banda $3d$, Kunes[43].

Capítulo 4

Preparação de Amostras

A técnica empregada na preparação das amostras foi a erosão catódica e o equipamento usado foi o sistema *Magnetron Sputtering* do CBPF/MCT, o qual já foi descrito no capítulo anterior.

Quando trabalhamos em sistemas de filmes finos produzidos pela técnica de erosão catódica; a primeira tarefa, após a escolha do sistema a ser preparado, é o cálculo das espessuras das camadas a partir das taxas de deposição dos alvos escolhidos. Assim, para ter um melhor controlada qualidade dos nossos filmes foi necessária a calibração das taxas de deposição, isto se faz a partir de medidas de reflectividade de raios X. Para este fim foram preparados filmes padrões de NiFe, FeMn, Ta , Cu, Cr e NiO. Especial cuidado tivemos para a deposição da camada do óxido antiferromagnético NiO, devido a fatores que serão descritos mais adiante.

4.1 Limpeza dos substratos

O processo de preparação é um passo importante, pois é necessário manter certos cuidados com o substrato antes de introduzi-lo na câmara de vácuo. Neste trabalho, usamos substratos de óxido de silício (SiO_2) com a orientação $\langle 100 \rangle$, monocristalino, com polimento nas duas faces, dopagem tipo p , resistividade de $7.5 \Omega.cm$, espessura de $460 \mu m$ e diâmetro de 10 cm. Estes substratos foram cuidadosamente cortados com uma microriscadora com serra de diamante, em dimensões predeterminadas de $10mm \times 10mm$. Os substratos possuem uma camada de óxido nativo que impede a formação de ligas na interface Si/primeira camada.

O processo de limpeza dos substratos segue uma rotina já desenvolvida no próprio laboratório que consiste nos seguintes passos: primeiro se faz uma limpeza com água deionizada misturada com sabão líquido¹ usando uma máquina de ultrassom por aproximadamente 10 min, este estágio elimina possíveis sujeiras e gorduras da superfície do substrato. Após isto se faz o enxague com água deionizada, repetidas vezes, até tirar todo o sabão líquido. Logo repetimos o procedimento com acetona, reduzindo as gorduras residuais da superfície do substrato. Assim, os substratos já limpos são submersos em álcool isopropílico de 98° e são mantidos assim até o momento em que são colocados na câmara de alto vácuo.

4.2 Alvos

Na tabela 4.1 encontram-se os alvos utilizados nessa tese para deposição por erosão catódica, onde são descritos as especificações fornecidas pelos fabricantes, como a estequiometria, diâmetro, espessura e pureza.

Alvo	Fabricante	Diâmetro(")	Espessura(")	Pureza(%)
NiO	Pure Tech	1,5	0,125	99,95
Ni ₂₀ Fe ₈₀	ACI	2,0	0,125	99,95
Cu	Pure Tech	1,5	0,125	99,99
Cr	AJA	2,0	0,250	99,98
Ta	Pure Tech	2,0	0,250	99,99

Tabela 4.1: Alvos utilizados na preparação das multicamadas através da técnica de erosão catódica.

4.3 Parâmetros de Deposição

Antes de começar a deposição dos filmes, é preciso fixar alguns parâmetros básicos, por exemplo; a pressão mínima, denominada pressão de base, que deve ser atingida na câmara de alto vácuo, esta pressão define o grau tanto de pureza quanto de limpeza

¹Extran é um concentrado de tensoativos que se diluído, possui um elevado poder de detergência, garantindo a limpeza dos substratos e reduzindo os resíduos dos utensílios laboratoriais.

da câmara e, portanto, da qualidade dos filmes. As camadas de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ ², Cu, Cr e Ta foram depositadas usando uma fonte de energia DC, enquanto que para o óxido AF, NiO, devido a suas propriedades isolantes, usamos uma fonte de radiofrequência (RF). Durante o processo de deposição do NiO, tivemos a necessidade de usar uma mistura de gases, além do argônio usamos o gas reativo oxigênio de alta pureza, em uma proporção Ar/O_2 constante de 20/1.

Na Tabela 4.2 apresentamos os parâmetros usados durante o processo de deposição dos filmes. Todas as amostras foram depositas à temperatura ambiente, em uma atmosfera de argônio de alta pureza (99.99%) com exceção do NiO. A distância entre o alvo e o substrato durante a deposição foi mantida em 10,3 cm.

Alvo	P_{Base} (Torr)	$P_{Trabalho}$ (Torr)	Corrente (mA)	Tensão (V)	Potência (W)
NiO	$< 8,5 \times 10^{-8}$	2×10^{-3}	–	–	150
$\text{Ni}_{20}\text{Fe}_{80}$	$< 8,5 \times 10^{-8}$	2×10^{-3}	97	404	40
Cu	$< 8,5 \times 10^{-8}$	2×10^{-3}	54	355	19
Cr	$< 8,5 \times 10^{-8}$	2×10^{-3}	63	334	21
Ta	$< 8,5 \times 10^{-8}$	2×10^{-3}	50	279	15
FeMn	$< 8,5 \times 10^{-8}$	2×10^{-3}	88	342	30

Tabela 4.2: Detalhes dos parâmetros de deposição usados durante todo o processo de produção das amostras. Os valores da corrente, tensão e potência correspondem às fontes de ignição DC para os alvos de natureza condutora e RF para o alvo de NiO.

4.4 Taxas de Deposição

Havendo já definido os alvos e os substratos, é preciso determinar as taxas de deposição das camadas. O processo para a determinação deste valor consiste em preparar uma camada única do alvo desejado, utilizando parâmetros idênticos aos dados na Tabela 4.2 que serão utilizados na deposição das multicamadas.

²Também denominado *Permalloy*, daqui para adiante usaremos a siglas Py ou simplesmente NiFe quando nos referíramos a esta liga.

A espessura de cada camada padrão pode ser determinada através do ajuste da respectiva curva de reflectividade, este ajuste foi feito usando o programa *WINGIXA* desenvolvido nos laboratórios da *Analytical Philips*, este programa fornece valores muito precisos tanto da espessura das camadas quanto das rugosidades interfaciais. Como se conhece o tempo de deposição de cada amostra padrão, pode-se determinar a taxa de deposição de cada alvo, dividindo simplesmente a espessura calculada pelo tempo de deposição. Outra alternativa para o cálculo da taxa de deposição consiste em usar a Equação 3.10. Para filmes com uma camada única, o cálculo da espessura com a Equação 3.10 é as vezes suficiente. É também necessário, em alguns casos, fazer uma nova calibração após a erosão continua dos alvos. Assim, por exemplo no caso dos alvos de NiFe e Cu que possuem taxas muito bem definidas, e portanto, praticamente não precisam ser recalibrados para as condições usadas nesta tese. Entretanto, alvos como o composto WTi possuem taxas de deposição que variam conforme o alvo perde gradativamente sua espessura.

A modo de ilustração apresentamos nas Figuras 4.1 e 4.2, duas curvas de reflectividade experimentais, de um filme fino de NiO e NiFe, respectivamente, depositados sobre um substrato de Si<100>, em ambos os casos apresentamos também os ajustes feitos através dos dois métodos de ajuste descritos anteriormente. Assim, por exemplo, na Figura 4.1-(a) mostramos o cálculo feito através da Equação 3.10, onde, para determinar os picos de reflexão usamos um ajuste do tipo gaussiano (curvas cor vermelho). No quadro interior da Figura 4.1-(a) mostramos o ajuste feito com uma função polinomial de 2°. Na Figura 4.1-(b), apresentamos o ajuste da curva de reflectividade obtido através do uso do programa *WINGIXA*.

Na Tabela 4.3 fornecemos os valores das taxas de deposição calculadas a partir dos ajustes das curvas de reflectividade usando o programa *WINGIXA*. Devemos notar que o grau de precisão destes dois métodos toma maior importância quando trabalhamos em sistemas de multicamadas, onde fatores como a rugosidade tem maior relevância. As incertezas apresentadas na Tabela 4.3, foram estimadas com base em variações do programa *WINGIXA*. Em todas as análises feitas no capítulo seguinte, somente se tomaram em conta os valores nominais das espessuras, já que os valores calculados não apresentam variações significativas, quando comparadas com o valor real.

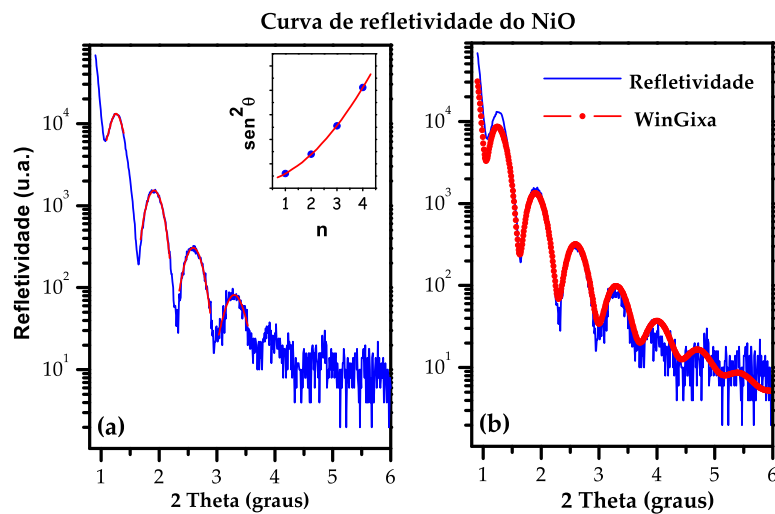


Figura 4.1: Curva de reflectividade experimental de um filme fino de NiO usado para determinar as taxas de deposição. (a) Ajuste feito usando a lei de Bragg e (b) ajuste usando o programa *WINGIXA*.

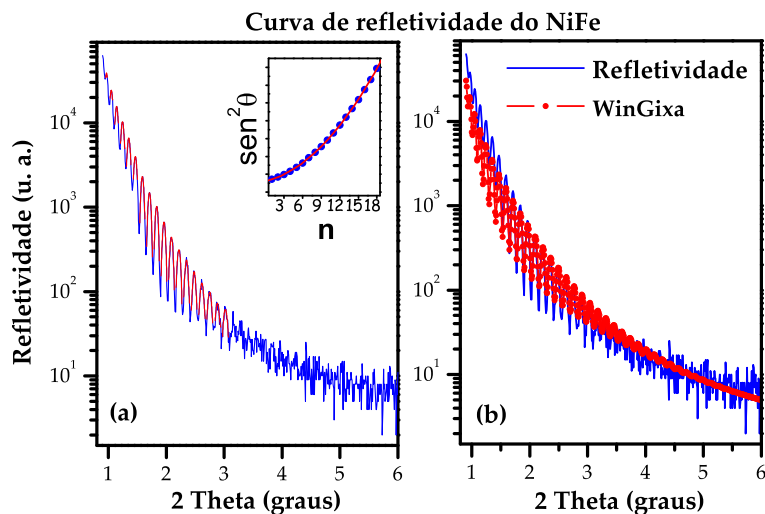


Figura 4.2: Curva de reflectividade experimental de um filme fino de NiFe usado para determinar as taxas de deposição. (a) Ajuste feito usando a lei de Bragg e (b) ajuste usando o programa *WINGIXA*.

Alvo	Tempo (s)	Espessura (nm)	Taxa (nm/s)
NiO	1200	$290 \pm 0,05$	0,24
Ni ₂₀ Fe ₈₀	500	$560 \pm 0,08$	1,13
Cu	400	$450 \pm 0,03$	1,13
Cr	500	$290 \pm 0,05$	0,58
Ta	600	$298 \pm 0,03$	0,50
FeMn	600	$560 \pm 0,04$	0,93

Tabela 4.3: Taxas de deposição dos alvos usados na preparação das multicamadas.

4.5 Amostras Preparadas

Os filmes finos preparados para a elaboração do presente trabalho foram depositados em forma de monocamadas, bicamadas e tricamadas. Todas estas amostras foram preparadas seguindo os procedimentos relatados anteriormente. As amostras preparadas podem ser divididas em três partes, em primeiro lugar estão as amostras padrões, neste caso temos as amostras para calibração (calcula da taxa de calibração) e as amostras padrões para as medidas de XMCD, com uma espessura já definida.

Em segundo lugar estão as amostras de teste, neste caso usamos amostras do tipo Si<100>NiO/NiFe(t)/Ta onde a nossa intenção foi a procura do sistema padrão, quer dizer, o sistema com a espessura que nos forneça o melhor valor do campo de polarização de troca tendo em consideração que esta espessura tem que nos permitir fazer medidas úteis de XMCD. Isto porque a profundidade de escape dos elétrons está em torno de 5 nm e nossa intenção é estudar as propriedades da segunda interface nesta estrutura. A terceira parte consiste em inserir a camada NM de Cu ou Cr entre a camada FM e AF, assim, chegamos ao nosso sistema final otimizado de Si<100>NiO/NM/NiFe/Ta.

Em todas as amostras onde houve a presença de uma camada magnética, a deposição dos filmes foi feita em presença de um campo magnético estático de 480 Oe para induzir um eixo de anisotropia preferencial. Com exceção das amostras padrões

feitas para medidas de reflectividade, todas as amostras foram protegidas com uma camada fina de Ta de 1 nm de espessura para evitar a oxidação das camadas metálicas interiores. As medidas de magnetização foram feitas a $T = 90K$, pelo fato das interações magnéticas de longo alcance resultam mais evidentes, como foi observado por Chang *et. al.* [57].

No total foram produzidas 95 amostras, entre as amostras padrões, as amostras de teste e as amostras otimizadas. Na tabela 4.4 apresentamos as séries de bicamadas e tricamadas produzidas, caracterizadas e analisadas durante a elaboração do presente trabalho.

Sistema	Estrutura	Espessura (nm)
NiO/NiFe	NiO(35nm)/NiFe(t)/Ta(1nm)	1; 2; 3; 5; 7; 10; 15
NiO/Cu/NiFe	NiO(35nm)/Cu(t)/NiFe(3nm)Ta(1nm)	0,5; 0,7; 1; 1,5; 3; e 5
NiO/Cr/NiFe	NiO(35nm)/Cr(t)/NiFe(3nm)Ta(1nm)	0,5; 0,7; 1; 1,5; 3; e 5

Tabela 4.4: Relação dos sistemas produzidos, caracterizados e analisados na elaboração do presente trabalho. Todas estas amostras foram depositadas sobre substratos de silício Si<100>.

Capítulo 5

Resultados Experimentais

Neste capítulo apresentamos em forma sistemática, seqüencial e detalhada todo o processo realizado para a elaboração do presente trabalho. O sistema escolhido para o estudo e a análise foi NiO/NiFe. A escolha deste sistema deve-se, em primeiro lugar, à abundante referencia bibliográfica existente, e portanto, é um sistema amplamente conhecido e pesquisado. E em segundo lugar está o fato deste sistema apresentar um valor apreciável do campo de polarização de troca (H_{EB}), quando comparado com outros sistemas, como por exemplo a liga antiferromagnética FeMn. Os óxidos antiferromagnéticos vem sendo amplamente utilizados nos sistemas com polarização de troca, devido às propriedades, tanto isolantes, como magnéticas que eles apresentam. O óxido de níquel tem uma estrutura de spin bem caracterizada, uma temperatura de bloqueio relativamente alta e, quando depositada junto ao NiFe, o sistema em conjunto apresenta um acréscimo do valor do campo coercitivo devido à fraca anisotropia da camada de NiO.

Como foi dito no capítulo anterior, antes de iniciar o estudo da inserção de uma camada NM (seja Cu ou Cr) no meio do sistema NiO/NiFe, é necessário preparar uma amostra estável que reproduza características bem conhecidas na literatura, como por exemplo, o comportamento do campo de polarização de troca (H_{EB}) em função da espessura da camada ferromagnética. Assim, iniciaremos com o estudo exploratório, visando a obtenção de um sistema otimizado e bem comportado, no qual o estudo da influência da inserção de uma camada NM, entre a camada FM e AF, será realizada.

5.1 Caracterização da Camada de NiO

A primeira etapa do nosso trabalho, foi a caracterização da camada antiferromagnética de óxido de níquel (NiO). O trabalho anterior da minha tese de mestrado [44], dá evidência da formação de NiO pela exposição de uma camada de NiFe a um ambiente de oxigênio com pressão controlada [58]. Na Tabela 5.1 mostramos algumas das propriedades dos óxidos antiferromagnéticos, óxido de níquel (NiO), óxido de cobalto (CoO) e o óxido de ferro (FeO). O modo de crescimento de uma camada sobre um substrato é governado pela energia livre superficial dos respectivos materiais. Em geral, a energia superficial dos óxidos é menor do que os metais de transição, portanto, o modo de ilhas tridimensionais é o modo preferencial de crescimento das camadas neste tipo de materiais ao invés do modo de camada por camada. Esta situação torna-se ainda mais complexa quando existem reações interfaciais conduzindo a misturas nas interfaces.

	NiO	CoO	FeO
T_N (K)	523	291	198
T_B (K)	500	180	
T_F (K)	2257	2208	1643
Densidade (g/cm^3)	6,67	6,2	6,0
Estrutura	FCC	FCC	FCC
Parâmetro de rede	0,41 nm	0,2 nm	0,4 nm
Simetria	Romboédrica $\alpha < 60^\circ$	Tetragonal $c/a < 1$	Romboédrica $\alpha > 60^\circ$

Tabela 5.1: Algumas das propriedades dos óxidos antiferromagnéticos, onde T_N é a temperatura de Neel, T_B é a temperatura de bloqueio, T_F é a temperatura de fusão, a estrutura cristalina refere-se ao estado paramagnético e a simetria refere-se ao estado ordenado.

Antes de começar a análise da camada de NiO é preciso conhecer algumas informações úteis sobre este material. Assim, o óxido de níquel tem uma estrutura cristalina do tipo NaCl no estado paramagnético, mudando para a estrutura romboédrica, com $\alpha < 60$, quando passa ao estado antiferromagnético. Esta deformação consiste em

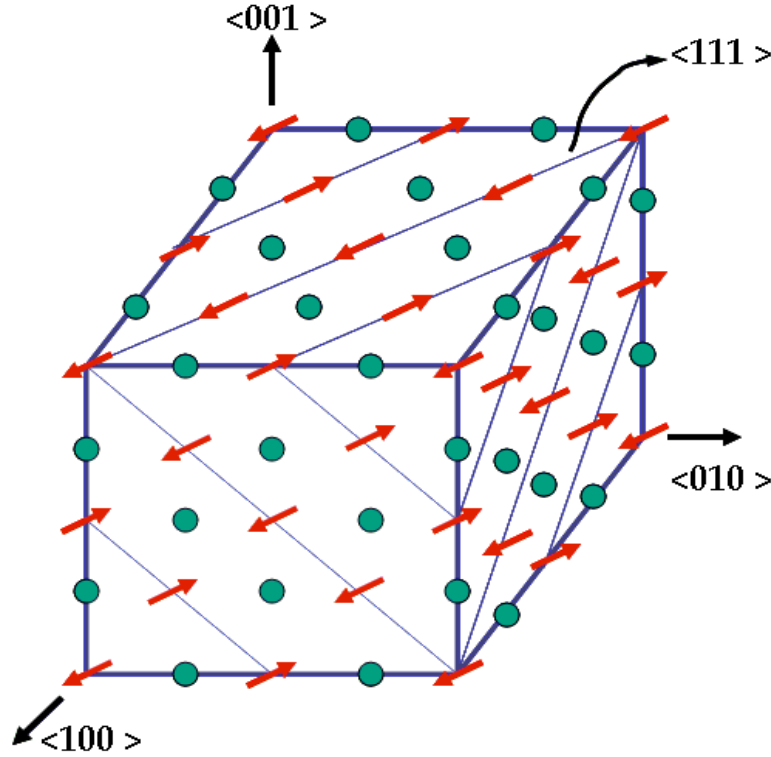


Figura 5.1: Estrutura antiferromagnética do NiO. Os círculos (●) são os átomos de oxigênio. Os spins magnéticos ficam no plano ferromagnético (111).

uma contração da célula cúbica unitária ao longo de um dos eixos $\langle 111 \rangle$. Um monodomínio de NiO é um monocristal magnético gerado pela repetição periódica em três dimensões da célula unitária magnética como mostrada na Figura [5.1]. Os spins atômicos do NiO estão arranjados em planos ferromagnéticos paralelos ao plano (111) e a direção de magnetização em planos vizinhos é invertida. O arranjo antiferromagnético dos momentos magnéticos é explicado pela interação de supertroca entre os ions de Ni através dos ions de oxigênio [59]. No sistema NiO, as paredes de domínio se originam a partir da mudança da orientação cristalográfica dos planos ferromagnéticos ou também, se existe, de uma rotação da direção dos momentos no interior do plano ferromagnético [60].

As primeiras amostras preparadas para otimizar a camada de NiO consistiram na deposição de uma camada única de NiO, onde mantivemos constantes os parâmetros de deposição, descritos no capítulo anterior, e variando unicamente a potência da

fonte de RF. Em todos os casos, o tempo de deposição foi de 1200 s (20 min). A idéia de somente tornar variável a potência de RF se justifica pela dificuldade de manter constante a pressão de oxigênio na câmara principal. Esta pressão apresentava grandes flutuações durante o processo de deposição, e portanto, as amostras não poderiam ser reproduzidas nas mesmas condições de pressão parcial. Como é relatado na literatura, [61, 62, 63, 64, 65], as vezes é necessário aquecer o substrato para obter uma camada de NiO com melhor textura, este procedimento foi impossível, pois nossas amostras foram crescidas em presença de um campo magnético estático.

Assim, mantendo constante a temperatura do substrato (300 K) começamos a depositar NiO, variando a potência de RF, nos valores de 80 W, 100 W e 150 W. Na Figura [5.2], apresentamos a difração de raios X destas amostras padrões de NiO, Si<100>/NiO(t). O pico de difração predominante nos três difratogramas apresentados é devido ao substrato de silício, na direção <400>. Nota-se que quando a potência de RF é 80 W ou 100 W, estas amostras apresentam um pico de difração de fraca intensidade em $2\theta = 43,2^\circ$, que pode ser explicado pelo fato de que a potência de RF fornecida ao alvo de NiO é baixa de modo que os átomos ejetados do alvo tem pouca energia cinética e, portanto, eles tem uma baixa deposição no substrato. Porém quando a potência de RF é de 100 W observamos a presença do pico de difração de pouca intensidade em $2\theta = 37,2^\circ$. O resultado mais importante é obtido quando a potência de RF é 150 W, neste caso, a amostra apresenta dois picos representativos da camada de NiO, em $2\theta = 37,2^\circ$ e $2\theta = 43,3^\circ$, nas direções <111> e <200>, respectivamente. Estas orientações dos planos cristalográficos, segundo a Figura [5.1], são planos com spin não-compensado <111> e o plano com spin compensado <200>. Segundo a fórmula de Scherrer [3.13] (Capítulo [3]), o tamanho estimado de grão médio é $D = 10,3$ nm, resultado que está em boa concordância com os calculados por Nam *et. al.* [66]. Mais adiante, falaremos como estas direções influenciam a intensidade do campo de polarização de troca H_{EB} , no sistema NiO/NiFe. Assim, de acordo com estes resultados, podemos fixar os parâmetros de deposição da camada de NiO a uma potência de radio frequência de 150 W, conforme foi descrito na Tabela 4.2, no capítulo anterior.

No presente trabalho, não fizemos medidas da dependência do campo de polariza-

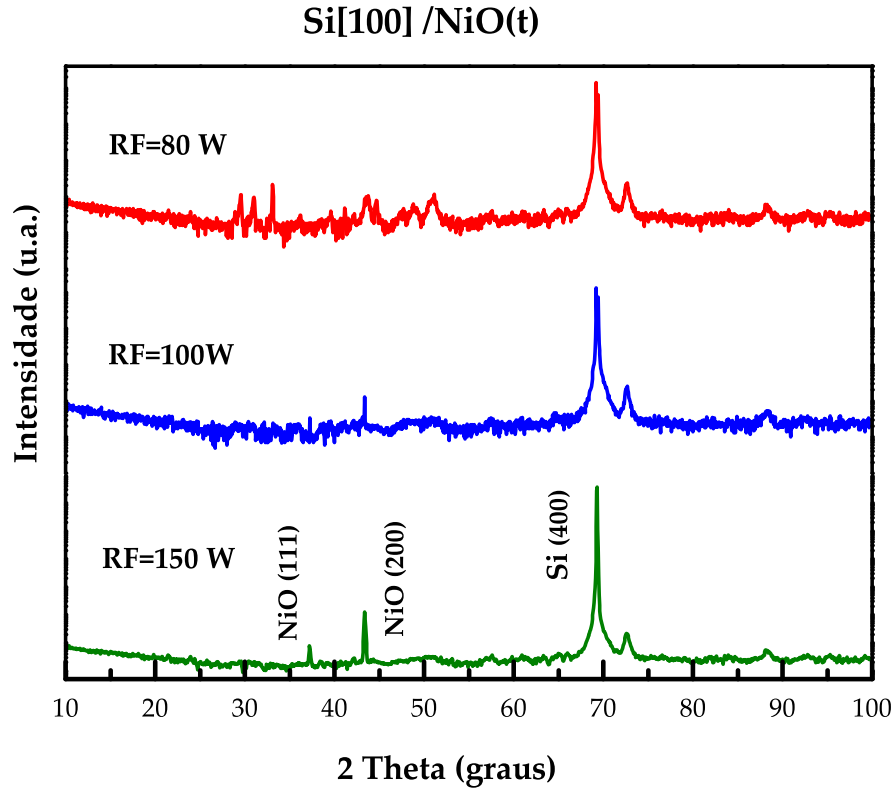


Figura 5.2: Difração de raios X de um filme de NiO depositado sobre um substrato de Si<100>, por um tempo de 20 min, a uma pressão (Ar/O_2) constante e variando a potência da fonte RF.

ção de troca com a espessura da camada AF, mas é necessário explicar alguns fatos importantes. É conhecido que existe uma dependência entre a espessura da camada AF com a temperatura de Néel, este fato é consistente com os efeitos de tamanho finito [67], é relevante quando a razão dos átomos superficiais e os átomos no interior da camada aumenta. Em termos magnéticos, este fenômeno existe porque os spins na superfície estão fracamente ligados pela quebra de simetria destes átomos. Por exemplo, para uma camada de NiO com espessuras de 100 ou 250 nm é conhecido que estas camadas apresentam uma T_N de $\approx 200K$ e $\approx 350K$, respectivamente [13]. Para evitar efeitos de tamanho finito em nossos filmes escolhemos uma espessura constante da camada de NiO no valor de 35 nm, que está dentro do padrão usado na maioria

dos trabalhos feitos no sistema NiO/NiFe [24, 68, 69].

Outro fato importante e muito discutido até o momento é a dependência entre o campo de polarização de troca com a estrutura cristalina da camada de NiO. A baixa anisotropia do NiO é um fator limitante do campo de polarização de troca aumentando o campo coercitivo quando o acoplamento de troca é maior do que a energia magnética do NiO [27]. Lee *et al.* [70] comparam resultados em bicamadas de NiO/NiFe epitaxiais, crescidas sobre substrato de MgO $\langle 100 \rangle$ com bicamadas de NiO/NiFe policristalinas, concluindo que a textura cristalina dominante não é um fator determinante para o campo de polarização de troca e que o nível de rugosidades na interface aumenta o campo coercitivo. Han *et al.* [71] num trabalho similar, relatam que um baixo nível de rugosidades é um fator importante para reduzir o campo coercitivo e o campo de polarização de troca não é dependente da textura cristalina neste sistema. Os resultados obtidos por Yan *et al.* mostram que um crescimento cristalino intenso na direção $\langle 111 \rangle$ (plano de spins não compensados), não é um fator determinante sobre o campo de polarização de troca [72], porém um crescimento na direção $\langle 200 \rangle$ tem uma forte dependência no valor do H_{EB} , segundo os trabalhos realizados por Shen *et al.* [69] e Nam *et al.* [66]. Em todos estes casos, a presença de rugosidades na interface é um parâmetro importante, mas não estudamos a dependência da pressão de deposição sobre o campo de polarização de troca, portanto, podemos assumir que as rugosidades na interface NiO/NiFe serão constantes, conforme relataremos na seguinte seção.

5.2 Caracterização do Sistema NiO/NiFe

Nesta seção, o sistema Si<100>/NiO(35nm)/NiFe(t)/Ta(1nm) com diferentes espessuras da camada de NiFe foram preparadas com o objetivo de otimizar este sistema. Esta otimização consiste em primeiro lugar em calcular as espessuras reais das camadas e logo as rugosidades nas interfaces NiO/NiFe e NiFe/Ta e a seguir analisar o comportamento magnético deste sistema. Todos estes estudos foram realizados *ex situ* e, portanto, faz-se necessário a deposição de uma fina camada protetora de Ta para prevenir a possível oxidação da camada metálica quando exposta ao meio ambiente, em todos os casos, esta camada teve uma espessura constante de 1 nm.

5.2.1 Caracterização estrutural

As bicamadas NiO(35nm)/NiFe(t), com $t = 1; 2; 3; 5; 7; 10$ e 15 nm foram caracterizadas através da técnica de difração de raios X no regime de baixo e alto ângulo, à temperatura ambiente, usando a radiação K_α do Cu ($\lambda = 0,15418$ nm).

Na Figura 5.3 são apresentadas as curvas de reflectividade onde variamos a espessura da camada FM com $t = 1; 2; 3; 5; 7; 10$ e 15 nm. As linhas de cor azul representam as curvas de reflectividade experimental, enquanto que as linhas de cor vermelha representam os ajustes obtidos usando o programa *WinGixa*. Em todos os casos é fácil distinguir os períodos das oscilações, e as franjas de Kiessig estão claramente definidas, refletindo a boa qualidade das amostras.

As espessuras e as rugosidades das interfaces NiO/NiFe e NiFe/Ta obtidas dos respectivos ajustes são apresentadas na Tabela [5.2]. Nesta tabela não são mostrados os valores das rugosidades na interface Si<100>/NiO devido ao fato de que esta região apresenta uma rugosidade constante de 0,05 nm. Também, não são mostradas as rugosidades originadas na superfície da amostra, variando entre 0,02 e 0,04 nm, sendo menor que o valor real da camada protetora, e portanto não tem maior influência nos resultados magnéticos.

A caracterização de uma interface em bicamadas do tipo AF/FM é um tema de debate: alguns trabalhos mostram que as rugosidades diminuem o valor do campo de polarização de troca H_{EB} [69, 72], mas outros trabalhos relatam o contrário, quer

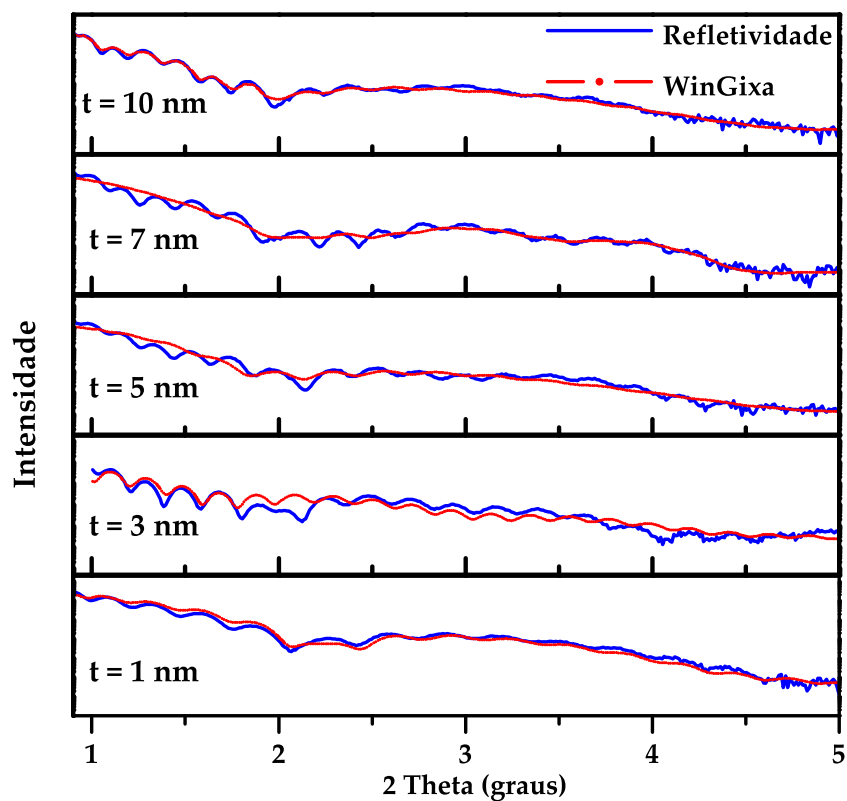


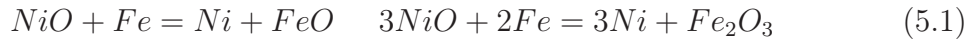
Figura 5.3: Curvas de reflectividade experimental (—) e o respectivo ajuste (—) da estrutura Si<100>/NiO(35nm)/NiFe(t)/Ta(1nm) com $t = 1; 3; 5; 7$ e 10 nm

dizer, as rugosidades favorecem o valor de H_{EB} [73]. Em todos os casos, a influência das rugosidades sobre o valor de H_{EB} é um fato conhecido, e muito dependente das condições de deposição [42, 74].

Estrutura Nominal (nm)	Interface 1 NiO/NiFe (nm)	Interface 2 NiFe/Ta (nm)	Estrutura Real (nm)
NiO(35)/NiFe(1)/Ta(1)	0,28	0,07	NiO(34,4)/NiFe(1,2)/Ta(1,2)
NiO(35)/NiFe(2)/Ta(1)	0,27	0,08	NiO(34,6)/NiFe(2,2)/Ta(1,2)
NiO(35)/NiFe(3)/Ta(1)	0,29	0,08	NiO(33,9)/NiFe(3,3)/Ta(1,3)
NiO(35)/NiFe(4)/Ta(1)	0,29	0,08	NiO(33,8)/NiFe(4,2)/Ta(1,3)
NiO(35)/NiFe(5)/Ta(1)	0,30	0,07	NiO(33,9)/NiFe(5,4)/Ta(1,3)
NiO(35)/NiFe(7)/Ta(1)	0,29	0,07	NiO(34,1)/NiFe(7,6)/Ta(1,1)
NiO(35)/NiFe(10)/Ta(1)	0,29	0,07	NiO(34,3)/NiFe(10,7)/Ta(1,2)
NiO(35)/NiFe(15)/Ta(1)	0,30	0,08	NiO(34,3)/NiFe(15,6)/Ta(1,2)

Tabela 5.2: Espessuras e rugosidades nas interfaces NiO/NiFe e NiFe/Ta obtidas mediante o ajuste das curvas de reflectividade com o programa *WinGixa*.

Os valores calculados das espessuras de cada camada, de acordo com a Tabela 5.2, são sempre menores que os valores nominais para o caso da camada de NiO, enquanto que, para as camadas de NiFe e Ta são sempre maiores. As rugosidades da interface NiO/NiFe apresentam valores consideráveis, este fato pode ser explicado em termos de reações interfaciais, mostrando que a razão Ar/O durante o processo de deposição tem um grande efeito sobre os estados químicos de Ni na camada de NiO_x. Assim, os estados químicos mais prováveis podem ser entendidos mediante a seguinte reação química:



A mudança na energia livre de Gibbs dadas na equação química 5.1 é quase -33,3 e -108,9 KJ/mol, respectivamente; o que significa que ambas as reações são termodinamicamente favoráveis, conforme descrito nas referências [75, 76]. As rugosidades na interface NiFe/Ta são pequenas quando comparadas à primeira interface NiO/NiFe. As rugosidades na interface NiO/NiFe, podem ser originadas pela presença de forças químicas não desprezíveis a T>0, ou pela difusão do oxigênio para o metal.

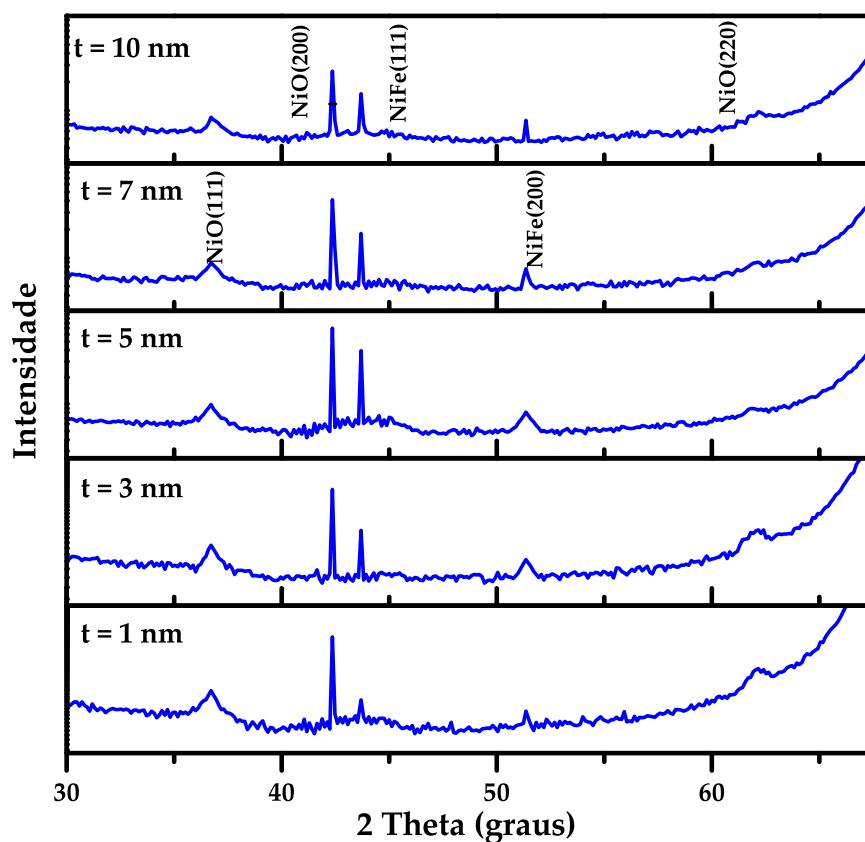


Figura 5.4: Difração de raios X da estrutura Si<100>/NiO(35nm)/NiFe(*t*)/Ta(1nm) com *t* = 1; 3; 5; 7 e 10, nm.

Na Figura 5.4, apresentamos os resultados da difração de raios X convencional da estrutura Si<100>/NiO(35nm)/NiFe(*t*)/Ta(1nm) com *t* = 1; 2; 3; 5; 7 e 10 nm. Nesta figura, é possível distinguir os picos de difração correspondentes à camada de NiO em $2\theta = 37,2^\circ$, $2\theta = 43,3^\circ$ e $2\theta = 62,2^\circ$ (com baixa intensidade) que correspondem aos planos <111>, <200> e <220> respectivamente. A camada de NiFe somente apresenta picos de difração em $2\theta = 43,6^\circ$ e $2\theta = 51,3^\circ$ que correspondem aos planos <111> e <200>, respectivamente. Estes resultados, mostram a boa textura cristalográfica das amostras.

Um tema de debate é a dependência entre o tamanho de grão e o campo de polarização de troca, em nosso caso, é conhecido na literatura que em uma distribuição de grãos cristalográficos estáveis e instáveis, somente os grãos estáveis (os de menor tamanho) contribuem para o efeito de polarização de troca, neste caso existe uma interação de troca forte para os grãos pequenos da camada AF que se acoplam fortemente aos spins da camada FM. Os grãos de NiO de maior tamanho possuem forte anisotropia magneto-cristalina, a qual supera a interação de troca interfacial, de forma que, os grãos de maior tamanho comportam-se como se estivessem desacoplados dos spins da camada de NiO [77].

5.2.2 Caracterização magnética

Foram feitas medidas de magnetização nas bicamadas NiO(35nm)/NiFe(t), com $t = 1; 2; 3; 4; 5; 7; 10; e 15$ nm; a $T = 90K$, com o campo magnético aplicado paralelo ao plano dos filmes, com a finalidade de testar as qualidades magnéticas das amostras.

Como é visto na Figura [5.5], todas as amostras atingem o estado de saturação magnética com campo aplicado menor que 300 Oe. Em todos os casos o processo de normalização¹ é feito dividindo o valor da magnetização de saturação da camada de NiFe com o valor da magnetização de saturação (M_S) padrão do NiFe (800 emu/cm³) [9]. Assim, a maior fonte de incerteza no cálculo do M_S se origina do cálculo da espessura da camada NM.

Na Figura [5.5] apresentamos as curvas de histerese, mostrando o deslocamento da curva de magnetização para campos negativos, que é o resultado de uma anisotropia unidirecional gerada na interface AF/FM.

¹Este processo de normalização consiste primeiro em dividir o valor da magnetização, em cada ponto, na curva de histerese pelo volume de material ferromagnético de cada amostra.

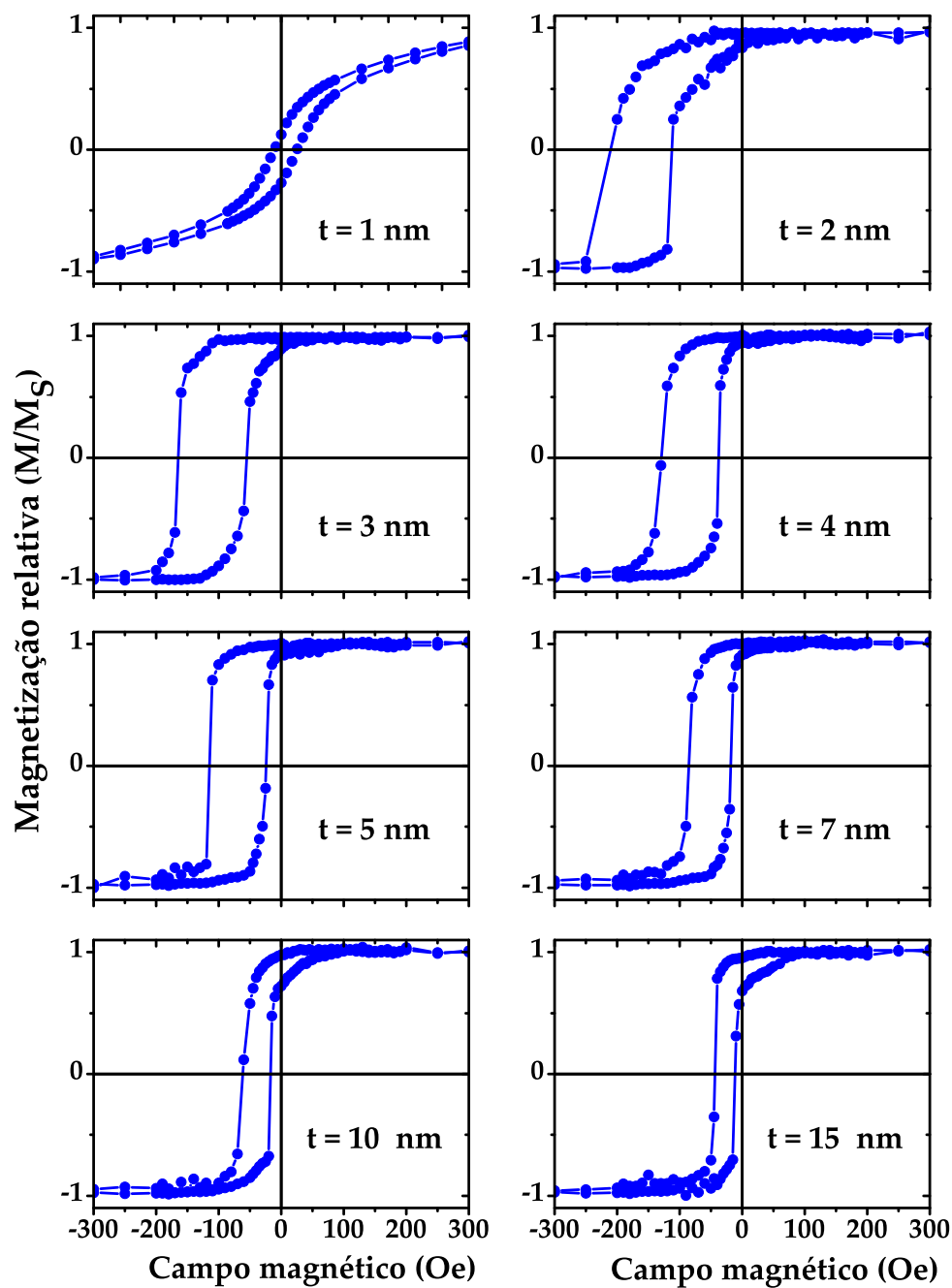


Figura 5.5: Ciclos de histerese da estrutura Si<100>/NiO(35nm)/NiFe(t)/Ta(1nm) com $t = 1; 2; 3; 4; 5; 7; 10$ e 15 nm, medidos à temperatura $T = 90$ K

Segundo o modelo proposto por Malozemoff [34], a presença de rugosidades nas interfaces dá origem a um campo aleatório que atua sobre os spins interfaciais. Assim, este campo aleatório gerado na interface obriga ao antiferromagneto a quebrar-se em domínios. Assim, a rugosidade no sistema NiO/NiFe tem sido identificada como um dos fatores que influenciam a magnitude tanto de H_{EB} como de H_C [78].

A rugosidade pode aumentar o campo de polarização de troca pelo fato de aumentar a área interfacial disponível, enquanto que o campo coercitivo sofre um acréscimo devido à distribuição de campos magnéticos dipolares em torno dos defeitos, tanto magnéticos como estruturais. Estes defeitos atuam como barreiras para a formação das paredes de domínio. Na teoria convencional do ferromagnetismo, é um fato que o campo coercitivo aumenta com o aumento da barreira de energia potencial. Uma relação similar é encontrada em nossas bicamadas.

Na Tabela [5.3], apresentamos os valores do campo de polarização de troca (H_{EB}) e o campo coercitivo (H_C) obtidos a partir das curvas magnetização mostradas na Figura [5.5], calculadas a partir da seguinte relação:

$$\begin{aligned} H_{EB} &= \frac{H_A + H_B}{2} \\ H_C &= \frac{H_A - H_B}{2} \end{aligned} \quad (5.2)$$

onde H_A e H_B são obtidas a partir da curva de magnetização, quando $M = 0$, e $|H_A| > |H_B|$, foram definidas de acordo com a Figura [2.1]. Para a amostra com $t_{NiFe} = 1$ nm, o ciclo de histerese é diferente, resultando em valores reduzidos para H_{EB} e H_C . Este comportamento pode ser atribuído à pequena espessura da camada FM apresentando descontinuidades.

Os valores obtidos de H_{EB} e H_C para $t = 1; 2; 3; 4; 5; 7; 10$ e 15 são compatíveis com os resultados reportados na literatura. Estes valores sugerem o típico comportamento dependente da espessura da camada FM [5], conforme a Equação [2.8]:

t (nm)	H_{EB} (Oe)	H_C (Oe)
1 $\pm$ 0,08	2,50 $\pm$ 2,5	8,260 $\pm$ 2,5
2 $\pm$ 0,08	161,39 $\pm$ 1,9	98,10 $\pm$ 1,9
3 $\pm$ 0,08	112,0 $\pm$ 2,1	54,28 $\pm$ 2,1
4 $\pm$ 0,08	82,92 $\pm$ 2,2	46,32 $\pm$ 2,2
5 $\pm$ 0,08	69,69 $\pm$ 2,4	45,40 $\pm$ 2,4
7 $\pm$ 0,08	51,30 $\pm$ 2,3	33,48 $\pm$ 2,3
10 $\pm$ 0,08	39,29 $\pm$ 2,2	22,30 $\pm$ 2,2
15 $\pm$ 0,08	27,65 $\pm$ 2,4	15,98 $\pm$ 2,4

Tabela 5.3: Valores do campo de polarização de troca (H_{EB}) e do campo coercitivo (H_C), extraídos a partir das curvas de magnetização, medidas à $T = 90$ K, da estrutura Si<100>/NiO(35nm)/NiFe(t)/Ta(1nm) com $t = 1; 2; 3; 4; 5; 7; 10$ e 15 nm.

$$H_{EB} = \frac{\sigma_{int}}{m_{FM}t_{FM}}$$

Na Figura [5.6] mostramos o comportamento direto (a) e inverso (b) do campo de polarização de troca (H_{EB}) em função da espessura da camada FM. A partir da Figura [5.6-b] podemos calcular de forma aproximada, o valor da energia interfacial por unidade de área, σ_{int} , fazendo uso da Equação [2.8]. Assumimos que $m_{sat}=800$ emu/cm³ para a camada de NiFe [79, 68], e fazendo uma regressão linear por mínimos quadrados dos dados da Tabela [5.3], o valor da energia interfacial por unidade de área é $\sigma_{int}=0,024$ erg/cm², [80]. Este valor está próximo do calculado por Smardz, $\sigma_{int}=0,03$ erg/cm² e $\sigma_{int}=0,02$ erg/cm², para amostras de NiO/NiFe crescidas sobre Si<100> e vidro amorfo, respectivamente [24].

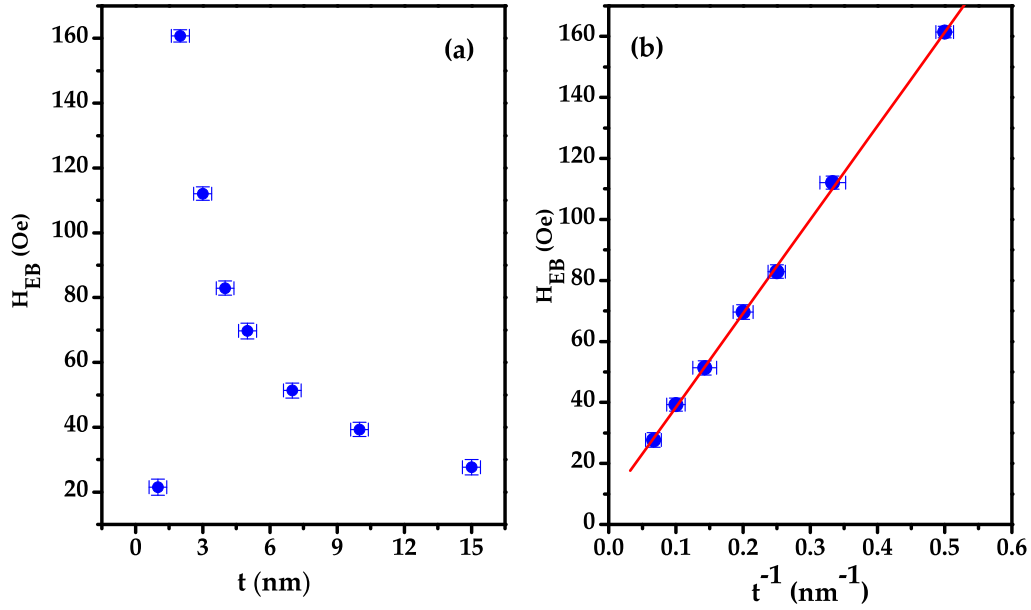


Figura 5.6: Dependência de H_{EB} com a espessura da camada FM, na estrutura Si<100>-NiO(35nm)/NiFe(t)/Ta(1nm) com $t = 1; 2; 3; 4; 5; 7; 10$ e 15 nm. (a) Relação direta entre H_{EB} vs t e (b) relação inversa H_{EB} vs $1/t$.

O valor calculado da energia interfacial (σ_{int}), é pequeno quando comparado a outros valores reportados na literatura [6], mas, é necessário tomar em consideração a magnitude das rugosidades calculadas anteriormente, mostrando que nossas amostras têm interfaces NiO/NiFe muito rugosas, da ordem de 0,3 nm, conduzindo a uma diminuição do valor de σ_{int} .

Na Tabela [5.4] comparamos os nossos resultados da energia interfacial (σ_{int}) do sistema NiFe com valores reportados na literatura. Para outros sistemas de bicamadas AF/FM pode-se procurar o trabalho feito por Nogues *et al.* [6].

Sistema	σ_{int} (erg/cm ²)
NiO(35nm)/NiFe(3,0nm) ¹	0,024
NiO(40nm)/NiFe(4,5nm) ²	0,03
NiO(40nm)/NiFe(4,5nm) ²	0,02
NiO(40nm)/NiFe(4,5nm) ³	0,05
NiO(40nm)/NiFe(14,3nm) ³	0,09
NiO/NiFe ⁴	0,031

Tabela 5.4: Valores da energia interfacial (σ_{int}), calculados no sistema NiO/NiFe.

[¹]: Miguel Tafur *et al.* [80], [²]: Smardz [24], [³]: Tsann *et al.* [68] e [⁴]: Jing-guo Hu *et al.* [81]

Na Figura [5.7] mostramos o comportamento direto (a) e inverso (b) do campo coercitivo H_C em função de t . Neste caso é difícil fazer uma aproximação, já que não existe uma abordagem teórica sobre esta dependência. O fato amplamente conhecido na literatura, é que $H_C \propto 1/t$, e os nossos resultados seguem este comportamento conforme observado na Figura [5.7-b].

Antes de iniciar a análise dos resultados de difração, é importante fazer um resumo dos resultados apresentados até o momento. A camada de NiO, conforme a Figura [5.2], apresenta uma forte textura na direção $\langle 200 \rangle$ indicando a formação do plano de spins compensados. Esta direção se conserva quando é depositada a camada de NiFe acima da camada de NiO, aparecendo o pico de difração do NiFe na direção $\langle 111 \rangle$, conforme a Figura [5.4]. O tamanho de grão da camada de NiO calculado foi de $D = 10,3nm$.

As rugosidades da interface NiO/NiFe, conforme a Tabela [5.2], resultam quase constantes, em torno de 0,3 nm, estes valores nos sugerem a presença de uma interface rugosa, provavelmente devido às reações químicas na interface originadas pela presença de oxigênio durante a deposição da camada de NiO.

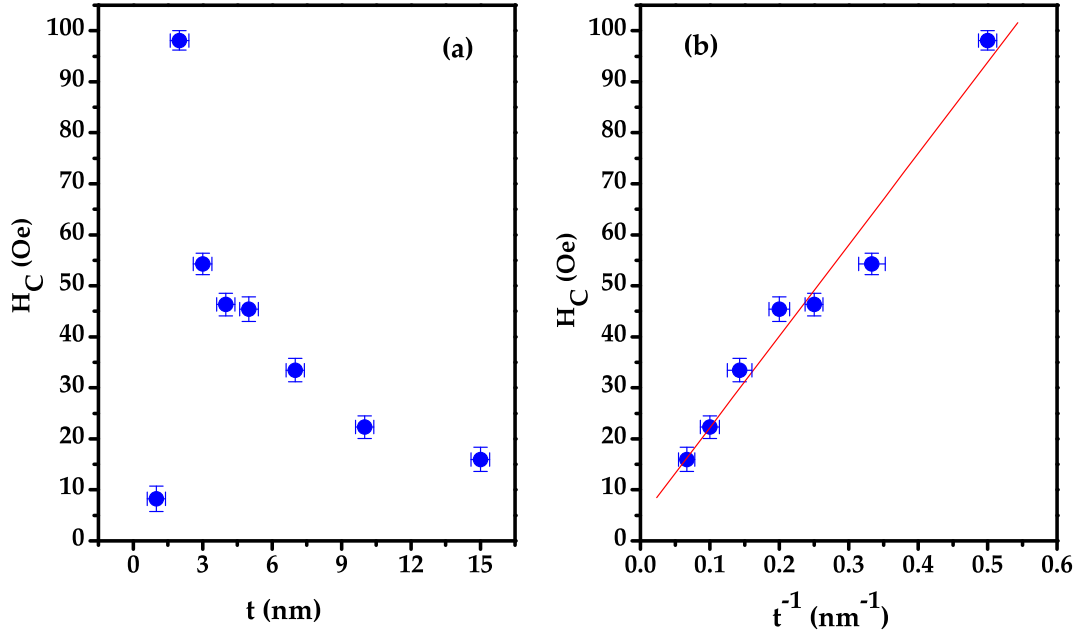


Figura 5.7: Dependência do H_C com a espessura da camada FM, na estrutura Si<100>/-NiO(35nm)/NiFe(t)/Ta(1nm) com $t = 1; 2; 3; 4; 5; 7; 10$ e 15 nm. (a) Relação direta entre H_C e t e (b) Relação inversa $H_C \propto 1/t$.

As medidas de magnetização mostram resultados que estão em boa concordância com os reportados na literatura. Como pode ser visto na Tabela [5.3] e nas Figuras [5.6] e [5.7], o sistema apresenta o comportamento característico de H_{EB} e H_C em função da espessura da camada FM. A energia interfacial calculada a partir do gráfico $H_{EB} \propto t$ é de aproximadamente $\sigma_{int} = 0,024$ erg/cm², para este sistema, que é comparado com outros valores existentes na literatura (Tabela [5.4]).

Portanto, o sistema analisado Si<100>/NiO(35nm)/NiFe(t)/Ta(1nm) com $t = 1; 2; 3; 4; 5; 7; 10$ e 15 nm, apresenta uma boa textura cristalográfica e um bom comportamento magnético. Mostramos, por último, na Figura [5.8], todas as curvas de magnetização a $T=90$ K, feitas para caracterizar este sistema.

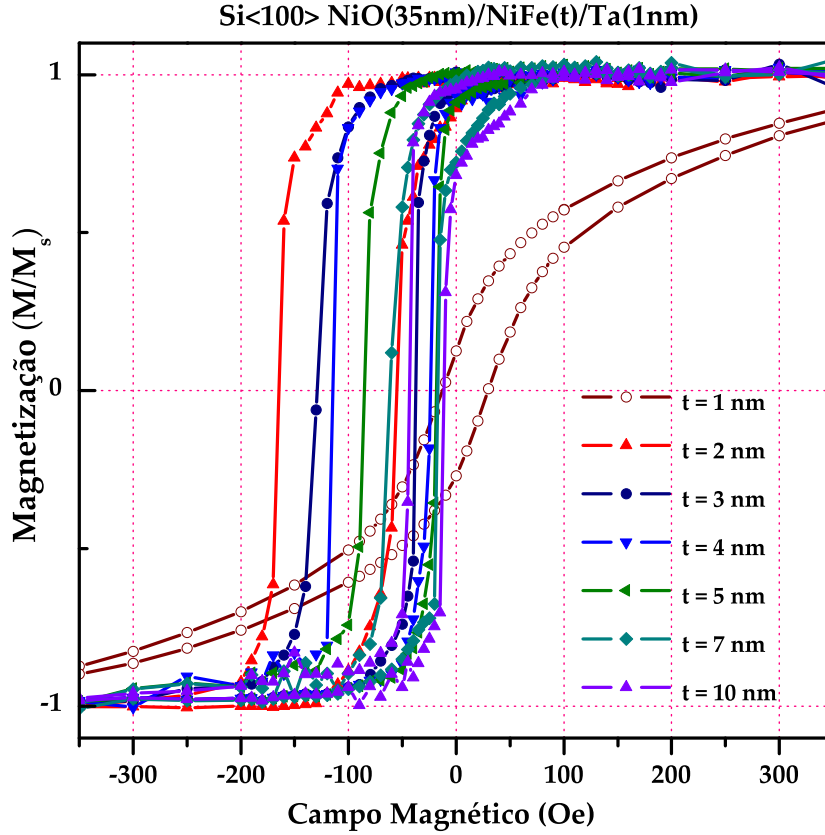


Figura 5.8: Curvas de magnetização, da estrutura Si<100>/NiO(35nm)/NiFe(t)/Ta(1nm) com $t = 1; 2; 3; 4; 5; 7; 10$ e 15 nm, medidos à temperatura $T=90$ K.

5.2.3 Medidas de XMCD

Foram feitas medidas de dicroísmo circular magnético de raios-X (XMCD) nas bicamadas NiO(35nm)/NiFe(t) com $t = 1; 2; 3; 4; 5$ e 10 nm, à temperatura ambiente, no Laboratório Nacional de Luz Síncrotron-LNLS, conforme descrito no Capítulo [3]. Estas medidas foram realizadas com o objetivo de calcular a profundidade de escape dos elétrons e descrever a variação do valor do momento magnético de spin (m_{spin}) em função da espessura da camada FM.

Um passo pr vio para realizar as medidas de XMCD,   testar o grau de satura  o magn tica das amostras, para a aplica  o das regras de soma. Segundo a geometria de medi  o dos espectros de XMCD, o  ngulo de incid ncia   de 45° entre o vetor de onda do f t on incidente e o plano da amostra, e com um campo magn tico aplicado de 2 kOe. Portanto   indispens vel que as amostras fiquem em estado de satura  o magn tica em um  ngulo de 45° com rela  o ao plano do filme com campo aplicado de at  2 kOe, conforme mostrado na Figura 5.9.

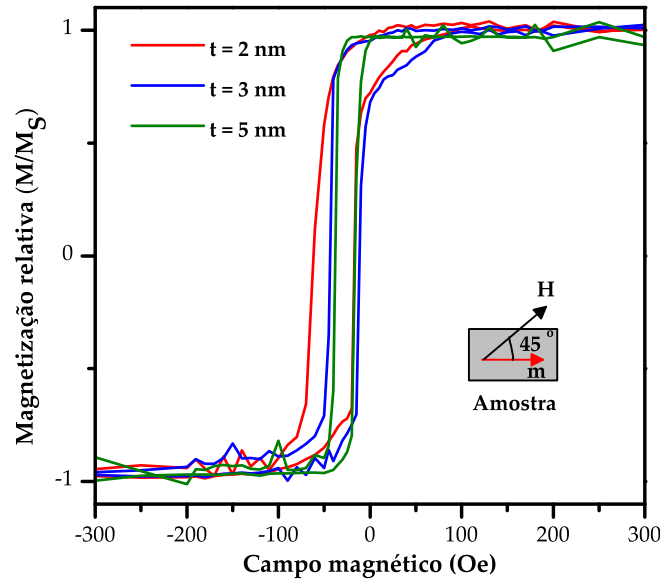


Figura 5.9: Curvas de histeresis das amostras Si<100>/NiO(35nm)/NiFe(t)/Ta(1nm) com $t=2, 3$ e 5 nm. O  ngulo entre o campo magn tico aplicado e a magnetiza  o da amostra (m) para estas medidas foi de 45° .

Sistemas padr es

Foram realizadas medidas de absor  o de raios X (XAS), na borda K do oxig nio e nas bordas $L_{2,3}$ do Ni, na amostra padr o Si<100>/NiO(35nm)/Ta(1nm); conforme mostrado na Figura [5.10].

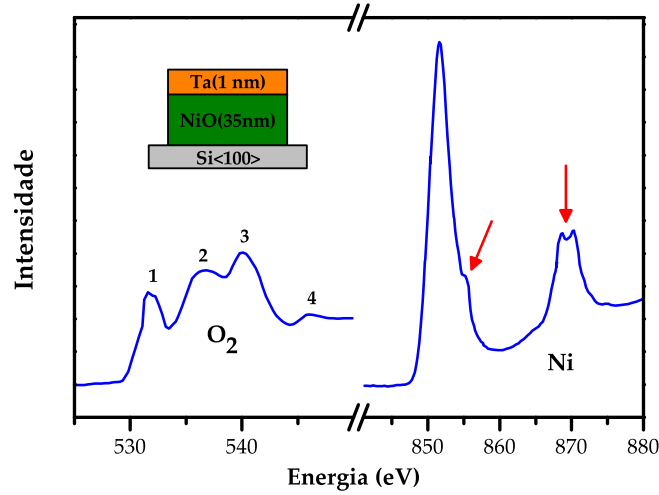


Figura 5.10: Espectro normalizado de absorção de raios X na borda K do oxigênio e $L_{2,3}$ do Ni de um filme padrão de Si<100>/NiO(35nm)/Ta(1nm)

Esta figura apresenta o espectro característico do óxido de níquel. Quer dizer, a presença de quatro picos na borda K do oxigênio, conforme [82], e as alterações na borda L_2 e L_3 , que sinalizamos com uma seta ($\rightarrow$) [83]. Os picos da borda K do oxigênio são devido a deslocamentos de energia de origem química (pico 1) e à diferenças na estrutura fina (picos 2, 3 e 4). O pico 1 corresponde à contribuição eletrônica do estado $2p$ do oxigênio ao Ni metálico e esta contribuição está relacionada com o grau de covalência² que existe neste óxido, onde os íons divalentes do Ni tem uma configuração octaédrica rodeada por seis íons de O^{2-} . Os picos 2, 3 e 4 são originados pela hibridização do estado $2p$ do oxigênio com os estados $4s$ e $4p$ do Ni.

A forma da linha da borda $L_{2,3}$ de Ni é determinada pelas transições dipolares permitidas desde o estado inicial $2p^6 3d^N$ ao estado final $2p^5 3d^{N+1}$ com $N = 8$ para um íon de Ni divalente, estas transições dependem fortemente das interações de Coulomb, troca e do campo cristalino. A natureza covalente deste é responsável pela interação de supertroca $Ni - O - Ni$.

²A ligação covalente é caracterizada pelo compartilhamento de um ou mais pares de elétrons entre átomos, causando uma atração mútua entre eles, que mantém a molécula resultante unida. Átomos tendem a compartilhar elétrons de modo que suas camadas eletrônicas externas sejam preenchidas e eles adquiram uma distribuição eletrônica mais estável.

Na Figura [5.11] são apresentados os espectros normalizados de absorção de raios X com os respectivos espectros XMCD, medidos nas bordas $L_{2,3}$ do (a) Ni e (b) Co, nas amostras padrões Si<100>/Ni(30nm)/Ta(1nm) e Si<100>/Co(40nm)/Ta(1nm), respectivamente. Uma comparação pode ser feita entre os espectros de Ni mostrados nas Figuras [5.11-a] e [5.10], a borda $L_{2,3}$ apresenta características distintivas entre o caracter metálico e o caráter covalente, estas diferenças são devidas principalmente à interação de troca, que causa alterações na borda L_2 no espectro de NiO. Outro fato importante é a ausência de típicos espectros de óxidos na Figura [5.11], este fato é importante pois reflete a continuidade da camada de Ta evitando a oxidação das camadas metálicas que ela protege.

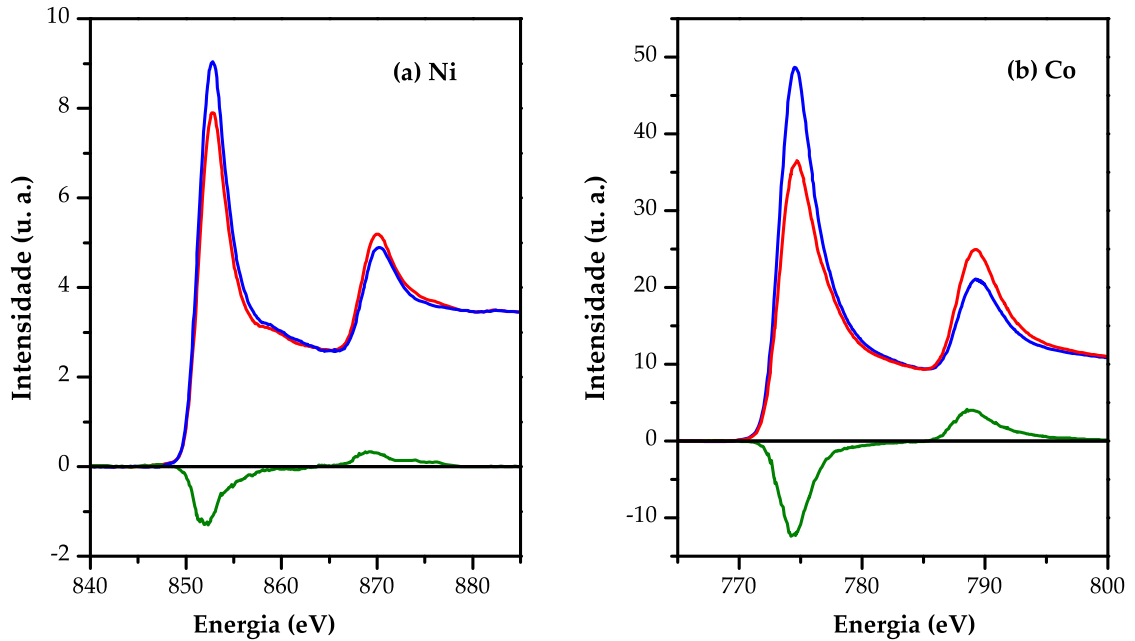


Figura 5.11: Espectros normalizados de absorção de raios X (XAS) e de XMCD nas bordas $L_{2,3}$ do (a) Ni e (b) Co de um filme padrão de Si<100>/Ni(30nm)/Ta(1nm) e Si<100>/Co(40nm)/Ta(1nm), respectivamente.

Na Figura [5.12] são apresentados os espectros normalizados de absorção de raios X com os respectivos espectros XMCD, medidos nas bordas $L_{2,3}$ do (a) Fe e (b) Ni, na amostra padrão Si<100>/NiFe(50nm)/Ta(1nm). De acordo com as Figuras [5.11] e [5.12], as linhas de cor vermelha (—) representam os espectros medidos com campo magnético anti-paralelo ao vetor de onda do fóton incidente (μ^-), enquanto que as linhas de cor azul (—) representam os espectros medidos com campo paralelo (μ^+). A linha cor verde (—) representa o espectro de dicroísmo ($\mu^+ - \mu^-$). Estes espectros de absorção de raios X foram normalizados pela intensidade absorvida de uma fina tela de ouro que fica na frente da amostra.

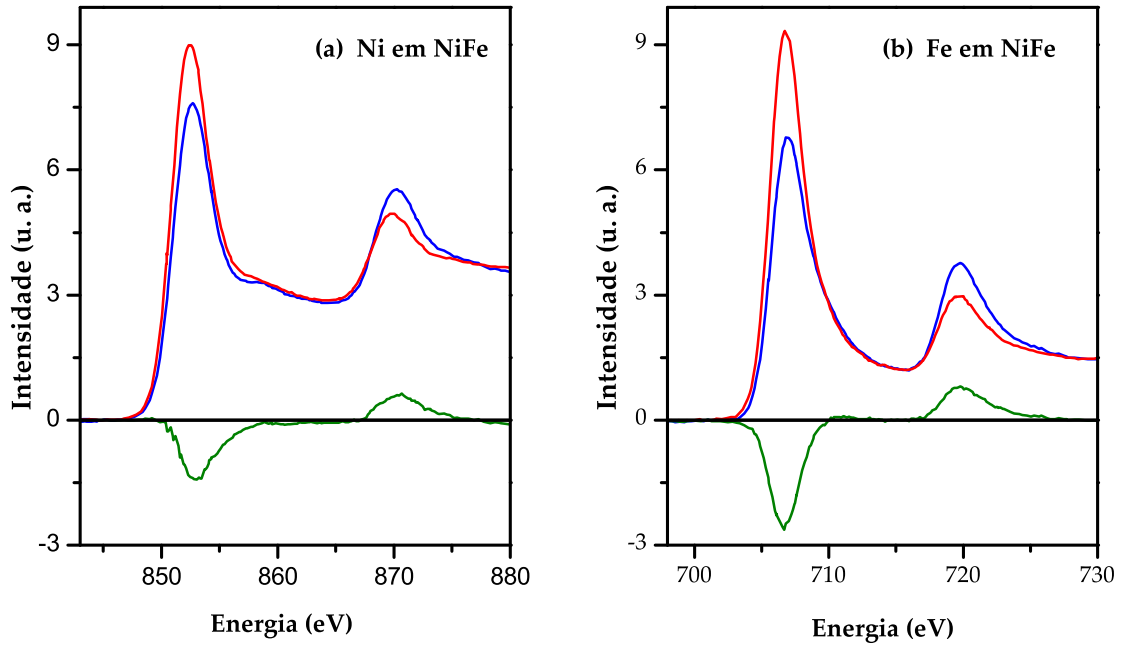


Figura 5.12: Espectros normalizados de absorção de raios X (XAS) e de XMCD nas bordas $L_{2,3}$ do (a) Fe e (b) Ni de um filme padrão de Si<100>/NiFe(50nm)/Ta(1nm).

A partir das análises dos espectros de XMCD, é possível calcular o grau de polarização circular do feixe de raios X incidente na amostra. Assim, utilizando-se o valor do número de buracos n_h para os elementos Fe, Ni na liga NiFe e os elementos puros Fe, Ni e Co, dados na Tabela [3.2], foi calculado o momento magnético orbi-

tal (m_{orb}) e o momento magnético de spin (m_{spin}); que são apresentados na Tabela [5.5]. Os valores calculados para o momento de spin (m_{spin}) estão próximos dos valores reportados na literatura, [56, 84, 85], enquanto que os valores correspondentes ao momento magnético orbital (m_{orb}) apresentam valores muito diferentes aos calculados nas mesmas referências. Este fato é causado pela baixa sensibilidade do equipamento de medição, como foi reportado por Miguel Tafur *et al* [44, 43]. Portanto, daqui para diante não faremos maior referência ao momento magnético orbital (m_{orb}), por não ser um resultado confiável. Os resultados do momento magnético orbital (m_{orb}) e do momento magnético de spin (m_{spin}), dados na Tabela [5.5], foram calculados com grau de polarização circular $P_C=0.80$ ficando constante para todas as medidas de dicroísmo realizadas [58].

Amostra padrão	m_{orb} ($\frac{\mu_B}{atomo}$)	m_{spin} ($\frac{\mu_B}{atomo}$)
Fe em Si<100>/NiFe(50nm)/Ta(1nm)	$0,48 \pm 0,08$	$2,72 \pm 0,07$
Ni em Si<100>/NiFe(50nm)/Ta(1nm)	$0,13 \pm 0,09$	$0,76 \pm 0,06$
Ni em Si<100>/Ni(30nm)/Ta(1nm)	$0,15 \pm 0,08$	$0,63 \pm 0,07$
Co em Si<100>/Co(40nm)/Ta(1nm)	$0,3 \pm 0,06$	$1,62 \pm 0,08$

Tabela 5.5: Momento magnético orbital m_{orb} e momento magnético de spin m_{spin} para os elementos Fe e Ni na liga NiFe e os elementos puros Ni e Co; obtido através das regras de soma. Estes valores foram calculados utilizando o grau de polarização linear $P_C=0,75$.

Sistema NiO/NiFe(t)

Para determinar o perfil de profundidade e a seguir calcular a profundidade de escape dos electrons³ foram realizadas medidas de absorção de raios X na estrutura Si<100>/NiO(35nm)/NiFe(t)/Ta(1nm) com $t_{NiFe} = 1; 3; 5; 7$ e 10 nm. Na Figura [5.13] mostramos os espectros de absorção de raios X normalizados, onde pode-se observar a variação da intensidade na borda $L_{2,3}$ do Fe, conforme a espessura da camada de NiFe diminui.

³Uma análise detalhada do procedimento de cálculo do perfil de profundidade pode ser encontrado no apêndice A da referência [42], tese de doutorado de V. P. Nascimento, realizado neste mesmo laboratório.

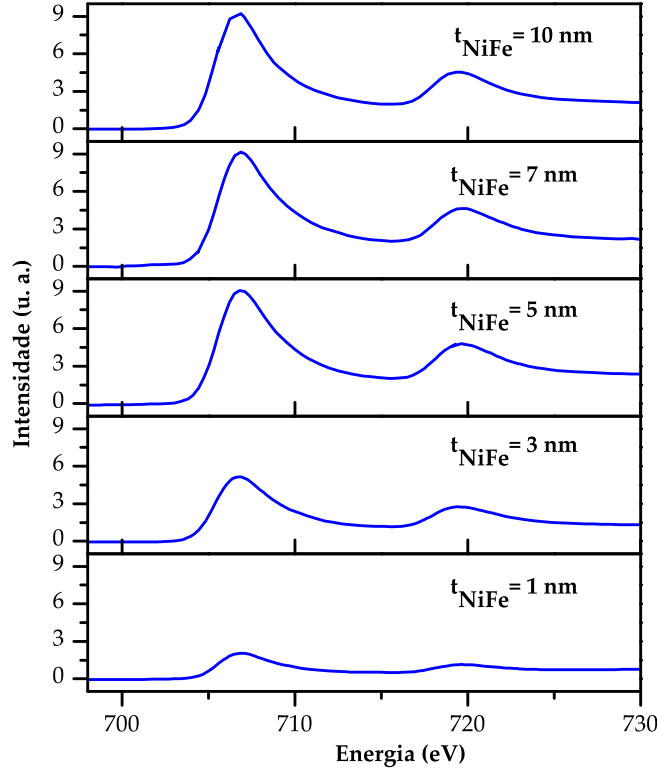


Figura 5.13: Espectros normalizados de absorção de raios X (XAS) nas bordas $L_{2,3}$ do Fe na estrutura Si<100>/NiO(35nm)/NiFe(t)/Ta(1nm) com $t_{NiFe} = 1; 3; 4; e 10$ nm.

Na Figura [5.14] mostramos o valor da razão I_{Fe}/I_o , da máxima intensidade da borda L_3 do Fe em função da espessura da camada de NiFe, onde I_{Fe} é a intensidade de absorção na espessura desejada da camada FM e I_o é a intensidade da amostra padrão de Si<100>/NiFe(50nm)/Ta(1nm). A partir da análise desta figura é possível determinar a profundidade de escape dos elétrons, que em nosso caso foi de $\delta = 5$ nm. Esta magnitude será de utilidade na análise dos resultados de dicroísmo, já que nos dá uma idéia da região de abrangência dos elétrons excitados no interior da amostra.

Como foi dito anteriormente, após cada medida de XAS foram feitas medidas de XMCD, e através das regras de soma, dadas nas Equações [3.24], foi calculado o momento magnético de spin (m_{spin}) tanto do Fe como do Ni, os quais estão listados na Tabela [5.6].

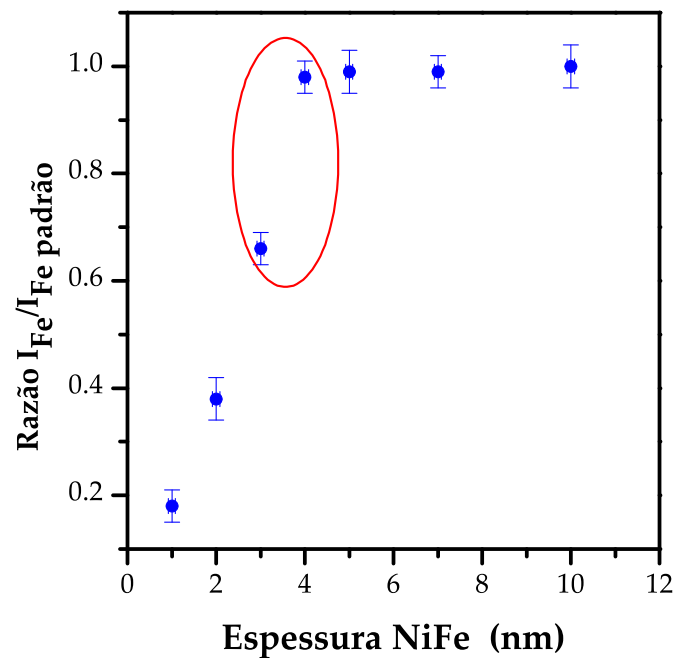


Figura 5.14: Razão $I_{Fe}/I_{o\text{ padrão}}$ na borda L_3 do Fe na estrutura Si<100>/NiO(35nm)/NiFe(t)/Ta(1nm) com $t = 1; 2; 3; 4; 5; 7$ e 10 nm.

Espessura NiFe (nm)	Fe ($\frac{\mu_B}{\text{atomo}}$)	Ni ($\frac{\mu_B}{\text{atomo}}$)
$1 \pm 0,08$	$2,39 \pm 0,09$	$0,63 \pm 0,06$
$2 \pm 0,08$	$2,41 \pm 0,09$	$0,63 \pm 0,05$
$3 \pm 0,08$	$2,44 \pm 0,09$	$0,64 \pm 0,04$
$4 \pm 0,08$	$2,70 \pm 0,07$	$0,69 \pm 0,03$
$5 \pm 0,08$	$2,68 \pm 0,07$	$0,68 \pm 0,02$
$7 \pm 0,08$	$2,69 \pm 0,08$	$0,69 \pm 0,03$
$10 \pm 0,08$	$2,71 \pm 0,08$	$0,69 \pm 0,04$

Tabela 5.6: Momento magnético de spin m_{spin} para os elementos Fe e Ni, na estrutura Si<100>/NiO(35nm)/NiFe(t)/Ta(1nm) com $t = 1; 2; 3; 4; 5; 7$ e 10 nm.

Na Figura [5.15] mostramos a variação de m_{spin} do (a) Fe e (b) Ni, em função da espessura da camada de NiFe. A linha pontilhada representa o valor calculado a partir de uma amostra padrão Si<100>/NiFe(50nm)/Ta(1nm) que está em boa concordância com o valor do m_{spin} calculado por Kunes *et. al.* [56], dado na Tabela [3.2]. A boa concordância do momento de spin, entre os valores calculados neste trabalho e os obtidos por Kunes *et. al.*, somente é mantida até $t = 4nm$. Para espessuras da camada de NiFe menores, entre 1 e 3 nm, m_{spin} tem seu valor reduzido com respeito ao valor de volume.

A partir do conhecimento da profundidade de escape dos elétrons, $\delta = 5nm$, é fácil identificar as regiões que contribuem para o valor do momento de spin. Assim, para espessuras da camada de NiFe entre 4 e 10 nm, somente a camada de NiFe tem contribuição ao magnetismo, resultando m_{spin} próximo ao valor do sólido. Para $t = 1$; 2; e 3 nm a diminuição do m_{spin} é devido tanto a contribuição da camada

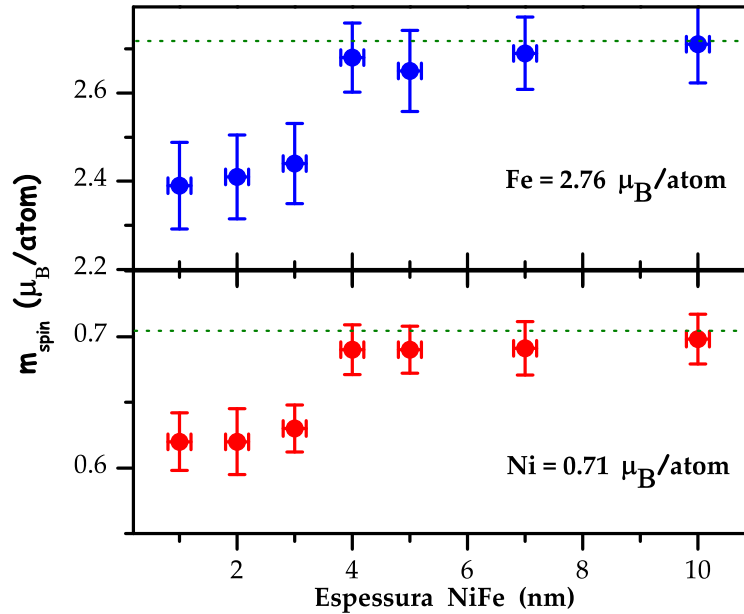


Figura 5.15: Momento magnético de spin (m_{spin}) do (a) Fe e (b) Ni em função da espessura da camada de NiFe na amostra Si<100>/NiO(35nm)/NiFe(10nm)/Ta(1nm). As linhas pontilhadas representam os valores de m_{spin} do Fe e Ni de uma camada de 50 nm de NiFe depositado sobre Si<100>.

antiferromagnética como as rugosidades. Assim, m_{spin} do Fe resulta menor devido a formação de ligas AF, enquanto que o valor do m_s do Ni não apresenta muita variação. Já é conhecido que a formação de ligas interfaciais, durante o processo de deposição vão conduzir a uma diminuição do valor do momento magnético no NiFe [44, 15].

Um fato interessante, visto em todos os resultados de dicroísmo, é a contribuição desprezível das interfaces NiFe/Ta, Ni/Ta e Co/Ta ao magnetismo nesta região. Em todos os casos analisados, o valor do m_{spin} sempre resultou próximo do seu valor calculado teoricamente [56]. Assim, de acordo com os resultados de reflectividade para a interface NiFe/Ta, esta região apresenta uma interface suave, conforme a Tabela [5.2]. Yu *et. al.* relatam a existência de reações químicas nesta interface e calculam uma camada magnética morta de $\delta = 1.6$ nm [86], valor alto para espessura da camada morta comparado com um valor menor em nosso caso, em torno de $\delta = 0,3$ nm, [87]. A partir destes resultados, fica claro que a contribuição ao magnetismo é originada tanto nas camadas AF e FM, bem como na interface do sistema NiO/NiFe.

5.3 Inserção da Camada Não-Magnética

Nas seções anteriores nos dedicamos a caracterizar a bicamada NiO/NiFe com o propósito de obter um sistema bem comportado, de modo que as propriedades e os efeitos magnéticos próprios deste sistema estejam em boa concordância com os reportados na literatura. Assim, após este processo, escolhemos a estrutura seguinte Si<100>/NiO(35nm)/NiFe(3nm)/Ta(1nm), por fornecer efeitos magnéticos interessantes e por ter a espessura ótima da camada FM que nos permita desenvolver medidas de dicroísmo que inclua a interface NiO/NiFe.

O estudo da interação de troca interfacial em sistemas do tipo AF/FM, é um tema de debate. É um fato conhecido que a magnitude do H_{EB} diminui com o aumento da camada FM, indicando a natureza interfacial deste efeito, porém, surge também a questão se esta interação é de longo alcance. Para responder a esta pergunta, a alternativa foi depositar uma camada de natureza não magnética e de espessura variável, com o intuito de separar as camadas FM e AF e estudar a interação de longo alcance através da camada NM.

Para descrever a dependência do campo de polarização de troca com a espessura da camada NM, Gokêmeijer *et al.* [9] sugeriu um modelo tipo exponencial da forma seguinte:

$$H_{EB} = H_o \frac{e^{(-t_{NM}/L)}}{t_{NM}^n}, \quad (5.3)$$

onde, n é um número inteiro e L é definida como o comprimento de decaimento característico e H_o é o campo de polarização de troca sem camada NM. Assim, para $n = 2$, este tipo de decaimento exponencial é usado com sucesso para descrever o acoplamento de troca entre as camadas ferromagnéticas em sistemas multicamadas do tipo FM/NM/FM. O valor do L pode ser usado como uma medida do alcance do acoplamento interfacial.

Utilizamos como camada NM os elementos Cu e Cr devido ao fato que apresentam propriedades condutoras, e seu uso em sistemas de multicamadas magnéticas é abrangente. Na Tabela [5.7] mostramos algumas das propriedades destes elementos.

Propriedade	Cu	Cr
Estrutura	FCC	BCC
Parâmetro de rede	0,36 nm	0,29 nm
Condutividade elétrica	$0,58 \times 10^8 \Omega^{-1}m^{-1}$	$7,8 \times 10^6 \Omega^{-1}m^{-1}$
Densidade	8920 kgm^{-3}	7190 kgm^{-3}
Condutividade térmica	$400 \text{ Wm}^{-1}K^{-1}$	$93,7 \text{ Wm}^{-1}K^{-1}$

Tabela 5.7: Algumas das propriedades dos metais não magnéticos Cu e Cr.

5.4 Sistema NiO/Cu/NiFe

Nesta seção descrevemos a variação das propriedades estruturais e magnéticas, de trincamadas NiO/Cu/NiFe. Uma camada de Cu junto com NiFe tem sido muito usada em sistemas de multicamadas magnéticas [88], bem como nas estruturas do tipo válvula de spin [4]. Este metal de transição (Cu) além de possuir uma ótima propriedade condutora, possui também a mesma estrutura cristalina do NiFe, cúbica simples, e o parâmetro de rede destes dois materiais são próximos⁴. A Figura [5.16] ilustra a estrutura destes filmes onde variamos a espessura da camada de cobre.

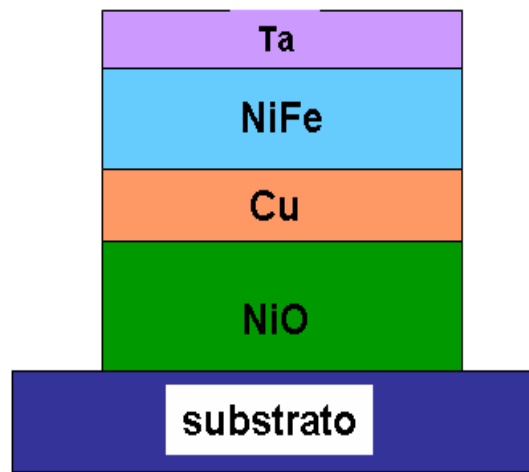


Figura 5.16: Desenho ilustrativo do sistema Si/NiO/Cu/NiFe/Ta.

5.4.1 Caracterização estrutural

Na Figura [5.17] apresentamos as curvas de reflectividade das amostras Si<100>/NiO(35nm)/Cu(t)/NiFe(3)/Ta(1nm) com $t = 0,5; 0,7; 1; 1,5; 2; 3; e 5$ nm, com seus respectivos ajustes.

Na Tabela [5.8] mostramos a magnitude das rugosidades nas interfaces NiO/Cu e Cu/NiFe na estrutura Si<100>/NiO(35nm)/Cu(t)/NiFe(3)/Ta(1nm) obtidos através do ajuste com o programa *WinGixa*. A partir dos valores fornecidos nesta tabela, podem-se extrair importantes informações sobre as duas interfaces principais.

⁴NiFe: $a = 0,35$ nm e Cu: $a = 0,36$ nm.

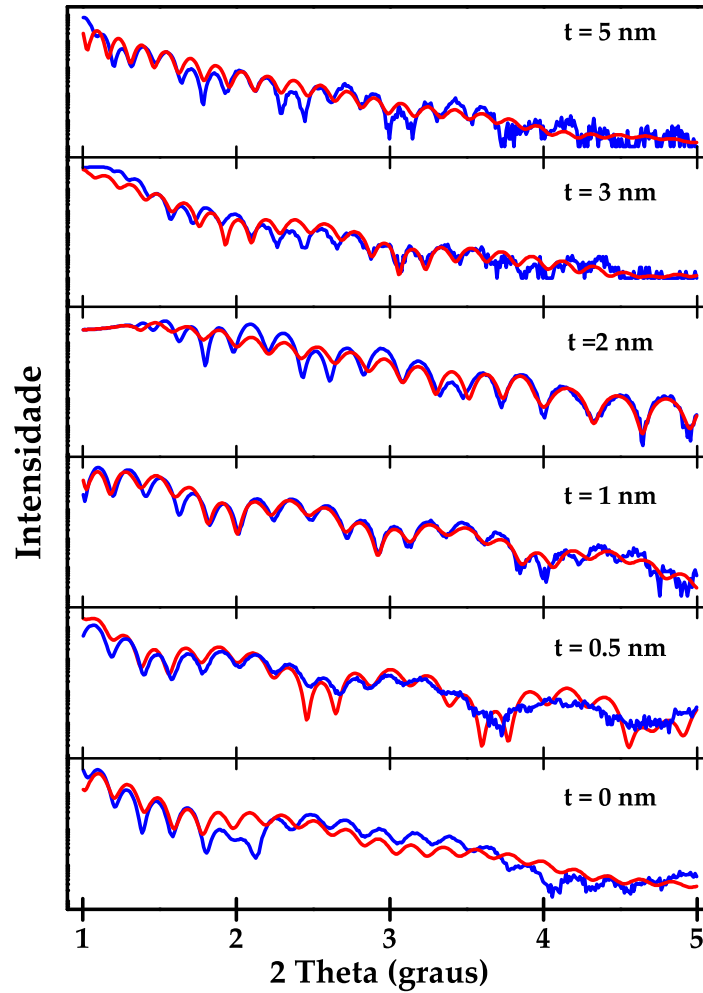


Figura 5.17: Curvas de reflectividade experimental (—) e o respectivo ajuste representativa (—) do sistema NiO(35nm)/Cu(t)/NiFe(3nm)/Ta(1nm) com $t = 0$; 1; 2; 3; e 5 nm.

Analisando a primeira interface NiO/Cu, pode-se notar que a inserção da camada de Cu resulta em interfaces com rugosidades menores, quando comparada ao sistema sem camada NM. Este fato se explica a partir de cálculos de energia, devido a baixa probabilidade de formação de reações químicas na interface NiO/Cu, a formação do óxido AF CuO é termodinamicamente desfavorável, e a entalpia de formação do NiO é muito maior do que CuO ⁵. A outra interface Cu/NiFe é muito conhecida, e bem

⁵ $\Delta H_{NiO} = 382 kJ/mol^{-1}$ e $\Delta H_{CuO} = 269 kJ/mol^{-1}$

Espessura Nominal Cu (nm)	Interface 1 NiO/Cu (nm)	Interface 2 Cu/NiFe (nm)	Espessura Real Cu (nm)
0,5 ± 0,03	0,09 ± 0,02	0,06 ± 0,01	0,6 ± 0,03
0,7 ± 0,03	0,10 ± 0,02	0,06 ± 0,02	0,9 ± 0,04
1,0 ± 0,03	0,10 ± 0,03	0,06 ± 0,01	1,3 ± 0,05
1,5 ± 0,03	0,08 ± 0,02	0,05 ± 0,02	1,7 ± 0,05
2,0 ± 0,03	0,11 ± 0,03	0,06 ± 0,02	2,2 ± 0,05
3,0 ± 0,03	0,08 ± 0,02	0,05 ± 0,01	3,2 ± 0,04
5,0 ± 0,03	0,11 ± 0,02	0,05 ± 0,02	5,3 ± 0,05

Tabela 5.8: Espessuras e rugosidades nas interfaces NiO/Cu e Cu/NiFe obtidas mediante o ajuste das curvas de reflectividade com o programa *WinGixa*.

caracterizada na minha tese de mestrado realizada neste mesmo laboratório [44]. Os resultados mostrados na Tabela [5.8] nos dão a idéia de uma interface bem definida com baixas rugosidades, sistema imiscível, assim, de acordo com o trabalho de Yu *et al.*[86], a existência de reações químicas que causem rugosidades ou a evidência de uma camada morta nesta interface é mínima ou improvável.

Na Figura [5.18] apresentamos a difração de raios X da estrutura Si<100>/NiO(35nm)/Cu(*t*)/NiFe(3nm)/Ta(1nm) com *t* = 0,5; 0,7; 1; 1,5; 2; 3; e 5 nm. Neste gráfico pode-se notar os picos de difração característicos do NiO, NiFe, conforme foi explicado anteriormente, e o aparecimento do pico de difração da camada de Cu em $2\theta = 50,8^\circ$ na direção <200>, sendo que este pico é visível a partir de *t* = 2nm.

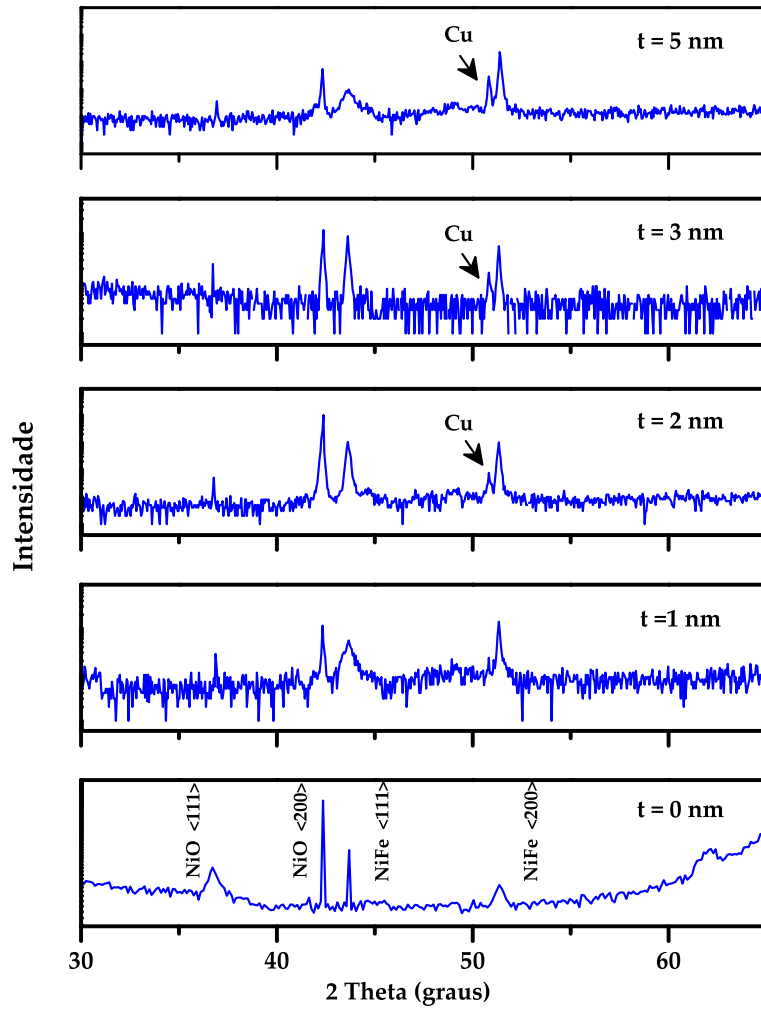


Figura 5.18: Difração de raios X do sistema $\text{NiO}(35\text{nm})/\text{Cu}(t)/\text{NiFe}(3\text{nm})/\text{Ta}(1\text{nm})$ com $t = 0; 1; 2; 3; \text{ e } 5$ nm.

5.4.2 Caracterização magnética

Foram feitas medidas de magnetização nas tricamadas $\text{NiO}(35\text{nm})/\text{Cu}(t)/\text{NiFe}(3\text{nm})$, com $t = 0, 5; 0, 7; 1; 1, 5; 2; 3 \text{ e } 5$ nm; à $T = 90\text{K}$, com o campo magnético aplicado paralelo ao plano dos filmes. Como pode ser visto na Figura [5.19], existe uma diminuição progressiva de H_{EB} e de H_C em função da camada de Cu. Estes ciclos de histerese foram normalizados seguindo o mesmo procedimento conforme relatado na seção 5.2.2.

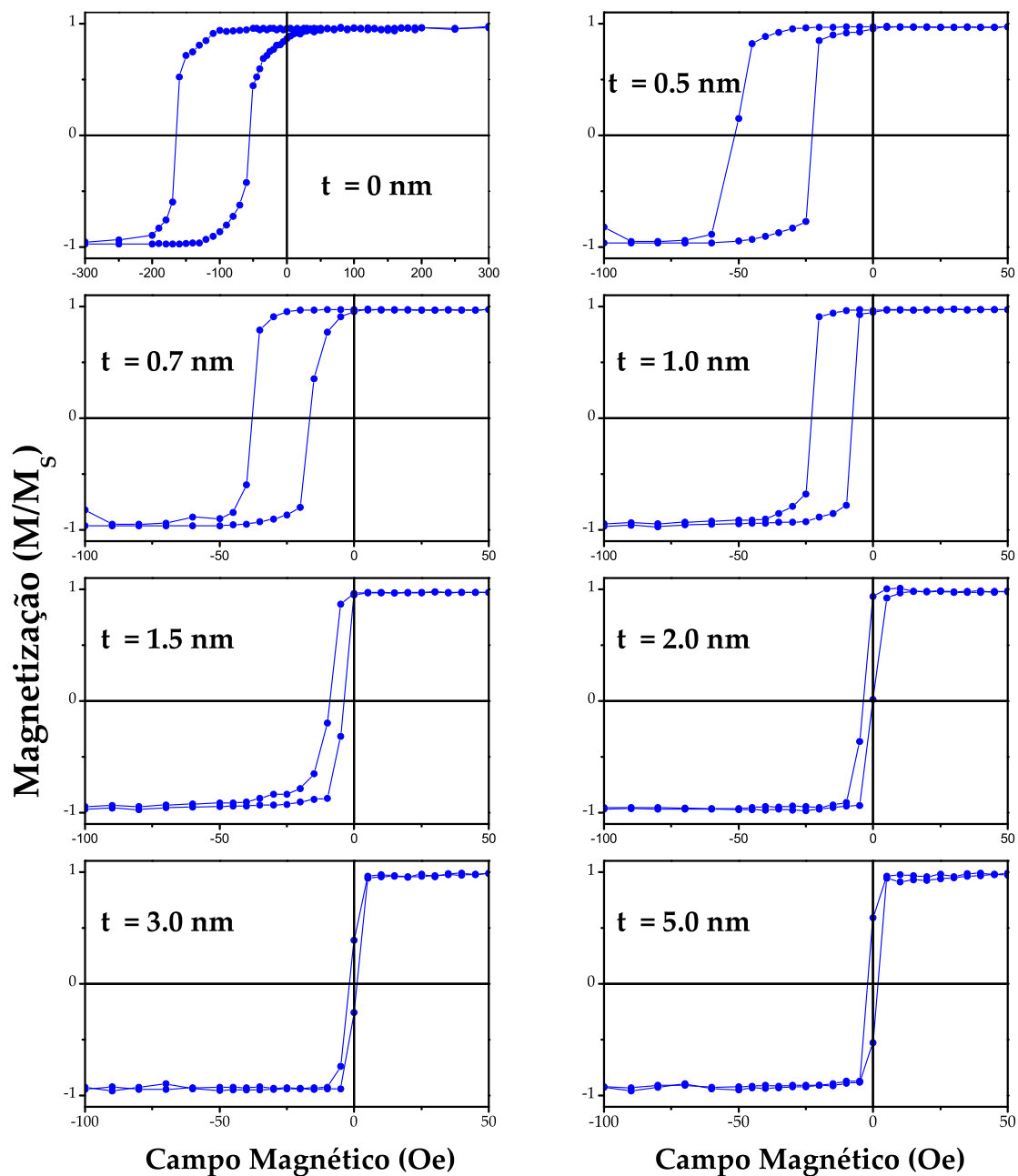


Figura 5.19: Ciclos de histerese normalizadas da estrutura $\text{NiO}(35\text{nm})/\text{Cu}(t)/\text{NiFe}(3\text{nm})/\text{Ta}(1\text{nm})$ com $t = 0,5; 0,7; 1; 1,5; 2; 3; e 4\text{ nm}$, medidos à temperatura $T=90\text{ K}$. Note a escala diferente para $t = 0\text{ nm}$

Na Tabela [5.9], apresentamos os valores do campo de polarização de troca (H_{EB}) e do campo coercitivo (H_C) obtidos a partir das curvas magnetização mostradas na Figura [5.19].

t (nm)	H_{EB} (Oe)	H_C (Oe)
0	$112 \pm 2,1$	$54,3 \pm 2,1$
$0,5 \pm 0,03$	$35,8 \pm 1,5$	$28,6 \pm 1,4$
$0,7 \pm 0,03$	$28,5 \pm 1,2$	$10,6 \pm 1,1$
$1,0 \pm 0,03$	$16,7 \pm 1,2$	$7,4 \pm 1,1$
$1,5 \pm 0,03$	$6,3 \pm 1,0$	$2,6 \pm 1,0$
$2,0 \pm 0,03$	$1,8 \pm 0,9$	$1,1 \pm 0,8$
$3,0 \pm 0,03$	$0,8 \pm 0,7$	$0,5 \pm 0,4$
$5,0 \pm 0,03$	$0,0 \pm 0,1$	$0,1 \pm 0,1$

Tabela 5.9: Valores do H_{EB} e do H_C , extraídos das curvas de magnetização, do sistema NiO(35nm)/Cu(t)/NiFe(3nm))/Ta(1nm) com $t = 0, 5; 0, 7; 1; 1, 5; 2; 3; e 4$ nm

Na Figura [5.20] mostramos o comportamento do campo de polarização de troca H_{EB} em função da espessura da camada de Cu, sem a presença de um comportamento oscilatório do H_{EB} em função da espessura da camada de Cu. O aumento da espessura da camada separadora de Cu, causa uma diminuição monótona do campo de polarização de troca ate uma espessura critica (t_{cr}), além de qual esta interação desaparece, o valor calculado desta espessura para o Cu foi de $t_{cr} = 2.0 \pm 0,2$ nm. Assim, nenhuma descrição satisfatória dos dados fornecidos na Tabela [5.9] e graficadas na Figura [5.20] podem ser obtidos por uma dependência exponencial com $n = 2$, porém, usando $n = 0$ o ajuste reproduz corretamente esta dependência. O resultado obtido de $L = 0,47$ nm, está em boa concordância com o encontrado por Gökemeijer *et. al.* [9] no sistema CoO/Cu/NiFe e Gruyters *et. al.* [12] no sistema CoO/Cu/Co. Mas é pequeno quando comparado ao reportado por Mewes *et. al.* $L = 0,3$ nm no sistema FeNi/Cu/FeMn relatando também um decaimento oscilatório do H_{EB} em função da espessura de Cu.

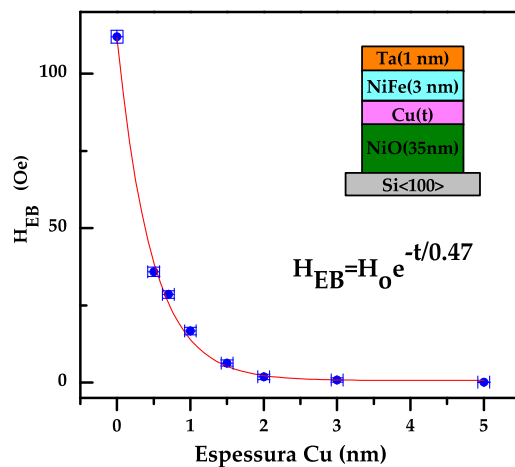


Figura 5.20: Dependência de H_{EB} com a espessura da camada NM, na estrutura NiO(35nm)/Cu(t)/NiFe(3nm)/Ta(1nm) com $t = 0,5; 0,7; 1; 1,5; 2; 3; e 5$ nm.

Na Figura [5.21] mostramos o comportamento do campo coercitivo H_C em função da espessura da camada de Cu, nós ajustamos os dados fornecidos na Tabela [5.9] e mostrados na Figura [5.21] por meio da mesma função exponencial, dada na Equação [5.4] com $n = 0$.

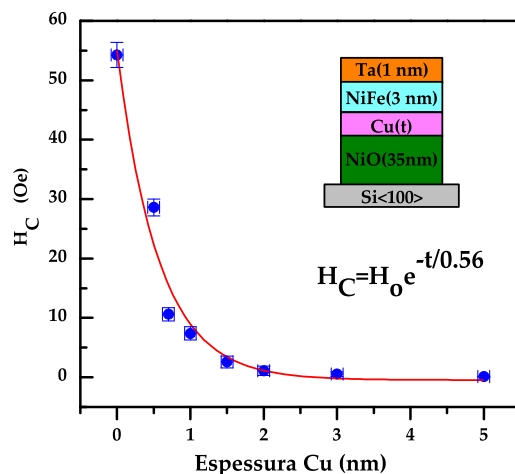


Figura 5.21: Dependência de H_C com a espessura da camada NM, na estrutura NiO(35nm)/Cu(t)/NiFe(3nm)/Ta(1nm) com $t = 0,5; 0,7; 1; 1,5; 2; 3 e 5$ nm.

5.4.3 Medidas de XMCD

Na Figura 5.22 apresentamos a variação do momento magnético de spin m_{spin} em função da camada de Cu, pode-se notar um aumento progressivo de m_{spin} conforme a espessura da camada de Cu aumenta.

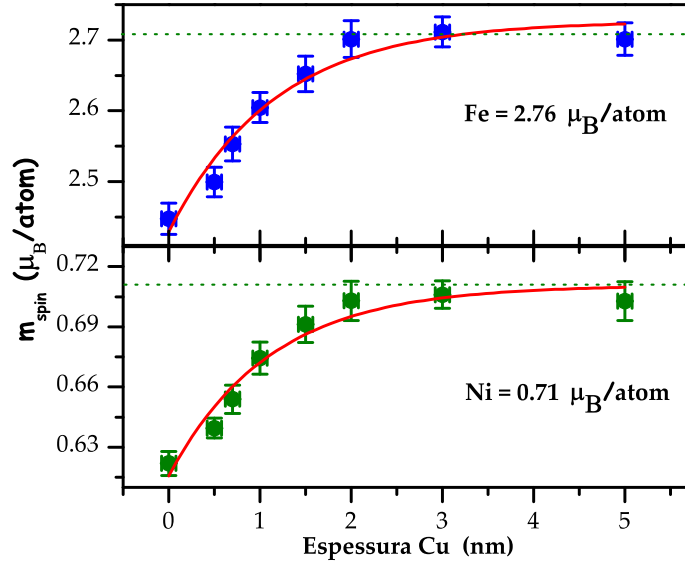


Figura 5.22: Momento magnético de spin (m_s) do (a) Fe e (b) Ni em função da espessura da camada de Cu na amostra NiO(35nm)/Cu(t)/NiFe(3nm))/Ta(1nm). As linhas pontilhadas representam os valores de m_{spin} do Fe e Ni de uma camada de 50 nm de NiFe depositado sobre Si<100>.

De acordo com os resultados das medidas de reflectividade, a interface Cu/NiFe apresentam rugosidades pequenas, a formação de ligas é mínima, por tanto, esta variação do m_{spin} deve ter sua origem em uma interação de origem interfacial, atingindo seu valor no sólido para $t > 2nm$. Esta pode ser uma indicação do alcance da interação de troca. Outro fato que pode confirmar esta idéia, é a existência de um momento induzido no Cu, conforme pode ser visto na Figura [5.23]. Neste trabalho só podemos dar evidências de um momento induzido através dos espectros de dicroísmo. Além do momento induzido no Cu, cálculos fenomenológicos predizem a redução do momento magnético na região interfacial, o qual também acontece neste caso.

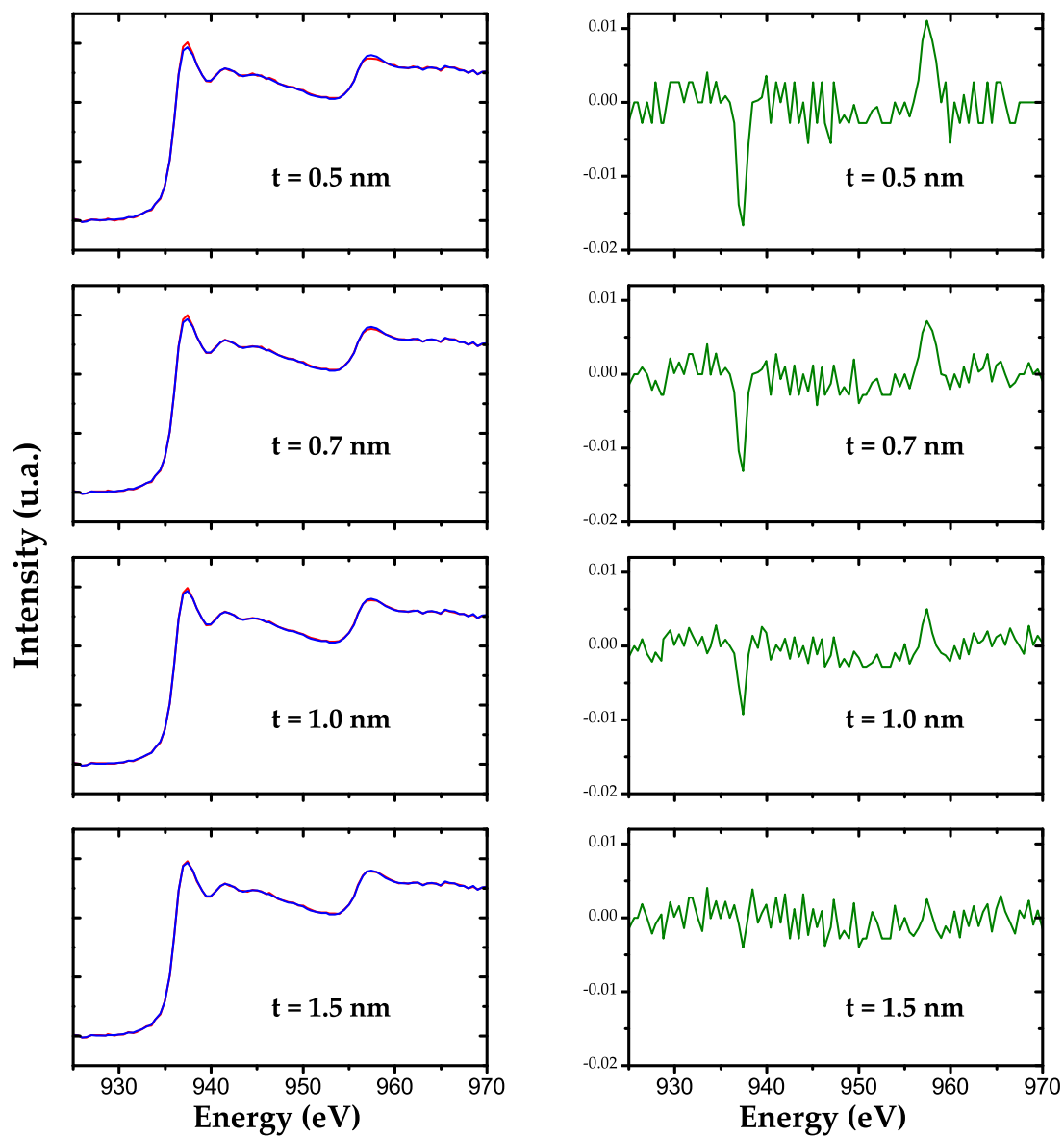


Figura 5.23: Espectros XAS e XMCD medidos nas bordas L_{2,3} de Cu da tricamada NiO(35nm)/Cu(t)/NiFe(3nm) com $t = 0,5$; $0,7$; $1,0$; e 1.5 nm.

5.5 Sistema NiO/Cr/NiFe

Nesta seção descreveremos a variação das propriedades tanto estruturais como magnéticas, induzidas por uma camada de cromo, de espessura variável, inserida no meio da bicamada NiO/NiFe. O uso de uma camada de Cr junto com NiFe tem apresentado resultados interessantes, como por exemplo a ausência de magnetoresistência gigante nas multicamadas NiFe/Cr [89]. A Figura [5.24]

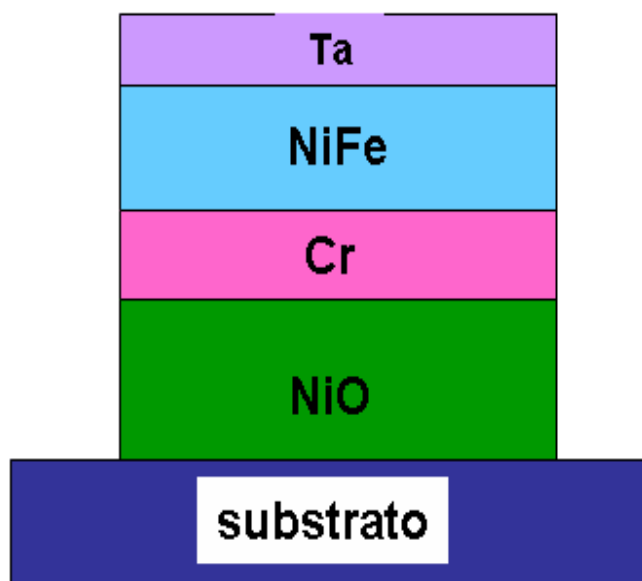


Figura 5.24: Desenho ilustrativo do sistema Si/NiO/Cr/NiFe/Ta.

5.5.1 Caracterização estrutural

Na Figura [5.25] apresentamos algumas das curvas de reflectividade das amostras Si<100>/NiO(35nm)/Cr(t)/NiFe(3)/Ta(1nm) com $t = 0; 0,5; 1; 2; 3; e 5$ nm, com seus respectivos ajustes.

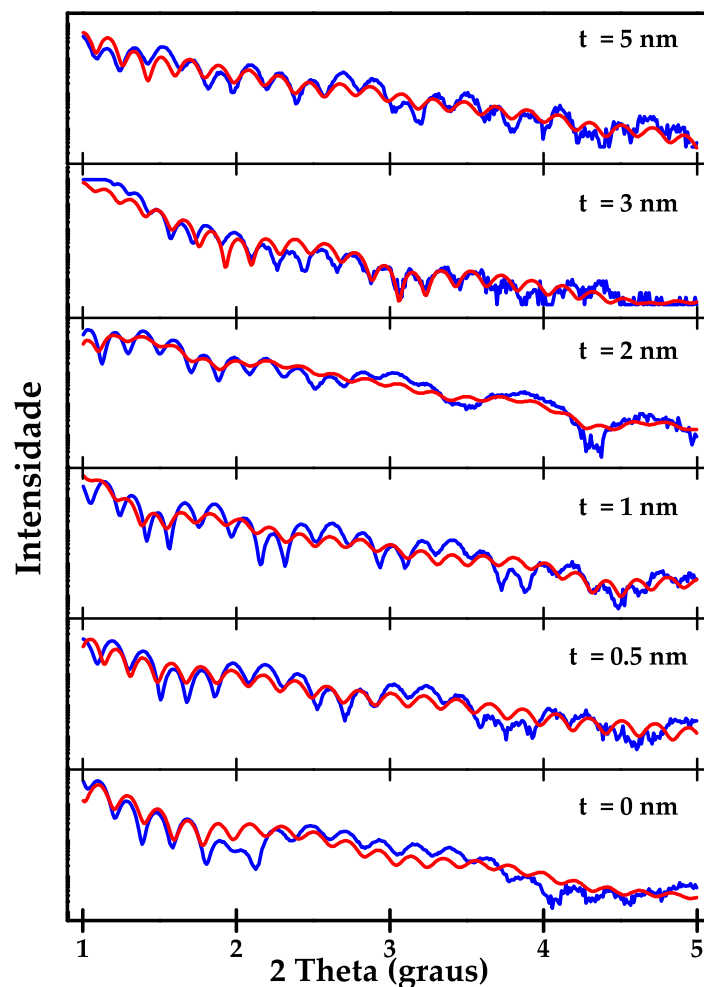


Figura 5.25: Curvas de reflectividade experimental (—) e o respectivo ajuste (—) do sistema NiO(35nm)/Cr(t)/NiFe(3nm)/Ta(1nm) com $t = 0; 1; 2; 3; e 5$ nm.

Na Tabela [5.10] estão listadas os valores das rugosidades das interfaces NiO/Cr e Cr/NiFe da estrutura Si<100>/NiO(35nm)/Cu(t)/NiFe(3)/Ta(1nm) com $t = 0, 5; 0, 7; 1; 1, 5; 2; 3$ e 5 nm, obtidos através do ajuste com o programa *WinGixa*. A partir dos dados mostrados nesta tabela, podemos dizer que a espessura real da camada é sempre maior do valor nominal.

Espessura Nominal Cr (nm)	Interface 1 NiO/Cr (nm)	Interface 2 Cr/NiFe (nm)	Espessura Real Cr (nm)
0,5± 0,05	0,25 ± 0,09	0,22 ± 0,10	0,6± 0,06
0,7± 0,05	0,23 ± 0,10	0,24 ± 0,09	0,9± 0,05
1,0± 0,05	0,23 ± 0,08	0,23 ± 0,09	1,2± 0,05
1,5± 0,05	0,24 ± 0,09	0,23 ± 0,09	1,8± 0,06
2,0± 0,05	0,23 ± 0,10	0,22 ± 0,11	2,3± 0,05
3,0± 0,05	0,22 ± 0,08	0,23 ± 0,07	3,2± 0,06
5,0± 0,05	0,22 ± 0,11	0,22 ± 0,10	5,3± 0,05

Tabela 5.10: Espessuras e rugosidades nas interfaces NiO/Cr e e Cr/NiFe obtidas mediante o ajuste das curvas de reflectividade com o programa *WinGixa*.

Analisando a primeira interface NiO/Cr, pode-se notar que o valor da rugosidade é quase constante e próximo do valor para $t = 0$ nm. Os resultados para a interface Cr/NiFe, mostrados na Tabela [5.10], nos dão indicação de uma interface rugosa quando comparada ao Cu/NiFe, este fato é devido a grande solubilidade existente entre o Cr e a liga NiFe, conduzindo a formação de uma solução sólida nesta região [90].

Na Figura [5.26] apresentamos a difração de raios X da estrutura Si<100>/NiO (35nm)/Cr(t)/NiFe(3nm)/Ta(1nm) com $t = 0; 1; 2; 3$ e 5 nm. Os picos de difração característicos das camadas de NiO e NiFe não mudam com relação ao sistema original, conforme foi descrito anteriormente. O pico correspondente à camada de Cr é visível a partir de $t = 2nm$ na posição angular $2\theta = 44,3^\circ$.

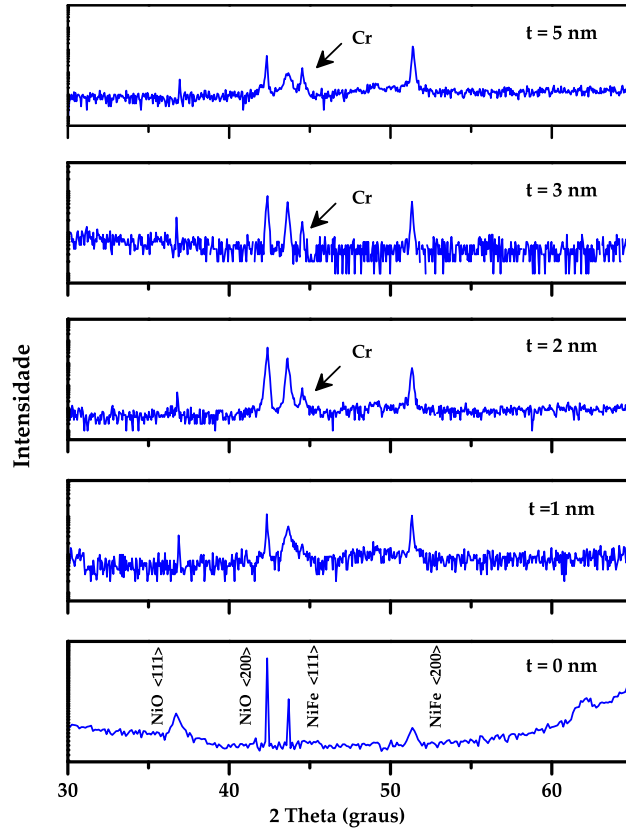


Figura 5.26: Difração de raios X do sistema $\text{NiO}(35\text{nm})/\text{Cr}(t)/\text{NiFe}(3\text{nm})/\text{Ta}(1\text{nm})$ com $t = 0; 1; 2; 3$ e 5 nm.

5.5.2 Caracterização magnética

Foram feitas medidas de magnetização nas tricamadas $\text{NiO}(35\text{nm})/\text{Cr}(t)/\text{NiFe}(3\text{nm})$, com $t = 0,5; 0,7; 1; 1,5; 2; 3; 4; 5; 7; 10; \text{ e } 15$ nm; à $T = 90\text{K}$, com o campo magnético aplicado paralelo ao plano dos filmes. Como é visto na Figura [5.27], a inserção da camada não magnética de Cr da lugar a uma rápida diminuição do campo de polarização de troca (H_{EB}) e o campo coercitivo (H_C), quando comparado ao sistema $\text{NiO}/\text{Cu}/\text{NiFe}$, conforme a espessura da camada NM aumenta. Este rápido decaimento do H_{EB} em função da espessura da camada de Cr, é devido a difusão interfacial existente na interface Cr/NiFe, resultado em um acréscimo da separação magnética da camada de NiFe, este fato é originado a partir da alta solubilidade existente entre o Cr e o NiFe.

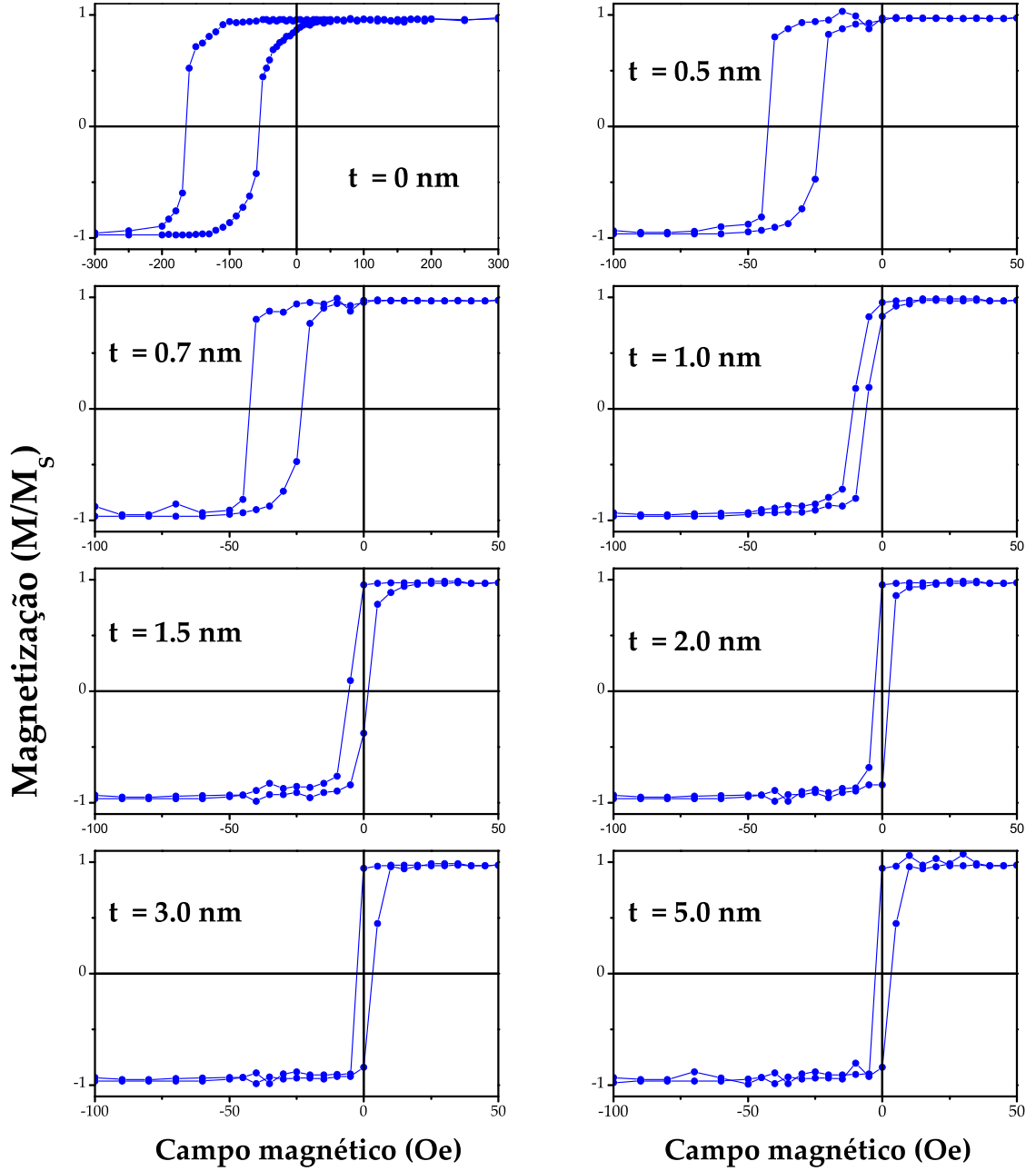


Figura 5.27: Ciclos de histerese normalizados no sistema NiO(35nm)/Cr(t)/NiFe(3nm)/Ta(1nm) com $t=0,5; 0,7; 1; 1,5; 2; 3$ e 5 nm, medidos à temperatura $T=90$ K. Note a escala diferente para $t=0$ nm

Na Tabela [5.11], apresentamos os valores do campo de polarização de troca (H_{EB}) e o campo coercitivo (H_C) obtidos a partir das curvas magnetização mostradas na Figura [5.27].

t (nm)	H_{EB} (Oe)	H_C (Oe)
0	$112 \pm 2,1$	$54,3 \pm 2,1$
$0,5 \pm 0,05$	$32,7 \pm 1,8$	$9,65 \pm 1,7$
$0,7 \pm 0,05$	$19,5 \pm 1,4$	$4,8 \pm 1,3$
$1,0 \pm 0,05$	$8,5 \pm 1,1$	$2,05 \pm 1,1$
$1,5 \pm 0,05$	$2,3 \pm 1,0$	$0,9 \pm 0,7$
$2,0 \pm 0,05$	$0,1 \pm 0,1$	$0,2 \pm 0,1$
$3,0 \pm 0,05$	$0,0 \pm 0,1$	$0,1 \pm 0,1$
$5,0 \pm 0,05$	$0,0 \pm 0,1$	$0,1 \pm 0,1$

Tabela 5.11: Valores do H_{EB} e do H_C , extraídos a partir das curvas de magnetização, no sistema NiO(35nm)/Cr(t)/NiFe(3nm)/Ta(1nm) com $t = 0,5; 0,7; 1; 1,5; 2; 3$ e 5 nm.

Na Figura [5.28] mostramos o comportamento do campo de polarização de troca H_{EB} em função da espessura da camada de Cr. Novamente, estes resultados mostrados na Figura [5.28] não indicam a presença de um comportamento oscilatório do H_{EB} dependente de t_{Cr} . O aumento da espessura da camada de Cr causa uma diminuição do campo de polarização de troca até uma espessura critica (t_{cr}) além da qual este acoplamento desaparece, o valor calculado desta espessura para o Cr foi de $t_{cr} = 1,7 \pm 0,1$. Assim, nenhuma descrição satisfatória dos dados fornecidos na Tabela [5.9] podem ser ajustados pela seguinte equação:

$$H_{EB} = H_o \frac{e^{(-t_{NM}/L)}}{t_{NM}^n}, \quad (5.4)$$

usando o valor de $n = 2$, porém, usando $n = 0$ obtemos o valor do comprimento de decaimento característico, $L = 0,4$ nm que resulta maior quando comparado ao obtido por Mewes *et al.* $L = 0,35$ nm, no sistema NiFe/Cu/FeMn, relatando também um comportamento oscilatório que esta em desacordo com o nosso resultado e com o reportado por Li *et al.* nas tricamadas NiO/Cu/NiFe [11].

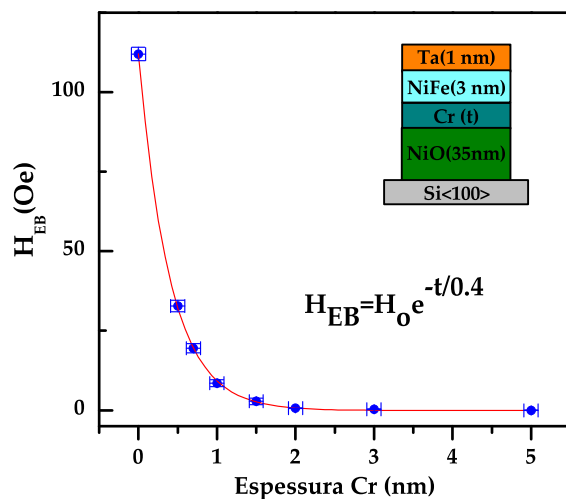


Figura 5.28: Dependência de H_{EB} com a espessura da camada de Cr, do sistema NiO(35nm)/Cr(t)/NiFe(3nm)/Ta(1nm) com $t=0,5; 0,7; 1; 1,5; 2; 3$ e 5 nm.

Na Figura [5.29] mostramos o comportamento do campo coercitivo H_C em função da espessura da camada de Cr, nos intentamos ajustar os dados fornecidos na Tabela [5.9] através da Equação [5.4], que é mostrada na figura.

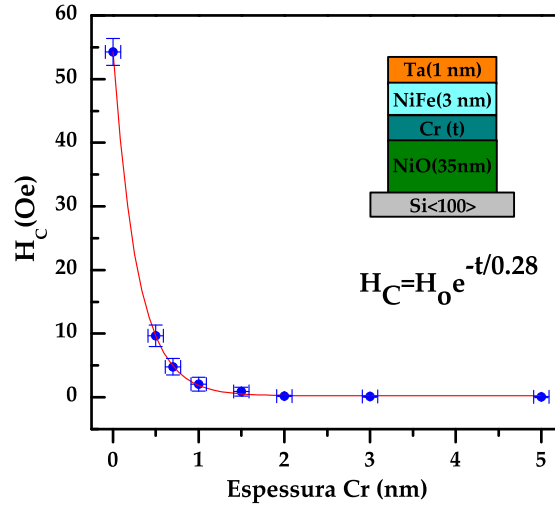


Figura 5.29: Dependência de H_C com a espessura da camada de Cr, do sistema NiO(35nm)/Cr(t)/NiFe(3nm)/Ta(1nm) com $t = 0, 5; 0, 7; 1; 1, 5; 2; 3$ e 5 nm.

5.5.3 Medidas de XMCD

Na Figura 5.30 apresentamos a variação do momento magnético de spin (m_{spin}) em função da camada de Cr, pode-se notar o progressivo aumento de m_{spin} conforme a espessura da camada de Cr aumenta.

De acordo com os resultados das medidas de reflectividade, estas interfaces resultam rugosas Cr/NiFe, a formação de ligas é favorável, assim, esta variação do m_{spin} pode ter sua origem tanto, devido à uma interação magnética de origem interfacial, é devido a formação de ligas interfaciais. Atingindo seu valor no sólido para $t > 2nm$.

Outro fato importante é a evidência de um momento induzido na interface Cr/NiFe, conforme pode ser visto na Figura [5.23], que é uma clara indicação do alcance da interação de polarização de troca.

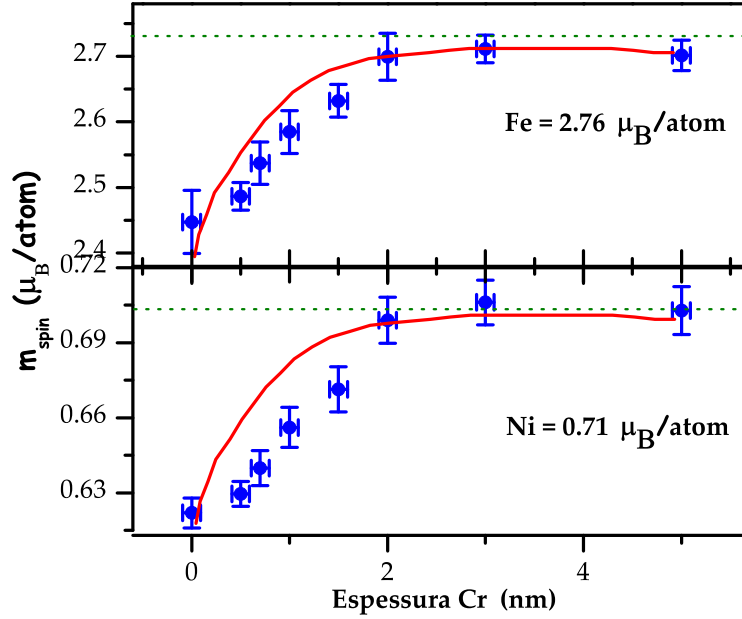


Figura 5.30: Momento magnético de spin (m_{spin}) do (a) Fe e (b) Ni em função da espessura da camada de Cr na amostra NiO(35nm)/Cr(t)/NiFe(3nm)/Ta(1nm). As linhas pontilhadas representam os valores de m_{spin} do Fe e Ni de uma camada de 50 nm de NiFe depositado sobre Si<100>.

5.6 Explicação do momento induzido no NM

O fato de ter encontrado um momento induzido na camada NM, exige uma abordagem que explique este resultado, segue a mesma explicação para a camada NM de Cr.

- Uma primeira explicação, sobre a origem do momento induzido na camada Cu e a redução do momento da camada FM, pode ser atribuída a formação de ligas, porém, a partir dos resultados de reflectividade, a formação de ligas de NiCu ou FeCu é improvável, portanto, esta hipótese não é confiável.
- Existe uma superposição das bandas eletrônicas do NiFe e do Cu próximos à interface, o que causa uma perturbação na banda eletrônica dos átomos de Cu adjacentes gerando um momento induzido na monocamada de Cu adjacente ao NiFe. Esta perturbação da monocamada vizinha mais próxima ao NiFe também perturba a segunda camada de Cu (2° vizinha do NiFe), porém de

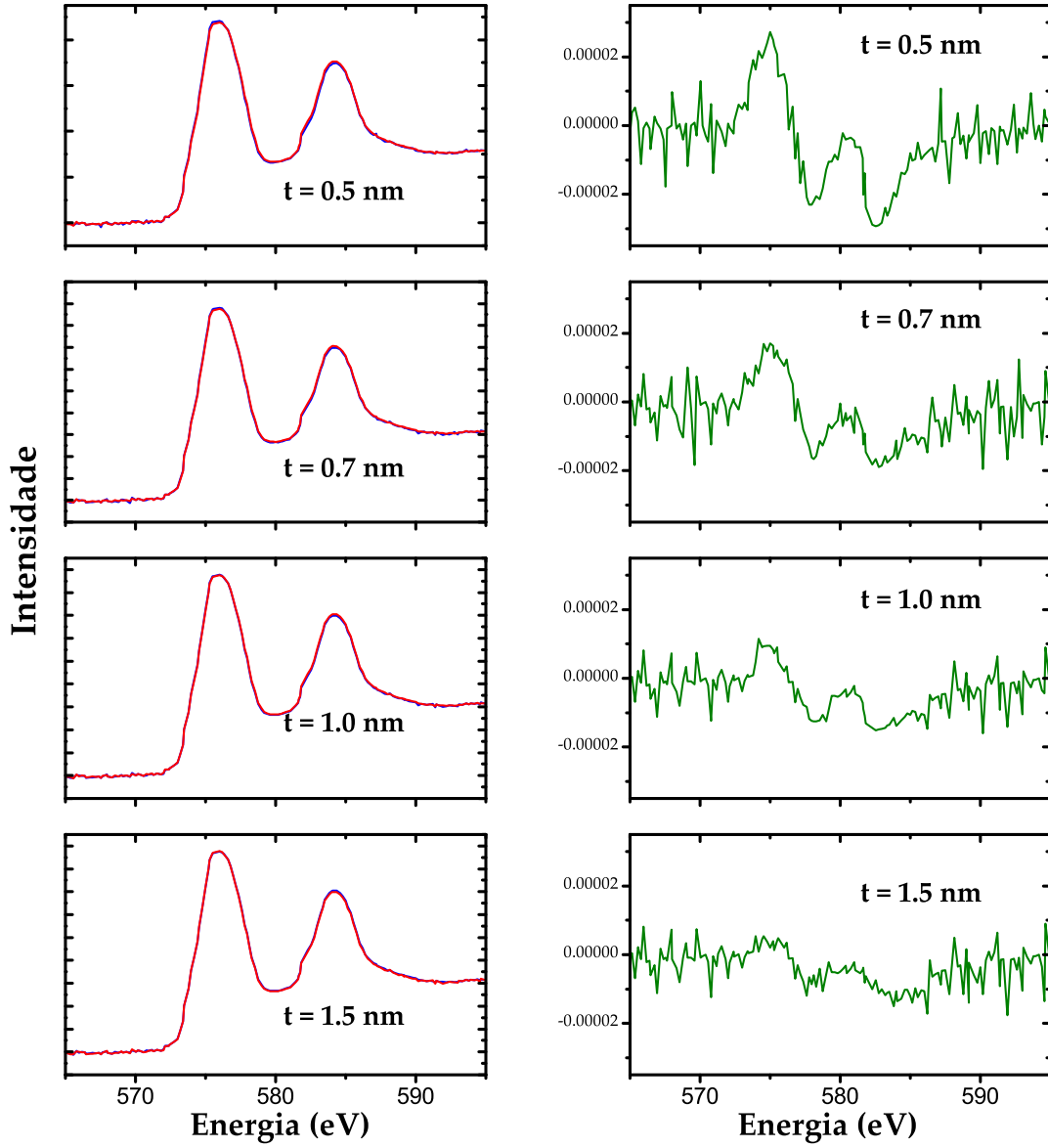


Figura 5.31: Espectros XAS e XMCD medidos nas bordas $L_{2,3}$ do Cr da tricamada $\text{NiO}(35\text{nm})/\text{Cr}(t)/\text{NiFe}(3\text{nm})$ com $t_{\text{Cr}} = 0,5; 0,7; 1,0$ e $1,5$ nm.

forma reduzida, de modo que o momento induzido na segunda camada é menor do que induzido na 1ª camada; e este decréscimo acompanha o decréscimo exponencial do H_{EB} . Para a terceira camada acontece o mesmo, quer dizer uma progressiva diminuição do momento induzido. Pelos resultados obtidos o

momento induzido só se mantém até a terceira camada, a partir daí, não existe mais momento induzido, e por isto $H_{EB} \approx 0$. Assim, quanto, mais perto da interface maior o H_{EB} , pois o momento do Cu é maior. Isto também explica a diminuição do momento do Ni e do Fe próximos a interface, pois, se houve momento induzido, deve haver uma diminuição do momento do inductor.

- Esta polarização de troca entre NiFe e NiO, via Cu, não tem nada a ver com a interação de supertroca, pois, aqui só existe acoplamento entre metais e na supertroca existe um ligante $2p$ entre os íons positivos como no caso do MnO ou NiO.

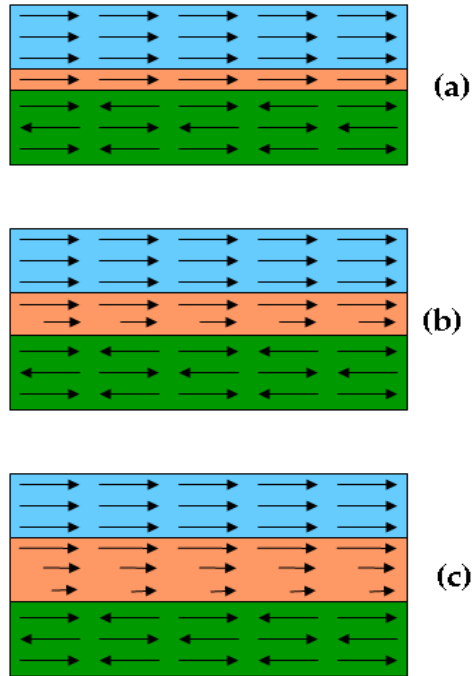


Figura 5.32: Esquema da variação do momento magnético induzido na camada NM, a magnitude deste parâmetro diminui conforme a espessura da camada NM aumenta.

Capítulo 6

Conclusões

- Nesta tese foram caracterizadas e analisadas as propriedades estruturais e magnéticas das bicamadas NiO/NiFe com o objetivo de obter um sistema bem comportado, que reproduza características bem conhecidas na literatura, com o propósito de inserir uma camada de natureza não magnética, de espessura variável, no meio destas camadas, com o intuito de observar uma interação de longo alcance do campo de polarização de troca.
- A caracterização da camada de NiO, resultou em um crescimento policristalino, onde os picos de difração mais intensos estão nas direções $\langle 111 \rangle$ e $\langle 200 \rangle$ que correspondem aos planos de spin não compensado e compensado, respectivamente. Neste trabalho, a preferência foi obter o pico de difração mais intenso na direção $\langle 200 \rangle$, já que de acordo com as pesquisas realizadas, esta direção é a que favorece um campo de polarização de troca maior.
- O crescimento da bicamada NiO/NiFe consistiu em variar a espessura da camada de NiFe mantendo constante a espessura da camada de NiO, em 35 nm. Os resultados da reflectividade de raios X obtidos fornecem uma magnitude constante da rugosidade, na interface NiO/NiFe. Este resultado reflete a importância das rugosidades, tomando em conta o modelo proposto por Malozemoff, a presença de rugosidades aleatórias nas interfaces dão origem a um campo aleatório que atua sobre os spins interfaciais. Assim, este campo aleatório gerado na interface obriga o antiferromagneto a quebrar-se em domínios. Portanto, as rugosidades no sistema NiO/NiFe tem sido identificadas como um fator relevante que vai influenciar a magnitude tanto de H_{EB} como de H_C . Os

resultados de difração de raios X indicam o crescimento das fases cristalográficas características deste sistema. Assim, o crescimento da camada de NiFe é paralelo à direção $\langle 111 \rangle$ e $\langle 200 \rangle$. Este resultado é outro fator característico em sistemas com anisotropia unidirecional, onde uma ótima textura cristalina fornecerá um maior nível de ordem magnético na camada AF e, portanto, um maior campo de polarização de troca.

- A caracterização magnética da bicamada, feita à $T = 90$ K, resultou na dependência do campo de polarização de troca com a espessura da camada FM, $H_{EB} = \frac{\sigma_{int}}{m_{FM}t_{FM}}$. O ajuste feito através desta equação, permitiu obter o valor da energia interfacial por unidade de área $\sigma = 0.024 \text{ erg/cm}^2$. Resultado que está de acordo com outros trabalhos [24], sendo a magnitude deste parâmetro pequena devido à presença de rugosidades. O campo coercitivo também apresenta este comportamento, ou seja, depende da espessura da camada FM.
- Os resultados obtidos a partir das medidas de XMCD foram o cálculo da profundidade de escape dos elétrons $e = 5 \text{ nm}$, e a variação do momento magnético de spin m_{spin} em função da espessura da camada FM. Assim, para $t_{NiFe} = 4, 5, 7 \text{ e } 10 \text{ nm}$, m_{spin} apresenta valores constantes e próximos aos reportados por Kunes *et. al.* [56], caindo progressivamente para $t < 4 \text{ nm}$, devido a presença de rugosidades ou reações químicas na interface, este resultado é obtido a partir das análises da profundidade de escape dos elétrons, que neste intervalo de espessuras inclui a interface NiO/NiFe. Outro resultado importante é a desprezível contribuição da interface NiFe/Ta ao magnetismo deste sistema.
- A inserção de uma camada de Cu ou Cr, de espessura variável, no meio da bicamada NiO/NiFe, causa mudanças tanto estruturais como magnéticas, alterando a morfologia interfacial e mudando os efeitos magnéticos.
- Os resultados das medidas de reflectividade de raios X mostram que a inserção da camada NM gera interfaces menos rugosas para o Cu sendo contrário para o Cr.

- A inserção da camada não magnética, causa mudanças notáveis na curva de magnetização, esta camada reduz mas não impede a interação de troca entre a camada de NiO e NiFe. Um ajuste do tipo decaimento exponencial é obtido, fornecendo o valor do comprimento do alcance do acoplamento que fornece a primeira evidência de uma interação de longo alcance.
- Os resultados de XMCD fornecem valores do momento de spin pequenos na região interfacial, aumentando progressivamente a medida que a espessura da camada NM aumenta. A maior evidência de uma interação de longo alcance é dada pela existência de um momento induzido, na camada NM, resultado importante que indica a presença de uma interação entre as camadas de NiO e NiFe, a intensidade deste momento induzido diminui conforme a espessura da camada NM aumenta.
- Outros estudos feitos por Wang no sistema FeMn/Cu/Co *et. al.* [15] fornecem evidências de uma interação de longo alcance, a partir de medidas de XMCD usando microscopia de emissão de photoelectrons, observando mudanças nos domínios magnéticos na camada FM em dependência da espessura da camada NM. Nosso resultado principal é a evidência de um momento induzido na camada NM que é visível para $t_{NM} < 2$ nm. Este é o primeiro resultado obtido, mas é necessário estudar outros sistemas envolvendo também ligas de metais de transição antiferromagnéticas onde decaimentos oscilatórios tem sido relatados [10].

Apêndice A

Anisotropia Magnética

Considerando um mono-cristal magnético sem perturbações externas, na teoria de campo molecular de Weiss, a existência de ordenamento magnético é considerado como um fenômeno cooperativo que envolve a interação de troca entre os momentos magnéticos no sólido, o qual é invariante com respeito a escolha de um sistema coordenado. Portanto, a magnetização de um material têm sido considerada isotrópica. Experimentalmente, considera-se que a magnetização têm uma tendência a alinhar-se ao longo de um eixo cristalográfico particular. Assim, devemos adicionar um termo à energia livre que dependa da relativa orientação dos eixos cristalográficos e o eixo preferencial de magnetização. Podemos definir que a energia livre é mínima quando o material é magnetizado em alguma direção particular relativa aos eixos cristalográficos, que denominaremos eixo de fácil magnetização. A energia de anisotropia cristalina é definida como o trabalho necessário para fazer a magnetização ficar ao longo de determinada direção quando comparada com o eixo fácil. Assim, se o trabalho é realizado em temperatura constante, a energia de anisotropia é uma energia livre. Partindo de considerações termodinâmicas¹, temos que quando a magnetização do sistema não é constante, o trabalho deve ser feito sob o sistema, $dW = -H dM$, assim:

$$dU = dQ + H dM \quad (\text{A.1})$$

A energia livre de Helmholtz define-se como:

$$F = U - TS \quad (\text{A.2})$$

¹Vease por exemplo Morrish[79]

onde U é a energia do sistema, T é a temperatura e S é a entropia. Diferenciando a Equação [A-1], obtemos a seguinte relação:

$$\begin{aligned} dF &= -dW - SdT \\ dF &= H \cdot dM - SdT \end{aligned} \quad (\text{A.3})$$

Para um cristal magnético com tensão aplicada ², temos a seguinte equação:

$$dF = -SdT + H \cdot dVM + V^o \sigma_{ij} de_{ij} \quad (\text{A.4})$$

onde o terceiro termo representa a contribuição originada pela tensão aplicada ao material. Assim, V^o é o volume do material sem deformação, σ_{ij} representa os componentes do tensor de stress simétrico e e_{ij} são as componentes do tensor de tensão simétrico. Assim, para uma temperatura e tensão constantes, temos:

$$dF = \text{constante} + V \int_{M_o}^M H \cdot dM \quad (\text{A.5})$$

onde M_o especifica um estado inicial arbitrário e para um M constante, a energia livre é somente dependente da direção de magnetização. Assim, definimos a energia de anisotropia magneto-cristalina com as componentes da anisotropia descritas pela integral na Equação [A-5]. Considerando um material mono-cristalino no estado de saturação magnética, é comum expressar o termo anisotropico da energia livre na forma de uma série de potências dos cosenos diretores da magnetização. Para um cristal ferromagnético com magnetização $\mathbf{m}$, podemos expressar a energia magneto-cristalina como:

$$F(\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3) = \sum_i b_i \alpha_i + \sum_{i,j} b_{i,j} \alpha_i \alpha_j + \sum_{i,j,k} b_{i,j,k} \alpha_i \alpha_j \alpha_k + \sum_{i,j,k,l} b_{i,j,k,l} \alpha_i \alpha_j \alpha_k \alpha_l + \dots, \quad (\text{A.6})$$

onde $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$ são os cosenos diretores na direção de $\mathbf{m}$ com respeito a um eixo cartesiano fixado no cristal. A forma dos tensores característicos $b_i, b_{1,j}, \dots$, é determinada completamente pelas exigências cristalográficas e simetria intrínsecas. Pode-se

²Vease por exemplo H. B. Callen [91], Cap. 13-14

mostrar², que um cristal cúbico deve ter a seguinte forma:

$$F(\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3) = b_{11}(\alpha_1^2 + \alpha_2^2 + \alpha_3^2) + b_{1111}(\alpha_1^4 + \alpha_2^4 + \alpha_3^4) + 6b_{1122}(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_1^2\alpha_3^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2) \quad (\text{A.7})$$

assim, ordenando e simplificando, chegamos à conhecida relação da energia de anisotropia para um cristal com simetria cúbica:

$$F(\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3) = K_o + K_1(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_1^2\alpha_3^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2) + \dots, \quad (\text{A.8})$$

onde:

$$\begin{aligned} K_o &= b_{11} + b_{1111} \\ K_1 &= 6b_{1122} - 2b_{1111} \end{aligned}$$

na qual os coeficientes K_o e K_1 são definidos como as constantes de anisotropia de ordem zero e primeira ordem, respectivamente. Na expansão Equação [A-8], podem-se incluir termos de maior ordem, mas o processo de cálculo é complicado. Estes coeficientes podem ser calculados experimentalmente ou através de análises de estrutura de bandas. Para um cristal com simetria hexagonal, a energia livre pode ser escrita até sexta ordem em função dos cosenos diretores da seguinte forma:

$$F(\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3) = K_o + K_1(\alpha_1^2\alpha_2^2) + K_2(\alpha_1^2\alpha_2^2)^2 + K_3(\alpha_1^2\alpha_2^2)^3 + K_4(\alpha_1^2 - \alpha_2^2)(\alpha_1^4 - 14\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^4) \quad (\text{A.9})$$

onde, K_o, K_1, K_2, K_3 e K_4 são as constantes de anisotropia. Agora, se fazemos uso das coordenadas esféricas (r, θ, ϕ) , ao invés dos cosenos diretores $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$, temos as seguintes equações:

$$\alpha_1 = \sin\theta\sin\phi, \alpha_2 = \sin\theta\cos\phi, \alpha_3 = \cos\theta \quad (\text{A.10})$$

onde θ é o ângulo entre o eixo hexagonal e o vetor de magnetização e ϕ é o ângulo formado entre a componente da magnetização no plano basal com um dos eixos a . Se trocarmos estas últimas equações em Equação [A-8], temos o seguinte resultado:

$$F(\theta, \phi) = K_o + K_1\sin^2\theta + K_2\sin^4\theta + K_3\sin^6\theta - K_4\sin^6\theta\cos 6\phi \quad (\text{A.11})$$

²Uma análise detalhada sob condições de simetria e magnetismo encontra-se no livro de A. P. Cracknell e R. R. Birss [92, 93]

Notemos nesta última equação que a simetria cilíndrica é mantida até o termo de terceira ordem. Descrições da energia de anisotropia magneto-cristalina em termos destas expansões são úteis apesar de que os resultados experimentais possam ser descritos adequadamente pelas primeiras duas ou três constantes de anisotropia, o que quase sempre acontece. Neste trabalho, não aprofundaremos mais no cálculo das constantes de anisotropia. Para o leitor interessado recomenda-se a leitura das referências [92, 93] e também do trabalho feito por Darby [94].

Bibliografia

- [1] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas. Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnetic superlattices. *Phys. Rev. Lett.*, 61:2472, 1988.
- [2] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach, and W. Zinn. Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange. *Phys. Rev. B*, 39:4828, 1989.
- [3] L. M. Falicov. Metallic magnetic superlattices. *Physics Today*, 45:46, 1992.
- [4] B. Dieny, V. S. Speriosu, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, D. R. Wilhoit, and D. Mauri. Giant magnetoresistive in soft ferromagnetic multilayers. *Phys. Rev. B*, 43:1297, 1991.
- [5] W. H. Meiklejohn and C. P. Bean. New magnetic anisotropy. *Phys. Rev*, 102(5):1413, 1956.
- [6] J. Nogues and Ivan K. Schuller. Exchange bias. *J. Magn. Magn. Mater.*, 192:203, 1999.
- [7] Miguel Kiwi. Exchange bias theory. *J. Magn. Magn. Mater.*, 234:584, 2001.
- [8] Luc Thomas, Andrew J. Kellock, and Stuart S. P. Parkin. On the exchange biasing through a nonmagnetic spacer layer. *J. Appl. Phys.*, 87:5061, 2000.
- [9] N. J. Gokemeijer, T. Ambrose, and C. L. Chien. Long range exchange bias across a spacer layer. *Phys. Rev. Lett.*, 79:4270, 1997.

-
- [10] T. Mewes, B. F. P. Roos, S. O. Demokritov, and B. Hillebrands. Oscillatory exchange bias effect in FeNi/Cu/FeMn and FeNi/Cr/FeMn trilayer systems. *J. Appl. Phys.*, 87:5064, 2000.
- [11] M. H. Li, G. H. Yu, F. W. Zhu, D. C. Zeng, and W. Y. Lai. Influence of metal spacer on the properties and microstructure of multilayer films and analyses. *Thin Solid Films*, 516:2058, 2008.
- [12] M. Gruyters, M. Gierlings, and D. Riegel. Rapid suppression of exchange bias across thin Au spacer layers. *Phys. Rev. B*, 64:132401, 2001.
- [13] Minn-Tsong Lin, C. H. Ho, Ching-Ray Chang, and Y. D. Yao. Thermally assisted oscillatory interlayer exchange bias coupling. *Phys. Rev. B*, 63:1004004, 2001.
- [14] A. Paul, D. E. Bürgler, M. Luysberg, and P. Grünberg. Enhanced exchange bias due to an ultra-thin, non-magnetic insulator spacer layer. *Europhys. Lett.*, 68:233, 2004.
- [15] J. Wang, W. Kuch, L. I. Chelaru, F. Offi, M. Kotsugi, and J. Kirschner. Exchange coupling between ferro and antiferromagnetic layer across a non-magnetic interlayer: Co/Cu/FeMn on Cu(001). *J. Phys.: Condens. Matter*, 16:9181, 2004.
- [16] M. Gierlings, M. J. Prandolini, M. Gruyters, T. Funk, D. Riegel, and W. D. Brewer. A study of the induced magnetism in the Au spacer layer of Co/Au/CoO exchange bias trilayers and related systems. *Eur. Phys. J. B*, 45:137, 2005.
- [17] B. D. Cullity. *Introduction to magnetic materials*. Adison-Wesley, 1972.
- [18] Amikan Aharoni. *Introduction to the theory of ferromagnetism*. Oxford University Press, 2000.
- [19] Charles Kittel. Theory of the structure of ferromagnetic domains in film and small particles. *Phys. Rev.*, 70:965, 1946.
- [20] J. C. Slonczewski. Fluctuation mechanism for biquadratic exchange coupling in magnetic multilayer. *Phys. Rev. Lett.*, 67:3172, 1991.

-
- [21] M. A. Lucena A. Azevedo F. M. de Aguiar S. M. Rezende, C. Chesman and S. S. P. Parkin. Studies of coupled metallic magnetic thin-film trilayers. *J. Appl. Phys.*, 84:958, 1998.
- [22] J. S. Kouvel and Jr. C. D. Graham. Exchange anisotropy in disordered Ni₃Mn. *J. Appl. Phys.*, 30:S312, 1959.
- [23] W. Stoecklein, S. S. P. Parkin, and J. C. Scott. Ferromagnetic resonance studies of exchange-biased permalloy thin films. *Phys. Rev. B*, 38:6847, 1988.
- [24] L. Smardz. Exchange coupling effects in NiO/Co and NiO/permalloy bilayers. *J. Magn. Magn. Mater.*, 240:273–276, 2002.
- [25] Hideo Fujiwara, Kunliang Zhang, Tadashi Kai, and Tong Zhao. Effect of direct exchange coupling between antiferromagnetic grains on magnetic behavior of ferro/antiferromagnetic exchange coupled polycrystalline layer systems. *J. Magn. Magn. Mater.*, 235:319, 2001.
- [26] N. J. Gokemeijer, J. W. Cai, and C. L. Chien. Memory effects of exchange coupling in ferromagnet/antiferromagnet bilayers. *Phys. Rev. B*, 60:3033, 1990.
- [27] A. E. Berkowitz and Kentaro Takano. Exchange anisotropy a review. *J. Magn. Magn. Mater.*, 200:552, 1999.
- [28] R. L. Stamps. Mechanisms for exchange bias. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 33:R247, 2000.
- [29] W. H. Meiklejohn and C. P. Bean. New magnetic anisotropy. *Phys. Rev*, 105(3):904, 1957.
- [30] W. H. Meiklejohn. Exchange anisotropy a review. *J. Appl. Phys.*, 33(3):1328, 1962.
- [31] R. Jungblut, R. Coehoorn, M. T. Johnson, J. aan de Stegge, and A. Reinders. Orientational dependence of the exchange biasing in molecular-beam-epitaxy-grown Ni₈₀Fe₂₀/Fe₅₀Mn₅₀ bilayers. *J. Appl. Phys.*, 75:6659, 1994.

-
- [32] Ch. Binek, A. Hochstrat, and W. Kleemann. Exchange bias in a generalized Meiklejohn Bean approach. *J. Magn. Magn. Mater.*, 134:353, 2001.
- [33] E. Fulcomer and E. H. Charap. Thermal fluctuation aftereffect model for some systems with ferromagnetic-antiferromagnetic coupling. *J. Appl. Phys.*, 43:4190, 1972.
- [34] A. P. Malozemoff. Random-field model of exchange anisotropy at rough ferromagnetic-antiferromagnetic interfaces. *Phys. Rev. B.*, 35:3679, 1987.
- [35] A. P. Malozemoff. Mechanisms of exchange anisotropy. *J. Appl. Phys.*, 63:3874, 1988.
- [36] D. Mauri, Eric Kay, David Scholl, and J. Kent Howard. Novel method for determining the anisotropy constant of MnFe in a NiFe/MnFe sandwich. *J. Appl. Phys.*, 62:2929, 1987.
- [37] D. Mauri, H. C. Siegmann, P. S. Bagus, and E. Kay. Simple model for thin ferromagnetic films exchange coupled to an antiferromagnetic substrate. *J. Appl. Phys.*, 62:3047, 1987.
- [38] N. C. Koon. Calculations of exchange bias in thin films with ferromagnetic/antiferromagnetic interfaces. *Phys. Rev. Lett.*, 78:4865, 1997.
- [39] M. Kiwi, J. Mejía-López, R. D. Portugal, and R. Ramírez. Exchange bias model for Fe/FeF₂: Role of domains in the ferromagnet. *Phys. Rev. Lett.*, 48:573, 1999.
- [40] M. D. Stiles and R. D. McMichael. Model for exchange bias in polycrystalline ferromagnet-antiferromagnet bilayers. *Phys. Rev. B.*, 59:3722, 1999.
- [41] S. M. Rossnagel. Thin film deposition with physical vapor deposition and related technologies. *J. Vac. Sci. Technol. A*, 21:S74, 2003.
- [42] Valberto Pedruzzi Nascimento. *Estudo da Interfaces nas Multicamadas NiFe/FeMn/NiFe*. Tese de doutorado, Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas, Agosto 2005.

-
- [43] Willian Alayo. *Anisotropia Magnética e Acoplamento de Troca em Multicamadas de Metais de Transição*. Tese de doutorado, Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas, Setembro 2007.
- [44] Miguel Tafur. Propriedades magneticas de válvulas de spin tipo bottom com monocamadas de oxidos. Tese de mestrado, Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas, Julho 2005.
- [45] Eric E. Fullerton, J.E. Mattson, S.R. Lee, C.H. Sowers, Y.Y. Huang, G. Felcher, S.D. Bader, and F.T. Parker. Non-oscillatory antiferromagnetic coupling in sputtered Fe/Si superlattices. *J. Magn. Magn. Mater*, 117:L301, 1992.
- [46] Xiao-Lin Zhou and Sow-Hsin Chen. Theoretical foundation of X-ray and neutron reflectometry. *Physics Reports*, 257:223, 1995.
- [47] L. Nevot and P. Croce. Characterization of surfaces by grazing X-ray reflection - application to study of polishing of some silicate-glasses. *Revue de Physique Appliquee*, 15:761, 1980.
- [48] B. D. Cullity. *Elements of X-ray diffraction*. London : Prentice-Hall International., 3 edition, 2001.
- [49] B. T. Thole, Paolo Carra, F. Sette, and G. van der Laan. X-ray circular dichroism as a probe of orbital magnetization. *Phys. Rev. Lett.*, 68:1943, 1992.
- [50] Paolo Carra, B. T. Thole, Massimo Altarelli, and Xindong Wang. X-ray circular dichroism and local magnetic fields. *Phys. Rev. Lett.*, 70:694, 1993.
- [51] W. L. O'Brien and B. P. Tonner. Orbital and spin sum rules in X-ray magnetic circular dichroism. *Phys. Rev. B.*, 50:12672, 1994.
- [52] F. Wilhelm. *Magnetic Properties of Ultrathin Films, Coupled Trilayers and 3d/5d Multilayers Studied by X-ray Magnetic Circular Dichroism*. Doctoral thesis, Freien Universitat Berlin, April 2000.
- [53] J. Stöhr. X-ray circular dichroism spectroscopy of transition metal thin film. *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.*, 75:253, 1995.

- [54] Ruqian Wu and A. J. Freeman. Limitation of the magnetic circular dichroism spin sum rule for transition metals and importance of the magnetic dipole term. *Phys. Rev. Lett.*, 73:1994, 1994.
- [55] A. Ankudinov and J. J. Rehr. Sum rules for polarization dependent X-ray absorption. *Phys. Rev. B.*, 51:1282, 1995.
- [56] J. Kunes, P. M. Oppeneer, H. Ch. Mertins, F. Schäfers, A. Gaupp, W. Gudat, and P. Novak. X-ray Faraday effect at the L(2,3) edges of Fe, Co and Ni. Theory and experiment. *Phys. Rev. B.*, 64:174417, 2001.
- [57] W. Pan C. H. Ho Y. D. Yao O. de Haas R. Schafer Y. M. Chang, Minn-Tsong Lin and C. M. Schneider. Magnetic domain imaging of exchange bias system NiO/Cu/NiFe by Kerr microscopy. *J. Magn. Magn. Mater.*, 239:375, 2002.
- [58] Miguel Tafur, W. Alayo, P. Munayco, , E. Baggio-Saitovitch, V. P. Nascimento, A. D. Alvarenga, and W. D. Brewer. Influence of the insertion of a nano-oxide layer on the interfacial magnetism of the femn/nife/cu/nife spin valves. *J. Appl. Phys.*, 101:103910, 2007.
- [59] W. L. Roth. Magnetic structures of MnO, FeO, CoO, and NiO. *Phys. Rev.*, 110:1333, 1958.
- [60] W. L. Roth. Neutron and optical studies of domains in NiO. *J. Appl. Phys.*, 31:2000, 1960.
- [61] Hao-Long Chen, Yang-Ming Lu, and Weng-Sing Hwang. Characterization of sputtered NiO thin films. *Surf. Coat. Technol.*, 198:138, 2005.
- [62] O. Khomoto, H. Nakagawa, F. Ono, and A. Chayahara. Ni-defective value and resistivity of sputtered NiO films. *J. Magn. Magn. Mater.*, 226-230:1627, 2001.
- [63] Y. M. Lu, W. S. Hwang, J. S. Yang, and H. C. Chuang. Properties of nickel oxide thin films deposited by RF reactive magnetron sputtering. *Thin Solid Films*, 420-421:54, 2002.

- [64] I. Hotovy, J. Huran, L. Spiess, J. Liday, H. Sitter, and S. Hascik. The influence of process parameters and annealing temperature on the physical properties of sputtered NiO thin films. *Vacuum*, 69:237, 2003.
- [65] Y. M. Lu, W. S. Hwang, and J. S. Yang. Effects of substrate temperature on the resistivity of non-stoichiometric sputtered NiO_x films. *Surf. Coat. Technol.*, 155:231, 2002.
- [66] Chung-Hee Nam, B. K. Cho, and Seonghoon Lee. Dependence of exchange coupling in NiO grain size in NiO/NiFe bilayers. *J. Appl. Phys.*, 93:6584, 2003.
- [67] T. Ambrose and C. L. Chien. Finite-size effects and uncompensated magnetization in thin antiferromagnetic CoO layers. *Phys. Rev. Lett.*, 76:1743, 1996.
- [68] Tsann Lin, Ching Tsang, Robert E. Fontana, and J. Kent Howard. Exchange-coupled Ni-Fe/Fe-Mn, Ni-Fe/Ni-Mn and NiO/Ni-Fe films for stabilization of magnetoresistive sensors. *IEEE Trans. Magn.*, 31(6):2585, 1995.
- [69] J. X. Shen and M. T. Kief. Exchange coupled between NiO and NiFe thin films. *J. Appl. Phys.*, 79(8):5008, 1996.
- [70] C. M. Park K. A. Lee Sang-Suk Lee, Do-Guwn Hwang and J. R. Rhee. Effects of crystal texture on exchange anisotropy in NiO spin valves. *J. Appl. Phys.*, 81:5298, 1997.
- [71] De-Hua Han, Jian-Gang Zhu, and Jack H. Judy. NiFe/NiO bilayers with high exchange coupling and low coercitive fields. *J. Appl. Phys.*, 81:4996, 1997.
- [72] Chong Yan, Jun Yu, Wen-Li Zhou, Ji-Fan Xie, Jun-Xiong Gao, and Dong-Xiang Zhou. The exchange anisotropy of NiO/CoFe bilayers. *Mater. Sci. Eng. B*, B99:421, 2003.
- [73] Congxiao Liu, Chengtao Yu, Huaming Jiang, Liyong Shen, C. Alexander, and G. J. Mankey. Effect of interface roughness on the exchange bias for NiFe/FeMn. *J. Appl. Phys.*, 87:6644, 2000.

-
- [74] V.P. Nascimento, E.C. Passamani, A.D. Alvarenga, F. Pelegrini, A. Biondo, and E. Baggio Saitovitch. Influence of the roughness on the exchange bias effect of NiFe/FeMn/NiFe trilayers. *J. Magn. Magn. Mater*, 320:e272, 2008.
- [75] G. H. Yu, C. L. Chai, F. W. Zhu, J. M. Xiao, and W. Y. Lai. Interface reaction of NiO/NiFe and its influence on magnetic properties. *J. Appl. Phys. Lett.*, 78:1706, 2001.
- [76] G. H. Yu, L. R. Zeng, and F. W. Zhu. Magnetic properties and X-ray photoelectron spectroscopy study of NiO/NiFe films prepared by magnetron sputtering. *J. Appl. Phys.*, 90:4039, 2001.
- [77] J. Geshev, L. G. Pereira, J. E. Schmidt, L. C. C. M. Nagamine, E. B. Saitovitch, and F. Pelegrini. Frequency-dependent exchange bias in NiFe/NiO films. *Phys. Rev. B*, 67:132401, 2003.
- [78] S. F. Chen, J. P. Teter, P. Lubitz, M. M. Miller, L. Hoines, J. J. Krebs, D. M. Schaefer, and G. A. Prinz. Factors affecting performance of NiO biased giant magnetoresistance structures. *J. Appl. Phys.*, 79:6234, 1996.
- [79] Allan H. Morrish. *The Physical Principles of Magnetism*. IEEE PRESS, 2001.
- [80] Miguel Tafur, V. P. Pedruzi, W. Alayo, Y. T. Xing, and E. Baggio-Saitovitch. Interfacial magnetism of NiO/NiFe bilayers studied by magnetometry and X-ray magnetic circular dichroism. Submetido Thin Solid Films.
- [81] Jing guo Hu, Guojun Jin, R. L. Stamps, and Yu qiang Ma. Measurement of exchange anisotropy in exchange bias bilayers. *J. Magn. Magn. Mater*, 301:238, 2006.
- [82] F. M. F. de Groot, M. Grioni, J. C. Fuggle, J. Ghijsen, G. A. Sawatzky, and H. Petersen. Oxygen 1s X-ray absorption edges of transition metal oxides. *Phys. Rev. B*, 40:5715, 1989.
- [83] D. Alders, L. H. Tjeng, F. C. Voogt, T. Hibma, G. A. Sawatzky, C. T. Chen,

- J. Vogel, M. Sacchi, and S. Iacobucci. Temperature and thickness dependence of magnetic moments in NiO epitaxial films. *Phys. Rev. B*, 57:11623, May 1998.
- [84] O. Hjorststam, J. Trygg, J. M. Wills, B. Johansson, and O. Eriksson. Calculated spin and orbital moments in the surfaces of the 3d metals Fe, Co and Ni and their overlayers on Cu(001). *Phys. Rev. B.*, 53:9204, 1996.
- [85] A. B. Klautau and O. Eriksson. Ab initio calculation of the magnetocrystalline anisotropy and spin and orbital moments of a bcc Co(001) surface. *Phys. Rev. B.*, 72:014459, 2005.
- [86] G. H. Yu, M. H. Li, J. Teng, F. W. Zhu, and W. Y. Lai. Interface reactions in Ta/NiFe/Ta structures and your influences on magnetic properties. *Thin Solid Films*, 484:208, 2005.
- [87] V.P. Nascimento, Miguel Tafur, and E. Baggio-Saitovitch. Comunicação privada.
- [88] J. P. Nozieres, V. S. Speriosu, B. A. Gurney, B. Dieny, and H. Lefakis. The role of interfaces in NiFe/Cu/NiFe spin valves. *J. Magn. Magn. Mater*, 121:386, 1993.
- [89] M. L. Watson, W. D. Doyle, H. Fujiwara, and S. Hossain. The absence of giant magnetoresistance on antiferromagnetically coupled NiFe/Cr multilayers. *J. Appl. Phys.*, 10:5518, 1993.
- [90] Peng Chubing, Dai Chen, and Dai Daosheng. Oscillatory interlayer exchange coupling in NiFe/Cr, multilayers. *J. Magn. Magn. Mater*, 126:400, 1993.
- [91] H. B. Callen. *Thermodynamics*. John Wiley, 1966.
- [92] A. P. Cracknell. *Magnetism in Cristalline Materials*. Pergamon Press, 1975.
- [93] R. R. Birss. *Symmetry and Magnetism*. North-Holland, 1964.
- [94] M. I. Darby and E. D. Isaac. Magnetocrystalline anisotropy of ferro and ferri-magnetics. *IEEE Trans. Magn.*, MAG-10(2):259, 1974.

Livros Grátis

(<http://www.livrosgratis.com.br>)

Milhares de Livros para Download:

[Baixar livros de Administração](#)

[Baixar livros de Agronomia](#)

[Baixar livros de Arquitetura](#)

[Baixar livros de Artes](#)

[Baixar livros de Astronomia](#)

[Baixar livros de Biologia Geral](#)

[Baixar livros de Ciência da Computação](#)

[Baixar livros de Ciência da Informação](#)

[Baixar livros de Ciência Política](#)

[Baixar livros de Ciências da Saúde](#)

[Baixar livros de Comunicação](#)

[Baixar livros do Conselho Nacional de Educação - CNE](#)

[Baixar livros de Defesa civil](#)

[Baixar livros de Direito](#)

[Baixar livros de Direitos humanos](#)

[Baixar livros de Economia](#)

[Baixar livros de Economia Doméstica](#)

[Baixar livros de Educação](#)

[Baixar livros de Educação - Trânsito](#)

[Baixar livros de Educação Física](#)

[Baixar livros de Engenharia Aeroespacial](#)

[Baixar livros de Farmácia](#)

[Baixar livros de Filosofia](#)

[Baixar livros de Física](#)

[Baixar livros de Geociências](#)

[Baixar livros de Geografia](#)

[Baixar livros de História](#)

[Baixar livros de Línguas](#)

[Baixar livros de Literatura](#)
[Baixar livros de Literatura de Cordel](#)
[Baixar livros de Literatura Infantil](#)
[Baixar livros de Matemática](#)
[Baixar livros de Medicina](#)
[Baixar livros de Medicina Veterinária](#)
[Baixar livros de Meio Ambiente](#)
[Baixar livros de Meteorologia](#)
[Baixar Monografias e TCC](#)
[Baixar livros Multidisciplinar](#)
[Baixar livros de Música](#)
[Baixar livros de Psicologia](#)
[Baixar livros de Química](#)
[Baixar livros de Saúde Coletiva](#)
[Baixar livros de Serviço Social](#)
[Baixar livros de Sociologia](#)
[Baixar livros de Teologia](#)
[Baixar livros de Trabalho](#)
[Baixar livros de Turismo](#)