

**UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO GRANDE DO SUL**  
**PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA**  
Tese de doutorado

**Curvas de remanência de sistemas que  
apresentam *exchange bias***

**Artur Harres de Oliveira**  
Orientador: Julian Penkov Geshev

Dezembro de 2014

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO GRANDE DO SUL  
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA  
Tese de doutorado

# Curvas de remanência de sistemas que apresentam *exchange bias*<sup>†</sup>

**Artur Harres de Oliveira**

Trabalho realizado sob orientação do Prof.  
Dr. Julian Penkov Geshev, apresentado  
ao Programa de Pós-Graduação em Física  
da UFRGS, como requisito parcial para a  
obtenção do título de Doutor em Física.

Dezembro de 2014

---

<sup>†</sup>Trabalho parcialmente financiado pelo Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico – CNPq

## *Resumo*

As propriedades magnéticas de filmes finos que apresentam *exchange bias* são analisadas através do método de curvas de remanência. Trata-se de uma técnica comumente empregada no estudo de interações magnéticas em sistemas que apresentam laços de magnetização simétricos. Como o deslocamento em campo da curva de histerese é uma das principais manifestações do *exchange bias*, os valores das magnetizações remanentes podem ser distintos em módulo, ou até possuir o mesmo sinal, para os dois ramos da magnetização. Isto impede a aplicação direta do método. Uma adaptação é proposta aqui, e testada em uma variedade de sistemas que contêm interfaces entre materiais ferromagnéticos e antiferromagnéticos. Ela envolve a redefinição do sistema de coordenadas, e acaba gerando um aumento no número de gráficos distintos que podem ser construídos, evidenciando a assimetria intrínseca que existe entre os dois ramos da magnetização.

Três tipos distintos de sistemas foram estudados, todos na forma de filmes finos depositados por desbastamento iônico. São eles: bicamadas de NiCu/IrMn, nas quais a temperatura de Curie do ferromagneto é menor que a temperatura de Néel do antiferromagneto; tricamadas de Co/Cu( $t_{Cu}$ )/IrMn, construídas com espessuras variadas do espaçador de cobre com intuito de reduzir a interação efetiva entre o cobalto e o irídio-manganês; e amostras de CoFe/IrMn que possuem diferentes espessuras de material antiferromagnético. Curvas  $\delta M(H)$  e gráficos de Henkel construídos para cada uma das amostras são apresentados, e os desvios do comportamento esperado para sistemas não-interagentes investigado, traçando um paralelo com parâmetros como o campo de *exchange bias* e o campo coercivo. Durante a interpretação dos dados, simulações computacionais foram implementadas na tentativa de separar as contribuições dos diferentes mecanismos que influenciam os processos de reversão da magnetização.

# *Abstract*

Magnetic properties of EB thin films are analyzed using the remanence plots method. This procedure is commonly employed to probe magnetic interactions in systems presenting symmetrical hysteresis curves. Since the field shift of the magnetization loops is one of the exchange bias manifestations, distinct remanence values might be observed for the two magnetization branches. This prevents the direct application of the method. An adaptation is proposed here, and tested in a variety of systems containing ferromagnetic/antiferromagnetic interfaces. It involves a redefinition of the coordinate system and gives rise to a number of distinct plots, revealing the intrinsic asymmetry between the two magnetization branches of exchange bias samples.

Three different systems were studied, all in the form of thin films deposited via sputtering. These are: NiCu/IrMn bilayers, where the Curie temperature of the ferromagnet is lower than the Néel temperature of the antiferromagnet; Co/Cu( $t_{\text{Cu}}$ )/IrMn trilayers, where the copper spacer thickness was varied in order to diminish the cobalt/iridium-manganese effective coupling; and CoFe/IrMn samples with different antiferromagnetic layer thickness. Henkel and  $\delta M(H)$  plots constructed for each sample are presented, and their deviations from the non-interacting behavior investigated, tracing a parallel with exchange bias parameters such as  $H_{\text{eb}}$  and  $H_{\text{c}}$ . Computational simulations were employed aiming to discriminate contributions coming from different mechanisms that might influence the magnetization reversal.

# *Conteúdo*

<b>Introdução</b>	<b>1</b>
<b>1 Revisão</b>	<b>3</b>
1.1 Ferromagnetismo e antiferromagnetismo . . . . .	3
1.2 Anisotropias magnéticas . . . . .	8
1.2.1 Anisotropia magnetocristalina . . . . .	8
1.2.2 Anisotropia de forma . . . . .	10
1.3 Exchange bias . . . . .	11
1.4 Curvas de remanência . . . . .	20
<b>2 Aparatos experimentais</b>	<b>27</b>
2.1 Sputtering . . . . .	27
2.2 AGFM . . . . .	28
2.3 Forno resistivo . . . . .	31
2.4 Magnetômetro SQUID . . . . .	32
<b>3 Resultados</b>	<b>35</b>
3.1 Modelo teórico . . . . .	35
3.1.1 Simulações numéricas . . . . .	38
3.2 Curvas de remanência em sistemas com <i>Exchange Bias</i> . . . . .	45
3.2.1 Processos de desmagnetização . . . . .	48
3.3 Aplicação da técnica . . . . .	49
3.3.1 IrMn/NiCu . . . . .	50

<i>Conteúdo</i>	2
3.3.2 Co/Cu( $t_{\text{Cu}}$ )/IrMn . . . . .	58
3.3.3 IrMn( $t_{\text{IrMn}}$ )/CoFe . . . . .	70
<b>4 Conclusões</b>	<b>75</b>
<b>Lista de Artigos publicados</b>	<b>79</b>
<b>Bibliografia</b>	<b>80</b>

# *Introdução*

Atualmente, o *exchange bias* (EB) encontra papel de destaque dentro do Magnetismo. O efeito, mesmo tendo sido exaustivamente estudado nos últimos anos, ainda apresenta muitas facetas não completamente compreendidas. Sabe-se, no entanto, que ele surge do acoplamento de troca magnético entre um material ferromagnético (FM) e spins não-compensados interfaciais de um material antiferromagnético (AF) adjacente. Suas manifestações são diversas, sendo as mais bem conhecidas o deslocamento em campo do ciclo de histerese magnética e o aumento da coercividade. Pode-se observá-lo em uma vasta gama de sistemas, dentre os quais estão pequenas partículas, filmes finos e materiais inomogêneos que possuem interfaces FM/AF.

Apesar de muitos de seus mecanismos permanecerem inexplicados, o EB encontra grande aplicabilidade em equipamentos magnetoeletrônicos, como, por exemplo, cabeçotes de gravação magnética. Novos campos de pesquisa, como sua manifestação em sistemas multiferroicos, nos quais uma interação puramente magnética pode ser manipulada através de um campo elétrico, surgem como um incentivo adicional para o estudo do tema.

Com o presente trabalho, pretende-se desvendar um pouco mais deste fenômeno através de uma tradicional técnica de caracterização magnética. Trata-se do método de curvas de remanência, que é capaz de determinar quais interações magnéticas regem o comportamento de um sistema. Como esta técnica foi desenvolvida originalmente para a avaliação de amostras que não apresentam curvas de histerese deslocadas, foi necessário redefinir alguns conceitos fundamentais para que fosse possível aplicá-la em sistemas com EB.

No primeiro dos quatro capítulos que formam esta monografia, encontra-se uma breve revisão da literatura. Nela alguns dos aspectos mais marcantes do EB são relembrados, juntamente com os modelos teóricos propostos para explicá-los. Em seguida, introduz-se o método de curvas de remanência e discute-se algumas de suas aplicações. O segundo capítulo traz os aparatos experimentais utilizados durante elaboração deste projeto. A técnica de *magnetron sputtering*, utilizada na deposição dos filmes finos estudados, os magnetômetros SQUID e de gradiente de campo alternado, responsáveis por sua caracterização magnética, e um forno resistivo são apresentados.

O capítulo de número três expõe os resultados obtidos no decorrer do trabalho. Nele é descrito o modelo teórico introduzido para explicar o comportamento magnético de sistemas policristalinos que possuem interfaces FM/AF e o modo como este foi empregado em simulações computacionais. Em seguida, apresenta-se a adaptação do método de curvas de remanência para sistemas com EB e os principais resultados obtidos. A técnica foi testada em três séries distintas de amostras, todas na forma de filmes finos depositados sobre substratos de silício. O primeiro conjunto é composto por bicamadas de IrMn/NiCu, nas quais a temperatura de Curie do NiCu é menor que a temperatura de Néel do IrMn. Mesmo após uma série de bombardeamentos iônicos na presença de campo magnético aplicado, não foi observado um deslocamento em campo da curva de histerese. A evolução do campo coercivo, entretanto, indicou a existência de um acoplamento FM-AF.

O segundo sistema estudado é formado por uma série de filmes de Co/Cu/IrMn, que apresentam espessuras variadas da camada espaçadora de cobre. O acoplamento entre o Co e o IrMn decresce gradualmente conforme a espessura do espaçador de cobre aumenta, permitindo o estudo da evolução das curvas de remanência em função da interação FM-AF efetiva. O terceiro e último conjunto de amostras estudado é constituído de filmes de CoFe/IrMn, depositados com diferentes espessuras do material AF. Diferentemente dos outros dois sistemas, este foi depositado na ausência de campo magnético aplicado. As amostras como-feitas não apresentavam valores grandes para o campo de *exchange bias*, e foram submetidas a tratamentos térmicos para ativar o efeito. Isto possibilitou a comparação entre gráficos de Henkel traçados antes e depois do recozimento, fornecendo informações sobre a importância da configuração interfacial para o formato destas curvas.

O capítulo três é seguido pelas conclusões do trabalho e por uma lista dos artigos publicados durante seu desenvolvimento.

# 1 Revisão

*São apresentados alguns conceitos fundamentais para este trabalho. Inicialmente, os princípios básicos do ferromagnetismo, do antiferromagnetismo e das anisotropias magnéticas são revisados. Em seguida, o fenômeno de exchange bias é abordado e suas principais características expostas. Por fim, as curvas de remanência, que foram aplicadas neste estudo, são discutidas.*

## 1.1 Ferromagnetismo e antiferromagnetismo

Definimos a magnetização  $\mathbf{M}$  de um corpo como uma medida de seu momento magnético por unidade de volume. Uma das manifestações magnéticas mais notáveis, e que por muito tempo intrigou a humanidade, é a magnetização espontânea de certos materiais. Estes são denominados ferromagnéticos<sup>1-4</sup> (FM), e podem apresentar um momento magnético resultante mesmo na ausência de campo externo. Mediante a aplicação de um campo, contudo, a projeção da magnetização na direção do campo pode aumentar até atingir um valor máximo  $M_s$ , conhecido como magnetização de saturação. Esta é uma quantidade que depende da temperatura, como mostra a figura 1.1. Conforme a temperatura aumenta,  $M_s$  normalmente diminui, atingindo um valor nulo para determinada temperatura crítica  $T_c$ , conhecida como temperatura de Curie. Acima desta temperatura o material não apresenta mais ordem ferromagnética, comportando-se como um paramagneto.<sup>1-4</sup>

Um material paramagnético é composto por átomos, ou moléculas, que possuem um momento magnético. Na ausência de um campo magnético aplicado, estes momentos apontam em direções aleatórias, e não se observa magnetização resultante. Quando submetidos à ação de um campo, a tendência é de que eles se alinhem paralelamente a direção dele, e o material passa a apresentar uma magnetização não nula. A agitação térmica, por sua vez, se opõe a este alinhamento, e tende a manter os momentos magnéticos aleatoriamente orientados. Como resultado, materiais paramagnéticos apresentam uma pequena susceptibilidade magnética  $\left(\chi = \frac{\partial M}{\partial H}\right)$  positiva, que diminui com o aumento da temperatura.

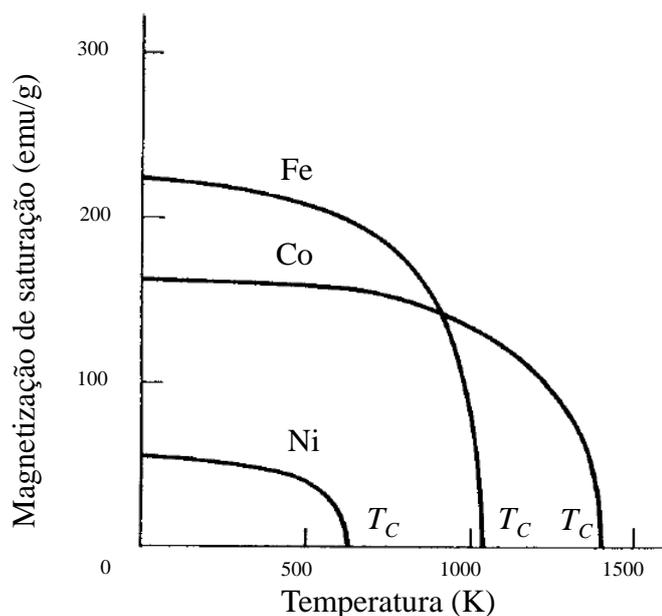


Figura 1.1: Magnetização de saturação em função da temperatura para o Fe, Co e o Ni.<sup>1</sup>

O primeiro grande progresso na tentativa de explicar o ferromagnetismo se deve a Pierre Weiss e sua hipótese do campo molecular.<sup>5,6</sup> Esta hipótese prevê que o FM é formado por inúmeros momentos magnéticos, provenientes dos átomos que o compõem, que interagem entre si. Esta interação pode ser tratada como um campo magnético efetivo,  $\mathbf{H}_m = \gamma\mathbf{M}$ , proporcional à magnetização do sistema. O chamado campo molecular,  $\mathbf{H}_m$ , tende a alinhar estes momentos magnéticos em uma determinada direção. Se este campo for capaz de vencer a agitação térmica das partículas, que tende a desorientá-las, o material apresentará magnetização. Diz-se, portanto, que um material ferromagnético é magneticamente ordenado.

Para explicar porque materiais que apresentam ordem ferromagnética podem ser encontrados em um estado desmagnetizado, Weiss propôs uma hipótese adicional. Ele imaginou que o material deveria ser composto por diversos domínios, cada um deles com sua própria magnetização. O campo molecular alinharia os momentos magnéticos dentro de cada domínio, mas isto não implicaria que a magnetização de domínios diferentes fosse paralela. Os domínios poderiam, então, se orientar de tal maneira que a magnetização total do material fosse nula.

A teoria de Weiss não faz nenhuma menção à origem física do campo molecular. Somente em 1928 esta origem foi compreendida e demonstrada por Heisenberg através da mecânica quântica. O modelo de spins localizados de Heisenberg é fundamentado na constatação de que a interação eletrostática entre dois elétrons pode ser descrita como uma soma de um termo de interação coulombiana direta e um termo de troca. Este termo de troca se deve ao princípio da

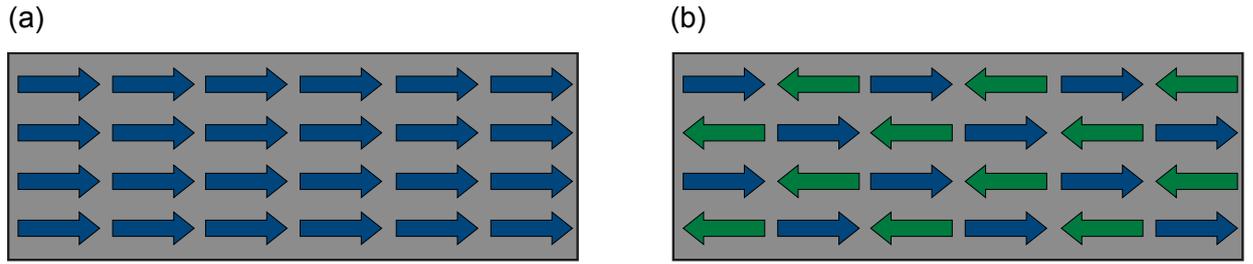


Figura 1.2: Representação ilustrativa de ordem ferromagnética (a) e antiferromagnética (b).

exclusão de Pauli, e garante que dois férmions com os mesmo números quânticos não ocupem a mesma região no espaço.

Partindo de duas funções de onda de elétron único, podemos construir dois tipos de estados de dois elétrons. Em um deles os spins eletrônicos configuram-se paralelamente, e no outro antiparalelamente. É possível escrever a diferença de energia entre estados de spin paralelos e antiparalelos em termos dos operadores de spin  $\mathbf{S}_i$  dos elétrons:

$$h^{\text{spin}} = -J_{1,2} \mathbf{S}_1 \cdot \mathbf{S}_2 . \quad (1.1)$$

A interação de troca (*exchange*) pode ser generalizada para um sistema de muitos spins simplesmente somando os termos bi-lineares na forma

$$E_{\text{ex}} = - \sum_{i \neq j} J_{i,j} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j . \quad (1.2)$$

Este acoplamento favorecerá um alinhamento paralelo se o coeficiente de troca  $J_{i,j}$  for positivo, e um alinhamento antiparalelo se  $J_{i,j}$  for negativo. Se a primeira configuração for energeticamente favorável, podemos compreender a estabilidade do estado ferromagnético, que está ilustrado na figura 1.2 (a). Em alguns casos, entretanto, os detalhes da estrutura eletrônica podem fazer com que um alinhamento antiparalelo de spins vizinhos corresponda à solução de menor energia, o que configuraria um estado ferrimagnético, ou um estado antiferromagnético (AF), como o esquematizado na figura 1.2 (b).<sup>1-4</sup>

Materiais AF não apresentam magnetização espontânea, como no caso de um FM, e poderiam ser confundidos com um material magneticamente desordenado. A primeira evidência da ordem antiferromagnética encontrada foi uma variação muito peculiar da susceptibilidade  $\chi$  com a temperatura. A figura 1.3 ilustra, de maneira esquemática, tal comportamento, juntamente com o que seria esperado para sistemas paramagnéticos e ferromagnéticos. Inicialmente

se pensou que poderia tratar-se de um paramagneto anômalo, entretanto, um estudo mais minucioso revelou uma estrutura magnética completamente diferente. Assim como no caso de um FM, um material AF também apresenta uma temperatura crítica,  $T_N$ , acima da qual se comporta como um paramagneto. Esta é a chamada temperatura de Néel.

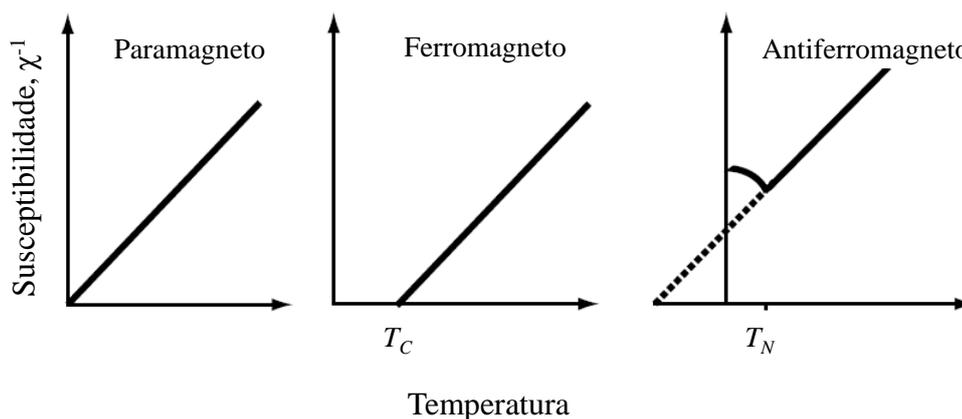


Figura 1.3: Comparação do inverso da susceptibilidade em função da temperatura de um paramagneto, um ferromagneto e um antiferromagneto.<sup>2</sup>

Pode-se tratar um material AF utilizando a teoria de Weiss assumindo que existem dois campos moleculares, cada um agindo em uma sub-rede. A concordância entre modelo e medidas de susceptibilidade é muito boa e fornece evidências indiretas da ordem AF. A primeira evidência direta de que um material era de fato AF veio com o advento da difração de nêutrons. Shull e Smart mostraram, em 1949, que os spins do MnO eram divididos em dois grupos, um antiparalelo ao outro.<sup>7</sup>

A teoria fenomenológica de Heisenberg teve grande sucesso na descrição do comportamento de diversos sistemas magnéticos. Todavia, este modelo de momentos magnéticos localizados não é facilmente conciliável com a estrutura de bandas de alguns sistemas ferromagnéticos. Isto levou Stoner a propor um modelo coletivo do ferromagnetismo,<sup>8</sup> no qual os elétrons magnéticos se distribuem em bandas de estados de Bloch. Nesta aproximação, a interação repulsiva de Coulomb é considerada explicitamente entre partículas de spins opostos em um gás de elétrons. Claramente, elétrons de spins opostos podem se aproximar espacialmente sem violar o princípio da exclusão e, nesta situação, a interação eletrostática pode se tornar relevante.

Uma maneira simples de considerarmos este modelo é assumindo que as bandas de energia são retangulares, ou seja, a densidade de estados é constante e independente da energia  $E$ . Se definirmos a energia de interação de troca por par de elétrons com spins opostos como  $U_{ef}$ ,

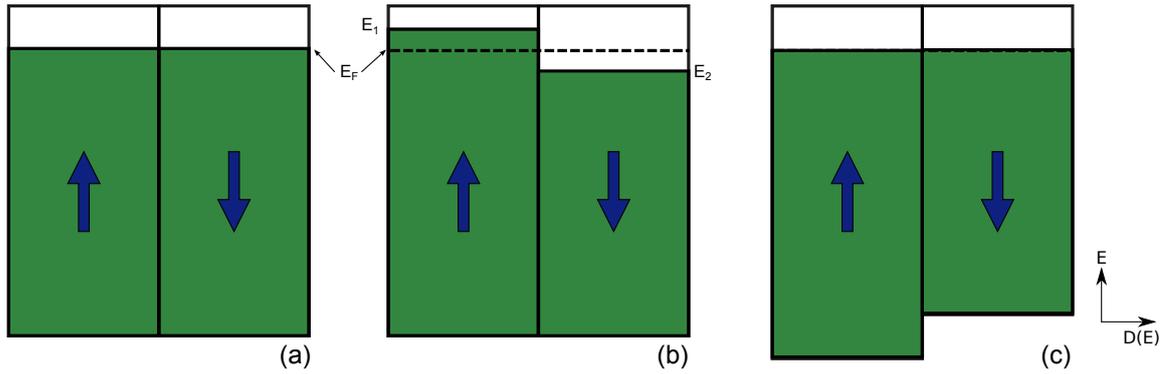


Figura 1.4: Configuração esquemática de bandas de energia em um material ferromagnético. (a) sub-bandas de spin igualmente preenchidas, que levam à magnetização resultante nula. (b) variação da energia cinética quando elétrons têm sua configuração de spin alterada; surgimento de uma magnetização resultante. (c) estabilização do estado ferromagnético através da interação de troca.

podemos escrever a energia de um conjunto de elétrons como

$$E_M = U_{ef} n_1 n_2, \quad (1.3)$$

sendo  $n_1$  e  $n_2$  o número de elétrons em cada estado de spin, e o número total de elétrons é dado por  $n = n_1 + n_2$ . A diferença de energia entre um estado emparelhado [figura 1.4(a)], no qual  $n_1 = n_2 = \frac{n}{2}$ , e um outro em que  $n_1 \neq n_2$  [figura 1.4(c)] será

$$\begin{aligned} \Delta E_M &= U_{ef} n_1 n_2 - U_{ef} \frac{n^2}{4} \\ &= U_{ef} \frac{1}{2} n(1+2p) \frac{1}{2} n(1-2p) - U_{ef} \frac{n^2}{4} \\ &= -U_{ef} n^2 p^2, \end{aligned} \quad (1.4)$$

sendo  $p$  a fração de elétrons que se moveu de uma banda para a outra. Esta transferência de elétrons entre bandas será acompanhada de uma mudança na energia cinética do sistema, como ilustrado na figura 1.4(b). Para um deslocamento pequeno  $\delta E = E_F - E_2 = E_1 - E_F$ , esta variação pode ser escrita como

$$\Delta E_c = \frac{1}{2} \delta E (n_1 - n_2) = \delta E n p. \quad (1.5)$$

Logo,

$$\Delta E = \Delta E_c + \Delta E_M = \delta E n p - U_{ef} n^2 p^2, \quad (1.6)$$

mas  $N(E_F) \delta E = \frac{1}{2} (n_1 - n_2)$ , sendo  $N(E_F)$  a densidade de estados no nível de Fermi. Daí,

$$\Delta E = \frac{n^2 p^2}{N(E_F)} [1 - U_{ef} N(E_F)]. \quad (1.7)$$

Portanto, se  $[1 - U_{\text{ef}}N(E_F)] > 0$ , o estado de maior energia corresponde ao caso  $p = 0$  e o sistema não será ferromagnético. Por outro lado, se  $[1 - U_{\text{ef}}N(E_F)] < 0$ , é favorável que  $p$  seja maior que zero, o que corresponde a um estado ferromagnético.

As propriedades dos metais de transição ferromagnéticos, Fe, Co e Ni, são bem descritos por este modelo. Esta situação, entretanto, não ocorre no caso da grande variedade de magnetos isolantes, nos quais as bandas de valência, totalmente preenchidas, são magneticamente inertes. Para estes sistemas o modelo de Heisenberg fornece uma descrição mais adequada.

## 1.2 Anisotropias magnéticas

Ao estudarmos a resposta magnética de um sistema, em geral estamos interessados na projeção de sua magnetização em um determinado eixo, que normalmente é o do campo externo aplicado. Para alguns materiais, o comportamento observado pode variar em função da direção analisada. Estes são conhecidos como materiais magneticamente anisotrópicos, e diz-se que eles apresentam uma anisotropia magnética.<sup>1,2</sup>

Esta propriedade tem sido estudada nos últimos 80 anos, e surge como uma das mais importantes quando se trata de materiais magnéticos. Além de ser intrigante do ponto de vista da física fundamental, também desempenha papel importante na indústria, sendo explorada em diferentes dispositivos.

Existem vários tipos de anisotropia, e os mais relevantes para o presente trabalho serão discutidos brevemente a seguir.

### 1.2.1 Anisotropia magnetocristalina

Em um material cristalino, os momentos magnéticos orbitais estão fortemente ligados à rede, de maneira que suas orientações estão bem definidas, e mesmo campos magnéticos intensos não são capazes de reorientá-los. Este acoplamento, em geral, distorce os orbitais dos átomos da rede, e estes assumem sua simetria. Existe, entretanto, um acoplamento entre momentos orbitais e os de spin, e é esta interação que dá origem à anisotropia magnetocristalina.<sup>9,10</sup> Na ausência de um campo magnético aplicado, esta interação manterá os spins orientados ao longo de uma determinada direção, minimizando a energia de acoplamento entre eles e os momentos magnéticos orbitais. Se aplicarmos o campo nesta mesma direção não teremos grandes dificuldades em orientar os spins, e rapidamente será atingida a magnetização de saturação. Esta direção é conhecida como de fácil magnetização. Agora, se tentarmos aplicar o

campo em uma direção que não seja a fácil, a interação spin-órbita tentará se opor à reorientação dos spins, e a saturação será atingida apenas para campos mais intensos. Em determinados eixos esta oposição é máxima, e temos uma direção difícil, ou dura, de magnetização.

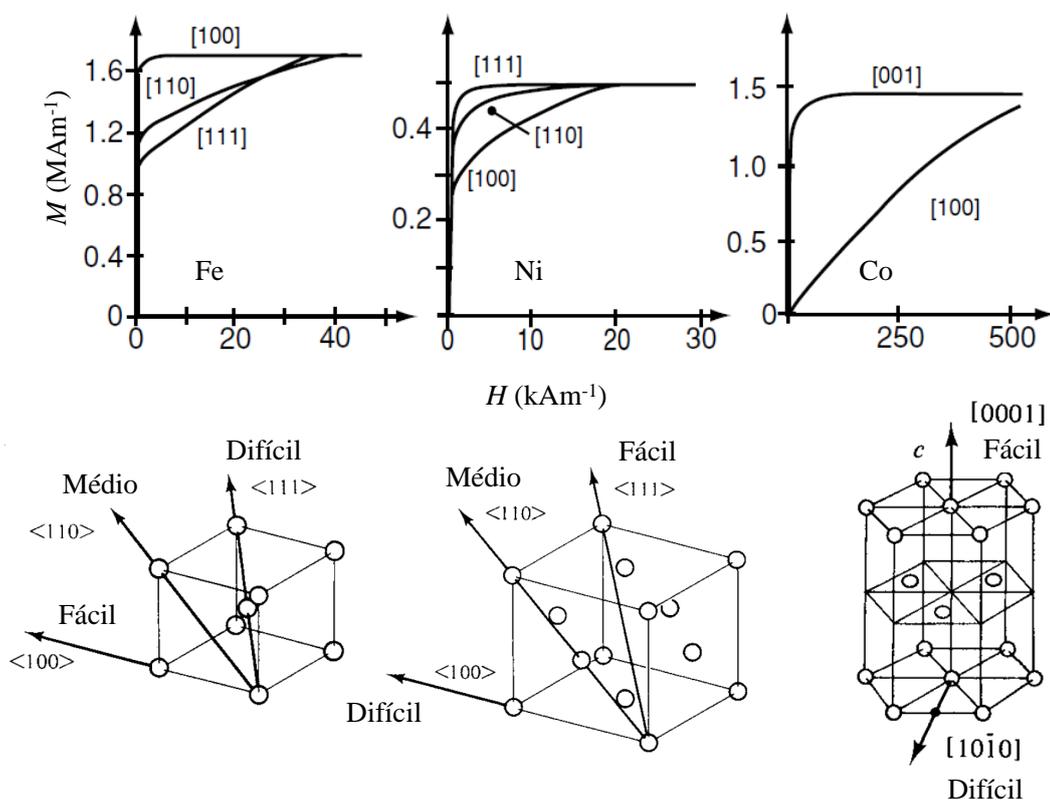


Figura 1.5: Curvas de magnetização para monocristais de ferro, níquel e cobalto<sup>2</sup> e representação de suas respectivas redes cristalinas.<sup>1</sup>

Ao observarmos laços de histerese,  $M \times H$ , de um material ferromagnético podemos notar que, para algumas amostras, o formato das curvas depende da direção em que elas são medidas, como podemos ver na figura 1.5. Para o ferro, que apresenta estrutura cúbica de corpo centrado, temos eixos fáceis ao longo das arestas do cubo,  $\langle 100 \rangle^*$ , e eixo difícil ao longo de sua diagonal,  $\langle 111 \rangle$ . O níquel também apresenta estrutura cúbica, porém de face centrada. Ao contrário do ferro, as arestas do cubo são eixos duros e o eixo fácil se encontra na diagonal  $\langle 111 \rangle$ .

Ao submetermos um cristal à ação de um campo magnético, o campo terá de exercer trabalho para reorientar os spins, e retirá-los de sua posição de equilíbrio. Desta forma o cristal armazena uma certa quantidade de energia, chamada de energia de anisotropia. Para o caso de um cristal cúbico, como Fe e Ni, podemos escrever esta energia em função da orientação de  $\mathbf{M}$

\*[] denota uma única direção, enquanto  $\langle \rangle$  um conjunto de direções equivalentes.

em relação a cada um dos eixos do cubo. Obtemos a seguinte expressão fenomenológica:

$$E_{\text{cub}} = K_0 + K_1 (\alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2 + \alpha_3^2 \alpha_1^2) + K_2 (\alpha_1^2 \alpha_2^2 \alpha_3^2) + \dots, \quad (1.8)$$

onde  $K_0$ ,  $K_1$  e  $K_2$  são constantes particulares de cada material, com dimensão de energia por volume. Os  $\alpha_i$  são os cossenos dos ângulos entre  $\mathbf{M}$  e cada um dos eixos do cubo. Potências mais altas dos  $\alpha_i$  geralmente não são necessárias, e eventualmente  $K_2$  é tão pequeno que o seu termo pode ser ignorado.

A determinação de quais direções serão de fácil magnetização e quais serão de difícil depende da relação entre os valores de  $K_1$  e  $K_2$ . A constante  $K_0$  é geralmente ignorada, pois aparece sozinha em um termo que não depende de ângulo e em geral estamos preocupados com a variação de  $E_{\text{cub}}$  quando o vetor  $\mathbf{M}$  muda de direção.

No caso do cobalto, em sua forma maciça, temos uma estrutura cristalina hexagonal, como mostra a figura 1.5. A energia de anisotropia associada com esta estrutura,  $E_{\text{hex}}$ , só depende do ângulo  $\theta$  entre  $\mathbf{M}$  e o eixo  $c$ ,

$$E_{\text{hex}} = K'_0 + K'_1 \sin^2 \theta + K'_2 \sin^4 \theta + \dots \quad (1.9)$$

Na equação 1.9,  $K'_0$ ,  $K'_1$  e  $K'_2$  são constantes que dependem do material, e mais uma vez a relação entre elas determinará quais são os eixos fáceis. Para o cobalto,  $K'_1 > 0$  e  $K'_2 > -K'_1$ , e o mínimo de energia é atingido para  $\theta = 0$ . Apenas o eixo hexagonal  $c$  é de fácil magnetização, e qualquer direção no plano basal é igualmente de difícil magnetização. Quando um cristal apresenta apenas um eixo de fácil magnetização, como o cobalto, dizemos que ele tem anisotropia uniaxial. Quando em forma de filme fino, entretanto, o Co pode apresentar uma estrutura cúbica.

### 1.2.2 Anisotropia de forma

Ao magnetizarmos uma amostra, observamos o surgimento de polos magnéticos não-compensados em suas extremidades. Estes polos são capazes de produzir um campo magnético, cujas linhas sempre partem do polo norte e chegam no polo sul. Isto vale tanto para o exterior quanto para o interior da amostra, como mostra a figura 1.6. O campo magnético criado no interior da amostra tende a se orientar no sentido oposto ao da magnetização que o cria, sendo chamado de campo desmagnetizante,  $\mathbf{H}_d$ .

O campo  $H_d$  é extremamente dependente do formato da amostra, e sua intensidade é proporcional à magnetização que o cria,  $\mathbf{H}_d = N_d \mathbf{M}$ . Se tomarmos uma amostra esférica, que

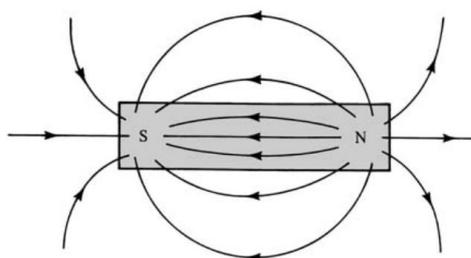


Figura 1.6: Campo magnético,  $H$ , produzido pelos polos de uma barra magnetizada.<sup>1</sup>

não apresenta anisotropia cristalina, e medirmos sua magnetização em diferentes direções, não notaremos diferenças. Repetindo o mesmo procedimento para uma amostra em formato de elipsóide, por exemplo, observaremos o surgimento de uma anisotropia. Trata-se da anisotropia de forma, que se deve ao campo desmagnetizante da amostra.

A anisotropia de forma é mais intensa para os eixos mais curtos do material, favorecendo a orientação de sua magnetização nas dimensões mais alongadas. No caso de filmes finos, em que uma dimensão é muito menor que as outras duas, a anisotropia de forma tende a manter a magnetização presa ao plano do filme.

Para uma discussão mais aprofundada sobre anisotropias magnéticas, veja, por exemplo, as referências [11, 12].

### 1.3 Exchange bias

O fenômeno de *exchange bias* (EB) foi observado pela primeira vez em partículas de Co envolvidas por seu óxido natural, o CoO,<sup>13</sup> em 1956. Na época, notou-se que a curva de histerese magnética<sup>†</sup> deste sistema apresentava um deslocamento em campo. Todavia, tal efeito só ocorria quando a amostra era previamente resfriada na presença de um campo magnético aplicado. Além disso, para uma temperatura maior do que a temperatura de Néel ( $T_N$ ) do CoO, temperatura para a qual o material AF torna-se paramagnético, as partículas comportavam-se como se fossem de Co puro. Concluiu-se, portanto, que o efeito surgia da interação entre o material ferromagnético e o antiferromagnético, e poderia ser descrito como uma anisotropia de troca. Desde então, o fenômeno foi observado em inúmeros sistemas, como por exemplo

<sup>†</sup>Curva que ilustra o valor da projeção da magnetização,  $M$ , na direção de um campo magnético,  $H$ , em função do módulo deste ao longo de um ciclo.

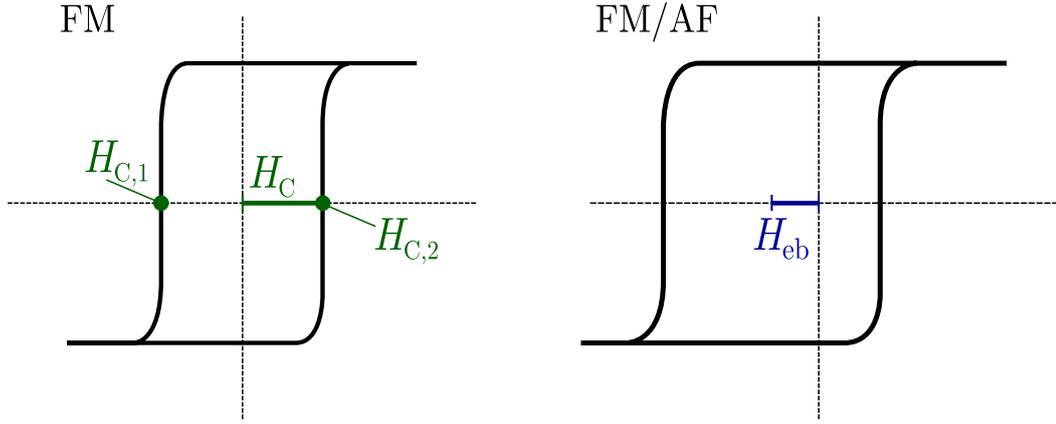


Figura 1.7: Curvas de magnetização para um FM desacoplado e para um sistema que possui uma interface FM/AF.

pequenas partículas,<sup>13,14</sup> filmes finos,<sup>15–17</sup> filmes FM sobre monocristais AF,<sup>18,19</sup> e materiais inhomogêneos.<sup>20,21</sup>

Além do supracitado deslocamento em campo das curvas de histerese, sistemas com EB apresentam outros comportamentos característicos. O aumento do campo coercivo, quando comparado com o de um material FM desacoplado, é um dos mais conhecidos. A Figura 1.7 ilustra este comportamento e nela se pode ver as definições do campo coercivo,  $H_c$ , e do campo de *exchange bias*,  $H_{eb}$ . Estes dois campos representam, respectivamente, metade da largura da curva para  $M = 0$  e o seu deslocamento em relação à origem. Podemos obtê-los conhecendo os valores de  $H$  para os quais a curva cruza o eixo  $M = 0$ :

$$H_c = \frac{|H_{c,1} - H_{c,2}|}{2}, \quad H_{eb} = \frac{H_{c,1} + H_{c,2}}{2}.$$

Uma maneira simplificada de entendermos o fenômeno é através de um modelo intuitivo. A ideia é descrever o efeito em termos do alinhamento paralelo dos spins AF com os FM na interface FM/AF que acontece durante o processo de resfriamento em campo (tratamento térmico). Vamos considerar um material FM cuja temperatura de Curie,  $T_C$ , seja maior do que a  $T_N$  do AF. Sendo assim, ao aquecermos o sistema até uma temperatura  $T$ , tal que  $T_C > T > T_N$ , teremos um FM no estado ferromagnético, enquanto que o AF estará desordenado, em um estado paramagnético [figura 1.8(a)]. Se este processo for feito na presença de um campo magnético externo suficientemente grande, a tendência dos spins na camada FM será de se alinhar com tal campo, até atingirem um estado de saturação. Iremos nos referir a este campo como  $H_{FC}$ , sendo FC as iniciais de *field cooling*. Os spins interfaciais da camada AF começarão a interagir com os da camada FM, tentando manter um alinhamento paralelo a estes. Conforme o sistema é resfriado, ainda na presença do campo, o AF retorna ao seu estado antiferromagnético

original. Entretanto, seus spins interfaciais permanecem alinhados com a camada FM. Como consequência, cada sub-camada subsequente do AF irá se orientar antiparalelamente à anterior, resultando em uma magnetização total nula da porção AF do sistema [figura 1.8(b)].

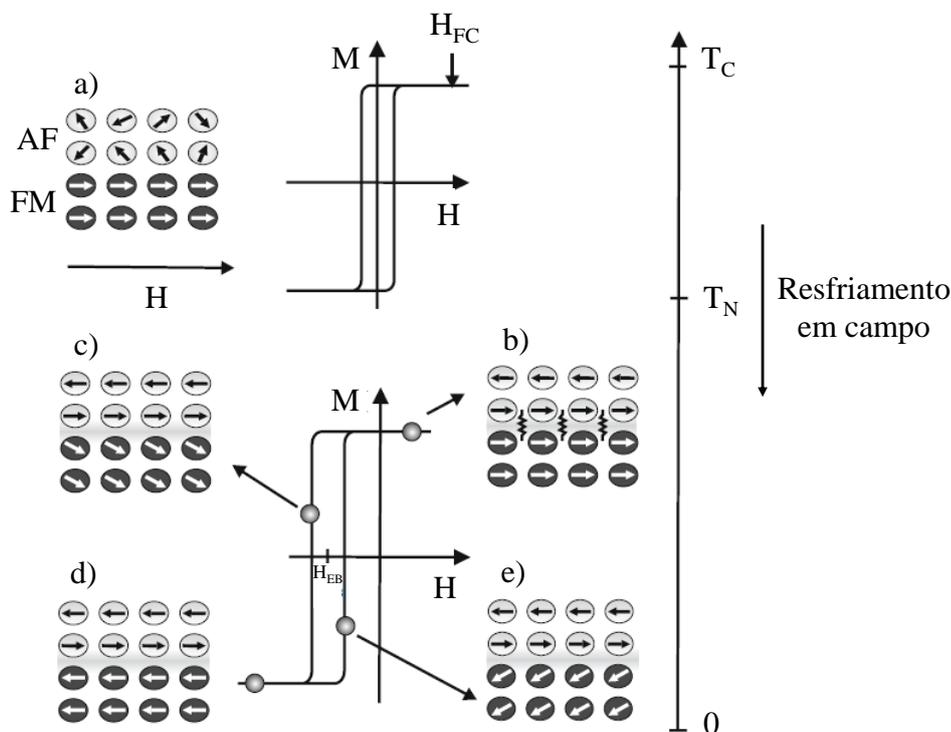


Figura 1.8: Modelo intuitivo para o EB.<sup>22</sup>

Terminado o processo de resfriamento em campo, passaremos agora a analisar o que ocorre durante a construção de uma curva de histerese magnética para este sistema. Através deste modelo intuitivo, dois casos limites opostos podem ser previstos, dependendo da anisotropia do material AF. Se a anisotropia é grande, deveremos observar apenas o deslocamento do ciclo de histerese. Caso a anisotropia seja pequena, apenas um aumento da coercividade é esperado. Inicialmente, vamos considerar uma anisotropia grande para o AF.

Aplicamos um campo magnético com mesma direção e sentido que o campo  $H_{FC}$ , e intenso o suficiente para saturar magneticamente a amostra [figura 1.8(b)]. Aos poucos vamos diminuindo o campo, até que ele se torne nulo, e em seguida invertemos seu sentido. A tendência dos spins FM será a de se reorientar com o novo sentido do campo. Os spins interfaciais da camada AF permanecem fixos, devido a sua grande anisotropia, e tentam impedir esta reorientação, exercendo um torque sobre os spins FM. Isto irá manter a camada FM presa a sua direção original. Para que exista uma reversão da magnetização, o campo externo aplicado deverá ser aumentado, compensando assim o torque exercido pelo AF [figura 1.8(c)]. Em

outras palavras, a reversão da magnetização acontece para um valor de campo magnético maior do que o esperado na ausência do AF. Aumentando ainda mais o campo, chegamos a um estado de saturação na direção oposta a do campo aplicado durante o resfriamento [figura 1.8(d)]. Em seguida diminuimos a intensidade do campo. Agora, o torque exercido pelos spins AF irá ajudar na inversão da magnetização, ao invés de dificultar o processo. Desta forma, um campo magnético menos intenso será necessário para efetuar a inversão. O resultado final desta interação será o deslocamento da curva de histerese magnética. Considerando o sentido do campo  $H_{FC}$  como positivo, o deslocamento será no sentido negativo. Finalmente, invertendo o sentido do campo mais uma vez, e aumentando seu módulo, voltamos ao estado inicial, de saturação [figura 1.8(b)].

Para o caso de uma anisotropia pequena do material AF, teremos um processo um pouco diferente. Novamente, após o resfriamento em campo, teremos os spins interfaciais alinhados. Aplicamos, mais uma vez, o campo magnético na mesma direção e sentido daquele aplicado durante o tratamento térmico. Começamos a diminuir a intensidade do campo, até que ele se anule e, em seguida, inverta seu sentido. Com isto os spins FM tenderão a seguir a nova orientação do campo. Como estamos supondo uma anisotropia muito pequena para a camada AF, seus spins interfaciais serão arrastados pelos da camada FM, resultando em uma rotação conjunta. A energia associada a esta mudança irreversível no AF se traduz, então, em um aumento da coercividade, sem deslocamento da curva de histerese. Um comportamento análogo é observado após saturarmos a amostra no sentido negativo. Resumindo, o campo necessário para inverter a magnetização, em ambos os sentidos, é mais intenso, resultando em uma curva de histerese magnética mais larga.

Apesar de útil para explicar o fenômeno de maneira simples, este modelo deve ser usado com cuidado. Ele não é capaz de prever muitos efeitos associados com o EB que são comumente observados em laboratório. Além disso, parâmetros que se mostram importantes na descrição de um sistema com EB são deixados de fora, como a formação de domínios AF ou FM, a rugosidade das interfaces e a estrutura de spins do material AF. Todavia, a ideia fundamental do modelo, de que o EB é essencialmente um fenômeno interfacial, parece bastante adequada. A primeira evidência deste fato surge do estudo de sistemas na forma de filmes finos, que é largamente difundido dada sua grande aplicabilidade em dispositivos magneto-eletrônicos. Observa-se que  $H_{eb}$  é inversamente proporcional a espessura da camada FM envolvida,<sup>16,22,23</sup> indicando que o efeito diminui conforme a razão entre o volume do FM e a área da interface FM/AF aumenta. Outro indício é a necessidade de contato atômico entre o FM e o AF. Recentemente, um minucioso estudo de filmes de IrMn/Cu/Co mostrou que o campo de *exchange bias* diminui conforme aumenta a espessura do espaçador de cobre.<sup>17,24,25</sup> Um comportamento

semelhante foi observado para filmes também de IrMn/Co, mas com espaçadores de  $\text{Al}_2\text{O}_3$ <sup>26</sup> e Cr.<sup>27</sup> No caso da alumina, o decréscimo do  $H_{\text{eb}}$  com a espessura foi mais rápido que o da amostra com cobre. Concluiu-se que tal decréscimo estava ligado à diminuição da superfície de contato interfacial. Tratando-se de amostras depositadas via *magnetron-sputtering*, camadas muito finas dos espaçadores não são capazes de separar completamente as duas camadas magnéticas devido a sua rugosidade, permitindo assim uma interação através de *pinholes*. Uma vez que uma espessura crítica é atingida, de forma a cobrir completamente a interface, o efeito cessa imediatamente.

Existe uma forte correlação entre a configuração magnética na interface FM/AF e o EB. Filmes policristalinos podem ser considerados como divididos em duas fases magnéticas, uma FM e outra AF, ambas desordenadas (pelo menos parcialmente). Na interface entre estas fases existem *clusters* de spins ordenados ferromagneticamente. Cada *cluster* se comporta como um domínio FM, possuindo suas próprias características e interagindo com os domínios FM e/ou AF adjacentes através de uma interação de troca direta. Podemos tratar estes *clusters* simplesmente como momentos magnéticos não-compensados, ou ainda spins não-compensados (UCS). Estes UCS poderiam ser spins AF congelados espontaneamente,<sup>28</sup> ou partículas ferro- ou ferromagnéticas magneticamente duras resultantes de reações químicas na interface AF/FM.<sup>29</sup> A fração de UCS cujos momentos magnéticos se mantêm relativamente estáveis durante a reversão da magnetização do FM é responsável pelo deslocamento da curva de histerese. Nem todo sistema que contém uma interface FM/AF, porém, apresenta deslocamento em campo de seu laço de histerese logo que construído. Na maioria dos casos é necessário que um procedimento de ativação seja implementado, justamente para alinhar estes momentos estáveis em uma direção preferencial. Pode-se depositar o filme na presença de um campo magnético, submeter a amostra a um bombardeamento iônico<sup>30-33</sup> ou a um tratamento térmico<sup>34,35</sup> também na presença de campo, ou ainda, aplicar campos magnéticos extremamente intensos.<sup>36,37</sup> No caso de um material FM com anisotropia pequena, mesmo sua magnetização remanente é capaz de iniciar o fenômeno.<sup>38</sup> Em geral, o papel do campo magnético aplicado durante este tipo de procedimento é simplesmente o de orientar magneticamente a camada ferromagnética presente no sistema. Acredita-se que é a partir da interação dos momentos magnéticos desta camada com os spins interfaciais não-compensados que um eixo de EB é induzido.

Os momentos interfaciais instáveis, por sua vez, podem acompanhar a reversão da magnetização da camada FM, dando origem a chamada anisotropia rodável<sup>‡</sup> (RA), agente principal do aumento do  $H_c$ . É possível visualizarmos a influência do campo de anisotropia rodável,  $\mathbf{H}_{\text{RA}}$ , em medidas de ressonância ferromagnética (FMR) executadas em filmes com EB. O

<sup>‡</sup>do inglês *rotatable*, em tradução livre

que normalmente se observa é um deslocamento da curva  $H_{res} \times \phi_H$ , sendo  $H_{res}$  o campo de ressonância e  $\phi_H$  o ângulo de aplicação deste campo no plano do filme. Usualmente, valores menores de  $H_{res}$  são obtidos para amostras com RA quando comparados com aqueles medidos em sistemas que não apresentam esta contribuição.

Alguns modelos foram propostos para explicar este comportamento das curvas de FMR, assim como o aumento de  $H_c$ . Após um estudo cuidadoso em filmes de  $Ni_{80}Fe_{20}$  acoplados com NiO, McMichael e colaboradores<sup>39</sup> reproduziram seus resultados experimentais considerando um termo de RA na forma  $-\mathbf{M} \cdot \mathbf{H}_{RA}$ . Neste caso  $\mathbf{H}_{RA}$  era praticamente paralelo ao campo aplicado  $\mathbf{H}$ . Quando processos irreversíveis de magnetização estão envolvidos, entretanto, é necessário considerarmos uma RA proporcional a  $-(\mathbf{M} \cdot \mathbf{H})^2$  para que seja possível a reprodução de curvas de histerese completas.<sup>40</sup> Desta forma, o acoplamento com os UCS instáveis, ou rodáveis, é sentido pelo FM como uma anisotropia uniaxial adicional que possui um eixo de simetria sempre paralelo ao campo aplicado. Esta aproximação fenomenológica é capaz de explicar qualitativamente tanto o deslocamento das curvas de FMR quanto o aumento da coercividade.

Recentemente, foi proposta uma abordagem mais realista da anisotropia rodável [ver seção (3.1)]. Considerou-se um sistema policristalino que apresenta uma interface FM/AF formada por grãos ferromagnéticos. Cada um destes grãos, ou UCS, possui propriedades distintas de anisotropia e acoplamento. Spins não-compensados instáveis acompanham a reversão da magnetização da camada FM, contribuindo para um aumento do campo coercivo e representando a RA. Já os grãos estáveis se responsabilizam pelo deslocamento da curva de histerese. O modelo, que é baseado no de Fulcomer e Charap,<sup>41</sup> obteve bons resultados, conseguindo prever coercividade na curvas de eixo difícil e efeitos de treinamento.<sup>42</sup>

A curva de histerese de um material FM livre, ou seja, não acoplado com um AF, geralmente é simétrica, tanto em relação ao eixo de magnetização quanto ao de campo magnético. Para um sistema com EB isso nem sempre é verdade, e observa-se frequentemente uma assimetria entre o ramo descendente e o ascendente do campo.<sup>22</sup> Esta propriedade intrínseca do EB também foi atribuída à anisotropia rodável por alguns autores.<sup>43</sup> Entretanto, efeitos semelhantes podem acontecer devido a mudanças irreversíveis do AF durante a medida da curva de magnetização.

Juntamente com a configuração magnética das interfaces, as características estruturais das amostras apresentam grande influência sobre o EB. A maior parte dos resultados experimentais concordam que, em filmes finos texturizados, a magnitude de  $H_{eb}$  decresce com o aumento da rugosidade.<sup>44,45</sup> Entretanto, alguns sistemas se mostram mais resistentes a sua influência,<sup>46,47</sup> e outros se comportam da maneira inversa,<sup>48</sup> ou seja, quanto maior a rugosidade maior  $H_{eb}$ .

Outro fator importante é a espessura da camada AF. Observa-se a existência de uma espessura mínima, abaixo da qual não verifica-se o deslocamento da curva. Aumentando um pouco esta espessura o efeito surge, aumenta abruptamente, e finalmente se estabiliza.<sup>16,23</sup> Em alguns casos podemos observar um máximo de  $H_{eb}$  antes que este atinja um valor estável. A espessura exata em que cada um destes estágios é atingido depende do material em questão, de sua estrutura microscópica e da temperatura de medida. Tal comportamento pode estar ligado a diversos fatores, dentre eles o fato de que a anisotropia de um filme muito fino pode não ser suficiente para impedir a rotação da camada FM e de que  $T_N$  pode se modificar com a espessura do AF. Mesmo assim, é possível que uma camada AF pouco anisotrópica modifique as propriedades do sistema, já que pode existir uma contribuição na forma de anisotropia rodável.

Como o EB depende da ordem magnética das diferentes camadas envolvidas, não é surpreendente que ele possua uma dependência com a temperatura. Ao elevarmos a temperatura do sistema perceberemos que em certo momento o efeito some, e a temperatura em que isto acontece é chamada de temperatura de bloqueio,  $T_B$ . Na maioria dos casos  $T_B$  é menor que  $T_N$  do material AF envolvido, em outros, porém, temos  $T_B \approx T_N$ . O valor de  $T_B$  pode estar ligado ao tamanho dos grãos interfaciais ou à anisotropia do AF, podendo ser menor para filmes finos do que para materiais macroscópicos.<sup>23</sup>

A cristalinidade e o tamanho dos grãos também são parâmetros que devem ser controlados e caracterizados. No caso do IrMn, que é o material AF estudado neste trabalho, o crescimento do filme com uma textura (111) é fundamental para a observação do EB.<sup>49</sup> O tamanho dos grãos AF também pode ter influência, modificando, inclusive, a  $T_B$  do sistema.<sup>50</sup>

Um entendimento teórico completo do EB tem se mostrado um objetivo difícil de ser alcançado. A primeira dificuldade que surge ao tentarmos compreender o fenômeno é a vasta gama de sistemas em que ele é observado. Também é preciso contornar um outro problema fundamental, que está intimamente ligado ao surgimento do efeito. O EB é um fenômeno de interface, e esta esconde inúmeras características relevantes que são desconhecidas por nós. Conhecer tais características seria fundamental para construirmos um modelo satisfatório, completo. Infelizmente, na maioria das vezes a caracterização experimental de interfaces é complicada e não consegue fornecer informações suficientes.

Diversos modelos foram propostos desde 1956, e pode-se dizer que vários obtiveram bons resultados. O primeiro deles<sup>51</sup> assume uma camada FM que rotaciona de forma rígida, como um todo. Tanto o FM como o AF são tratados como monodomínios, e a interface entre eles como sendo perfeitamente lisa. A camada AF possui anisotropia uniaxial no plano, e não rotaciona, permanecendo imóvel durante a reversão da magnetização da camada FM. Os spins interfaci-

ais AF são não-compensados, ou seja, possuem momento magnético resultante e apresentam uma interação de troca com os spins interfaciais FM. O parâmetro que rege esta interação é a constante de energia de acoplamento de troca interfacial por unidade de volume do FM,  $J_E$ . O modelo é bem sucedido em prever o deslocamento do ciclo de histerese, porém, o valor previsto por ele para tal deslocamento pode ser ordens de grandeza maior do que o observado experimentalmente.<sup>22</sup> Para estimar o valor de  $H_{eb}$  usando este modelo é necessário conhecer  $J_E$ , o que é difícil de ser medido experimentalmente. Normalmente, se utiliza para o cálculo um valor tal que  $J_{AF} < J_E < J_{FM}$ , sendo  $J_{AF}$  e  $J_{FM}$  as constantes de acoplamento de troca dentro das camadas AF e FM, respectivamente. Além da falta de informação sobre  $J_E$ , existe a suposição de que a interface é perfeitamente lisa, o que geralmente não é o caso.

Dez anos após a descoberta do EB por Meiklejohn e Bean, Néel propôs uma nova teoria sobre o efeito.<sup>52</sup> Seu modelo trazia uma interface AF não-compensada, que poderia sofrer deformações irreversíveis durante a reversão da magnetização da camada FM. Esta era uma grande mudança em relação ao modelo anterior, que assumia uma camada AF rígida, ou com um pequeno desvio de seu eixo de anisotropia. Néel foi o primeiro a introduzir a possibilidade da evolução de uma parede de domínio no interior do AF durante a reversão da magnetização. Esta parede seria capaz de armazenar parte de energia de acoplamento de troca envolvida, o que diminuiria o  $H_{eb}$ . Apesar destas ideias inovadoras, o modelo falha em obter valores razoáveis para o deslocamento em campo das curvas de histerese. Além disso, exige espessuras mínimas das camadas FM e AF, o que restringe muito sua aplicação em filmes finos comumente utilizados nos dias de hoje.

Em meados de 1972, Fulcomer e Charap<sup>41</sup> propuseram um modelo que considera um filme fino de material FM coberto por uma camada AF constituída de inúmeras pequenas partículas. Foram levadas em conta diversos tamanhos e formatos de partículas, e uma boa concordância entre simulação e experimento foi obtida para *permalloy* oxidado. A dependência de  $H_{eb}$  e  $H_c$  com a temperatura, mesmo para  $T > T_N$ , foi prevista com sucesso. Este modelo, considerado por alguns como um dos mais bem sucedidos quando se trata de EB, hoje serve como alicerce para modelos granulares baseados em flutuações térmicas.

Para obter uma melhor previsão quantitativa dos efeitos do EB, Mauri e colaboradores propuseram, em 1987, a criação de uma parede de domínio no interior do material AF, impondo assim um limite superior para o valor de  $H_{eb}$ . Eles consideraram um acoplamento ferromagnético através de uma interface FM/AF perfeitamente lisa. A camada AF era infinitamente mais espessa do que a FM, e esta última tinha espessura menor do que a largura de uma parede de domínio. Desta forma uma parede de domínio não poderia se desenvolver dentro do FM, evo-

luindo, então, para o interior do AF. Este foi o primeiro modelo de domínios para o EB após o de Néel, e obteve bons resultados quando se trata dos valores de  $H_{eb}$ . Entretanto, algumas das características básicas do fenômeno não puderam ser explicadas por ele, como por exemplo o aumento do  $H_c$  e a diminuição do deslocamento em campo das curvas após ciclos repetidos.

Malozemoff, também em 1987, propôs um modelo que introduzia uma interface aleatoriamente rugosa entre o FM e o AF,<sup>53</sup> o qual foi capaz de obter valores razoáveis para  $H_{eb}$ . Esta rugosidade dava origem a campos magnéticos aleatórios, que agiam sobre os spins da interface, gerando uma anisotropia unidirecional e, conseqüentemente, um deslocamento das curvas de histerese. Infelizmente, este modelo só pode ser aplicado para AF monocristalinos, tornando-se muito complicado para o caso policristalino, no qual os resultados dependeriam de sua microestrutura. Outra desvantagem é sua dependência crucial com a concentração de defeitos na interface e sua incapacidade de prever EB em interfaces perfeitamente compensadas.

Diferentemente de Mauri *et. al.*<sup>54</sup> e Malozemoff,<sup>53</sup> Koon<sup>55</sup> foi capaz de encontrar, através de uma análise microscópica, EB em interfaces compensadas. Sua proposta era a de uma camada FM cuja magnetização se orientava perpendicularmente ao eixo fácil (EF) do AF. Com este acoplamento perpendicular (semelhante ao *spin-flop* em um *bulk* AF) tanto interfaces compensadas como não-compensadas são capazes de produzir valores semelhantes de  $H_{eb}$ . Isto se deve à formação de uma parede de domínio no AF, paralela à interface, durante a reversão da magnetização do FM. Koon também observou uma pequena inclinação relativa entre os spins interfaciais da camada AF. Este efeito, entretanto, acabava diminuindo para spins localizados fora da interface, eventualmente sumindo após algumas mono-camadas.

Os modelos de Malozemoff e Koon foram combinados por Schulthess e Butler<sup>56,57</sup> entre 1998 e 1999. Além dos tradicionais termos de anisotropia, acoplamento e Zeeman, eles adicionaram uma interação dipolar entre os momentos magnéticos. Através da solução da equação de Landau-Lifshitz, incluindo o termo de amortecimento de Gilbert-Kelley, eles foram capazes de obter as propriedades magnéticas do sistema. Assumindo uma interface plana, e acoplamento perpendicular entre FM e AF, como no modelo de Koon, não foi possível observar  $H_{eb} \neq 0$ . Entretanto, um aumento na coercividade da camada FM foi percebido, o que é uma característica comum em sistemas com EB. Adicionando defeitos à interface, como na proposta de Malozemoff, eles conseguiram obter campos de EB da mesma ordem de grandeza dos observados experimentalmente. Os valores de  $H_{eb}$ , entretanto, dependem da natureza e concentração dos defeitos interfaciais, o que dificulta a aplicação deste modelo. Além disso, o modelo trata somente de sistemas idealizados, nos quais ambas as camadas são monocristalinas e comportam-se como mono-domínios.

Também em 1999, Stiles e McMichael<sup>58</sup> tentaram uma aproximação diferente do problema, considerando bicamadas FM/AF policristalinas. Ao invés de considerarem átomos ou momentos magnéticos, eles focaram nos grãos interfaciais da camada AF. Estes grãos não interagem entre si, mas eram acoplados via interação de troca e *spin-flop* com o FM. Dois tipos diferentes de grãos são considerados. Os estáveis, que mantêm sua ordem magnética durante a reversão da magnetização, são responsáveis pelo deslocamento da curva de histerese. Já os instáveis, desenvolvem uma parede de domínio em seu interior, sendo responsáveis por efeitos histeréticos observados em curvas de torque rotacional e ressonância ferromagnética.

O modelo de estado de domínio (*Domain state model*) foi introduzido por Nowak e colaboradores em 2002.<sup>59</sup> Ele traz um material AF diluído, com defeitos representados por átomos não magnéticos, tanto em sua interface quanto no seu interior. Neste modelo o EB aparece através de um estado de domínio criado no AF durante o resfriamento em campo. Este estado é metaestável, mas acaba “congelando-se” durante o processo de resfriamento. A existência de defeitos não magnéticos facilita a criação de uma parede de domínio através destes sítios, diminuindo a energia necessária para formá-la. O modelo é capaz de reproduzir muito bem alguns dos resultados experimentais obtidos para materiais AF cuidadosamente dopados com impurezas não-magnéticas.<sup>60,61</sup>

## 1.4 Curvas de remanência

Magnetização remanente, ou simplesmente remanência, é o nome dado à magnetização residual apresentada por um material ferromagnético na ausência de um campo magnético externo. Seu valor depende da história magnética do sistema, e diferentes tipos de curvas envolvendo-a podem ser obtidos, dependendo do processo de aquisição implementado. Tais curvas podem ser ferramentas interessantes na caracterização de materiais ferromagnéticos. Em especial, podemos citar as chamadas *isothermal remanent magnetization curves* (IRM) e as *dc demagnetization curves* (DCD). Para se obter uma curva de IRM parte-se de um estado desmagnetizado, aplica-se um campo magnético  $H_i$  que é em seguida removido e mede-se a magnetização remanente  $M_r(H_i)$ . O valor de  $H_i$  é gradativamente aumentado, até que um valor de saturação  $M_r(\infty)$  seja atingido. No caso de curvas DCD, a remanência,  $M_d(H_j)$ , é adquirida após a saturação dc da amostra em um determinado sentido e subsequente aplicação e remoção de um campo magnético  $H_j$  no sentido contrário. Exemplos de curvas de IRM e DCD podem ser vistos no painel superior da figura 1.9.

O estado inicial desmagnetizado pode ser obtido através de um processo de desmagnetização ac, dc ou térmico, dando origem a curvas distintas de IRM. Em um processo de desmagnetização térmico, a amostra é aquecida até uma temperatura  $T$  tal que  $T > T_C$ , e resfriada na ausência de campos magnéticos externos. Isto leva a uma orientação aleatória das magnetizações dos domínios magnéticos, resultando em um estado de magnetização total nula.<sup>1</sup> No caso de uma desmagnetização ac, não existe a necessidade de elevarmos a temperatura do sistema, e o estado desmagnetizado é obtido através da aplicação de um campo magnético cíclico e de amplitude decrescente. Para entendermos este processo de maneira simples, podemos imaginar que nosso sistema é composto por diversos elementos magnéticos que possuem campos de anisotropia variados, seguindo determinada distribuição. Inicialmente, aplicamos um campo magnético intenso  $H_{des}$  em uma determinada direção, de maneira a alinhar a magnetização da amostra. Em seguida, a orientação do campo é invertida e sua amplitude é elevada até atingir um valor  $H_{des} - \delta H$ , menor que o valor inicial  $H_{des}$ . Neste processo, os momentos magnéticos que possuem campos de anisotropia  $H_{ani} < H_{des} - \delta H$  terão sua orientação alterada, seguindo o novo sentido do campo. Já aqueles que apresentam  $H_{ani} > H_{des} - \delta H$  permanecerão estáveis. Repetindo o procedimento para amplitudes decrescentes do campo aplicado reverteremos uma quantidade cada vez menor de momentos magnéticos em cada ciclo, nos aproximando de um

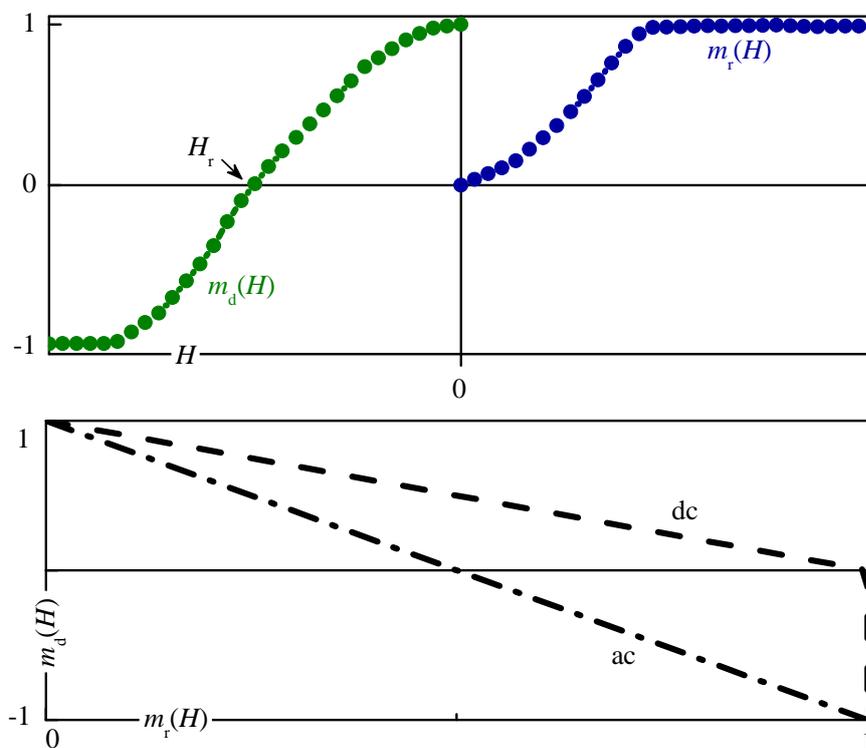


Figura 1.9: Painel superior: exemplos de curvas de IRM e DCD. Painel inferior: Gráfico de  $m_d(H) \times m_r(H)$  obtido para a equação (1.11) e  $m_d(H) \times m_r^{dc}(H)$  obtida para as equações (1.12) e (1.13).

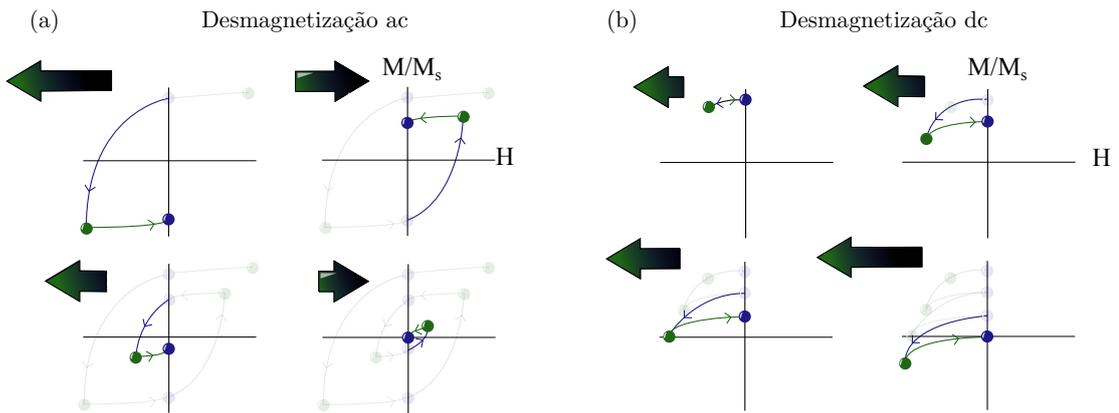


Figura 1.10: Ilustração esquemática dos processos de desmagnetização (a) ac e (b) dc.

estado desmagnetizado.<sup>1,11</sup> A figura 1.10 (a) apresenta de maneira esquemática o método de desmagnetização ac.

O processo de desmagnetização dc está ilustrado na figura 1.10 (b). Assim como no caso ac, um estado desmagnetizado é obtido apenas através da aplicação de campos externos. Aqui, porém, parte-se de uma configuração de saturação em um determinado sentido e aplica-se um campo  $H_{des}$  de baixa amplitude no sentido oposto. Em seguida remove-se o campo e verifica-se a magnetização remanente. O processo é repetido para valores cada vez maiores de  $H_{des}$ , até que a magnetização resultante na ausência de campo se anule.

Existe uma relação entre  $M_r(H)$  e  $M_d(H)$  quando consideramos um sistema de partículas não-interagentes que são mono-domínios e possuem anisotropia uniaxial,<sup>62</sup>

$$M_d(H) = M_r(\infty) - 2M_r(H). \quad (1.10)$$

Esta expressão ficou conhecida como relação de Wohlfarth e aplica-se para o caso em que o estado inicial da curva IRM foi obtido via desmagnetização ac ou térmica. Dividindo a equação acima por  $M_r(\infty)$ , obtemos sua versão normalizada

$$m_d(H) = 1 - 2m_r(H), \quad (1.11)$$

onde  $m_d(H) = M_d(H)/M_r(\infty)$  e  $m_r(H) = M_r(H)/M_r(\infty)$ . A conexão entre  $m_d(H)$  e a curva de IRM obtida após uma desmagnetização dc,  $m_r^{dc}(H)$ , foi derivada por Bissel e colaboradores<sup>63</sup> e

é dada por

$$m_r^{\text{dc}}(H) = 1 - m_d(H) \quad \text{para } H < H_r, \text{ e} \quad (1.12)$$

$$m_r^{\text{dc}}(H) = 1 \quad \text{para } H \geq H_r, \quad (1.13)$$

sendo  $H_r$  a coercividade de remanência, i.e., o valor de campo para o qual  $m_d = 0$ .

Apesar das equações que relacionam  $m_r(H)$  e  $m_d(H)$  se aplicarem para um tipo muito específico de sistema, é possível comparar curvas experimentais com as retas teóricas mostradas no painel inferior da figura 1.9, e extrair algumas informações. Desvios das retas previstas por (1.11), (1.12) e (1.13) podem indicar diferentes características, como interações entre as partículas, anisotropia não-uniaxial, multidomínios e efeitos de rotação não-coerente. São justamente estes desvios que são estudados na tentativa de obter informações sobre as interações entre partículas de um determinado sistema.

Experimentalmente, os procedimentos usuais aplicados neste tipo de investigação derivam das equações propostas por Wohlfarth e Bissel *et al.* Apesar de não ter derivado as conexões entre os diferentes tipos de curvas de remanência, Henkel foi o primeiro a propor que as curvas de  $m_d(H) \times m_r(H)$  fossem analisadas,<sup>64</sup> ficando este tipo de gráfico conhecido mais tarde como gráfico de Henkel (*Henkel plot*). Usualmente, associa-se *Henkel plots* (HP) que ficam acima das curvas teóricas mostradas na figura 1.9 com interações magnetizantes, ou seja, que favorecem o estado magnetizado. Por outro lado, quando o gráfico de Henkel fica abaixo destas curvas diz-se que as interações do sistema são desmagnetizantes, facilitando a existência de um estado desmagnetizado.

Se pode entender de maneira simples as relações indicadas pelas equações (1.11), (1.12) e (1.13). Vamos imaginar um sistema composto por diversas partículas não-interagentes, que são mono-domínios magnéticos e apresentam anisotropia uniaxial. Para uma determinada direção de aplicação do campo externo, estas partículas podem ser caracterizadas por seus campos críticos de reversão,  $H_{\text{rev}}$ , nos quais a orientação de sua magnetização é modificada de maneira irreversível. No caso de um processo de desmagnetização dc, partimos de um estado em que a magnetização remanente está saturada em um determinado sentido. Ao aplicarmos campos magnéticos cada vez mais intensos no sentido oposto, as partículas com  $H_{\text{rev}}$  menores revertem sua magnetização de maneira irreversível, até que um estado de remanência nula seja atingido, o que ocorre quando  $H = H_r$ . Ao traçarmos a curva  $m_r^{\text{dc}}(H)$ , apenas a magnetização destas partículas mais instáveis será revertida. Para um determinado campo  $H < H_r$ , o mesmo conjunto de partículas terá sua magnetização revertida na curva  $m_r^{\text{dc}}(H)$  e na curva  $m_d(H)$ . Portanto, o

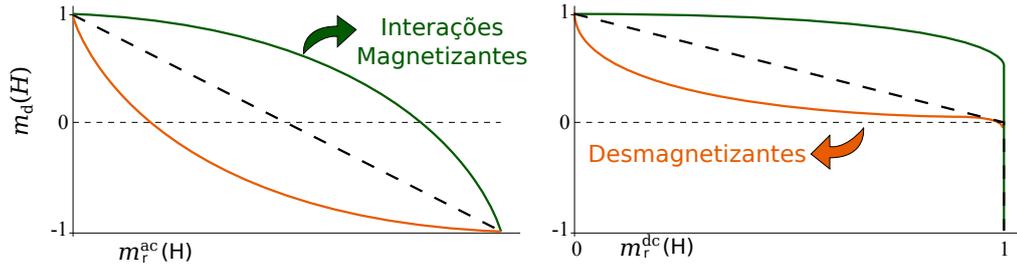


Figura 1.11: Ilustração esquemática dos desvios dos *Henkel plots* em relação ao comportamento previsto para sistemas de partículas não-interagentes que são mono-domínios magnéticos e possuem anisotropia uniaxial quando interações magnéticas atuam no sistema.

valor de  $m_r^{dc}(H)$  pode ser obtido subtraindo da magnetização remanente de saturação o valor de  $m_d(H)$ , como mostra a equação (1.12). Quando  $H > H_r$ , a curva  $m_r^{dc}(H)$  encontra seu valor de saturação, já que as magnetizações revertidas durante a desmagnetização retornaram ao seu estado original, e a relação (1.13) pode ser obtida.

Se o sistema é submetido a um processo de desmagnetização ac, ele atinge um estado onde as magnetizações das partículas orientam-se aleatoriamente. Desta forma, ao aplicarmos um determinado campo  $H$  durante o traçado da curva  $m_r^{ac}(H)$ , apenas metade das partículas que possuem  $H_{rev} < H$  sofrerão reversão, já que a outra metade já tem sua magnetização orientada em uma direção próxima a do campo externo. Desta forma, o valor de  $m_d(H)$  será dado pelo valor de saturação menos o dobro do valor de  $m_r^{ac}(H)$ , como indica a relação (1.11).

Para casos em que existem interações magnéticas entre as partículas, é complicado encontrarmos relações entre  $m_r(H)$  e  $m_d(H)$ . Interações ditas magnetizantes, por exemplo, facilitam a remagnetização do sistema, mas dificultam sua desmagnetização. Desta forma, o crescimento de  $m_r(H)$  em determinado intervalo de campos será maior que o decréscimo de  $m_d(H)$  no mesmo intervalo. Como consequência disto, o *Henkel plot* do sistema apresentará desvios das retas ilustradas no painel inferior da figura 1.9. Neste caso, especificamente, os desvios serão para cima, como indicado na figura 1.11 pelas linhas verdes. Quando interações desmagnetizantes dominam o comportamento magnético do sistema, a variação da curva  $m_r(H)$  em certo intervalo de campos é menor que a da curva  $m_d(H)$ , resultando em *Henkel plots* desviados para baixo, como mostram as curvas laranjas na figura 1.11.

Além dos *Henkel plots*, outro tipo de gráfico<sup>65</sup> pode ser útil na avaliação de interações magnéticas. Trata-se do chamado gráfico de  $\delta M$ , que pode ser derivado diretamente das relações entre  $m_r$ ,  $m_r^{dc}$  e  $m_d$ . Temos, para o caso de uma desmagnetização ac ou térmica

$$\delta M(H) = 2m_r^{ac}(H) - 1 + m_d(H) \quad (1.14)$$

e, quando consideramos uma desmagnetização dc

$$\delta M(H) = m_r^{\text{dc}}(H) - 1 + m_d(H) \quad \text{se } H < H_r, \quad (1.15)$$

$$\delta M(H) = m_r^{\text{dc}}(H) - 1 \quad \text{se } H \geq H_r. \quad (1.16)$$

Para valores positivos de  $\delta M$  considera-se que as interações que atuam sobre o sistema são magnetizantes, como por exemplo a interação de troca. Valores negativos de  $\delta M$  são vistos como um indicativo de interações desmagnetizantes, como a interação dipolar.<sup>66</sup>

A análise de estruturas magnéticas através de curvas de remanência é uma técnica bastante difundida. Ela já foi empregada em inúmeros sistemas, como por exemplo rochas magnéticas,<sup>67</sup> matrizes de partículas com anisotropia perpendicular ao plano,<sup>68</sup> fitas magnéticas,<sup>69</sup> ímãs permanentes,<sup>70</sup> entre outros. Em geral, trata-se de identificar quais são as interações dominantes analisando os desvios das curvas de Henkel ou o sinal de  $\delta M(H)$ . Entretanto, outros efeitos, além das interações, podem levar a desvios das retas da Figura 1.9. Geshev e Mikhov<sup>71</sup> mostraram que para partículas não-interagentes com anisotropia cúbica as curvas de  $m_r(H) \times m_d(H)$  apresentam um desvio positivo. García-Otero *et al.*<sup>72</sup> observaram o mesmo comportamento, além de apontar que a temperatura também poderia ter papel importante no formato da curvas. Já Fearon e colaboradores,<sup>73</sup> através de um estudo teórico, concluíram que estas medidas poderiam revelar características da microestrutura das amostras, e salientaram a influência do estado inicial para a obtenção de curvas de IRM. A maneira como este estado é obtido influencia diretamente no formato destas curvas, podendo, inclusive, mudar o sinal de  $\delta M$  e levar a interpretações errôneas sobre as interações presentes no sistema.<sup>74</sup>

Para melhor interpretar resultados experimentais, Basso e Bertotti<sup>75</sup> propuseram uma descrição dos HP através do modelo de Preisach. Eles concluíram que as interações aleatórias consideradas por tal modelo resultam sempre em um comportamento desmagnetizante das curvas. Sendo assim, este padrão não poderia ser interpretado prontamente como sendo efeito de uma interação que favorece o estado desmagnetizado, uma vez que ele também poderia originar-se da desordem inerente dos materiais.

Curvas de remanência também estão conectadas intimamente com os campos característicos de reversão da magnetização das partículas que compõem o sistema. As primeiras derivadas de  $m_d(H)$  e  $m_r(H)$  em relação a  $H$  fornecem distribuições destes campos, as chamadas *switching field distributions*<sup>76</sup> (SFD). Em geral, distribuições obtidas a partir de  $m_d(H)$  serão diferentes daquelas derivadas de  $m_r^{\text{ac}}(H)$  e  $m_r^{\text{dc}}(H)$ . Isto porque a curva de DCD parte de um estado saturado em uma direção e termina com um alinhamento na direção oposta, de forma que todas

as partículas envolvidas reverterem sua magnetização. Para curvas de IRM o sistema parte de um estado desmagnetizado e termina saturado magneticamente, um processo que não envolve necessariamente a reversão da magnetização de todas os elementos do sistema.

Dada sua relevância tecnológica, existe grande interesse na determinação da SFD intrínseca de conjuntos de partículas e de mídias magnéticas. A obtenção desta quantidade, entretanto, pode ser bastante complicada. Se considerarmos um sistema de partículas não-interagentes, a curva  $\frac{dm_d}{dH}$  fornecerá diretamente tal distribuição de campos críticos, porém, este normalmente não é o caso. Sistemas reais apresentam interações entre partículas, de maneira que a quantidade  $\frac{dm_d}{dH}$  passa a ser uma medida da sobreposição dos efeitos destas e da SFD intrínseca. Recentemente, Martinez Huerta *et al.*<sup>77</sup> propuseram um método capaz de mensurar e compensar o efeito da interação dipolar em um conjunto de nanofios biestáveis. Como o sistema não apresenta interação de troca, dada a baixa densidade de nanofios, o método é capaz de fornecer a SFD intrínseca da amostra. Bons resultados foram obtidos, sugerindo que tal método pode ser uma boa alternativa para caracterizar este tipo de sistema.

No presente trabalho, contudo, o foco é no estudo de sistemas com *exchange bias*. Como estes geralmente apresentam curvas de histerese deslocadas, uma adaptação do método de curvas de remanência precisa ser realizada. Esta modificação na técnica será descrita na seção 3.2.

## 2 *Aparatos experimentais*

*As principais técnicas experimentais utilizadas no decorrer do trabalho serão apresentadas e seus princípios de funcionamento discutidos.*

### 2.1 Sputtering

Diversas técnicas podem ser empregadas na fabricação de filmes finos; dentre elas, destacamos o desbastamento iônico, ou *sputtering*,<sup>78</sup> que foi a técnica utilizada na produção das amostras estudadas neste trabalho. Trata-se de um processo de vaporização física, não térmica, de átomos de uma superfície (alvo) através do bombardeamento de partículas energéticas. Tais partículas são geralmente íons de um material gasoso acelerados por um campo elétrico. Uma vez ejetadas do alvo, as partículas podem se depositar em um substrato, formando assim o filme fino.

Todo processo ocorre dentro de uma câmara fechada, conectada a um sistema de vácuo. Em seu interior existem dois eletrodos. Um deles é o canhão, sobre o qual será colocado o alvo composto do material que pretendemos depositar. Ele conecta-se ao terminal negativo de uma fonte de tensão, servindo como catodo. Em frente ao canhão encontra-se o porta substrato, que serve como anodo.

Após atingida uma pressão de base suficientemente baixa, da ordem de  $10^{-7} - 10^{-8}$  Torr, insere-se um gás inerte no sistema, normalmente argônio. Aplica-se, então, uma diferença de potencial entre o alvo e o substrato, acelerando elétrons livres presentes dentro da câmara. Tais elétrons eventualmente colidem com os átomos do gás inerte, podendo arrancar elétrons de suas camadas mais externas e ionizá-los. O elétron incidente e o arrancado ficam livres para efetuar novas colisões, podendo dar início a uma reação em cadeia. Desta forma, cria-se um plasma no interior da câmara, ou seja, um gás parcialmente ionizado composto por elétrons, íons e átomos neutros. Os íons deste plasma são acelerados contra o alvo e ao atingi-lo geram

colisões em cascata em seu interior. Neste processo, átomos, *clusters* de átomos e/ou moléculas, juntamente com elétrons, fótons e raios-x, podem ser ejetadas do alvo e lançados no interior da câmara. Estas pequenas frações de material viajarão até colidirem com algo. Ao encontrarem um substrato, por exemplo uma bolacha de silício, elas podem se rearranjar sobre sua superfície, formando assim um filme.

A configuração descrita no parágrafo anterior é apenas uma das possíveis na deposição de um filme via *sputtering*. Ela é conhecida como diodo dc e normalmente é empregada na deposição de materiais condutores. Para alvos isolantes, por exemplo, utiliza-se o chamado *sputtering* RF (rádio frequência). Neste caso um potencial periódico é introduzido, com uma frequência entre 0,5 e 30 MHz. Durante parte de cada ciclo, o potencial é capaz de acelerar os íons e promover o desbastamento do alvo. Na outra parte do ciclo os elétrons do plasma são atraídos para o alvo e evitam um acúmulo de cargas.

Uma configuração eficiente e muito utilizada na deposição de filmes finos é o *magnetron sputtering*. Ao colidirem com o alvo, os íons podem perder esta condição e tornarem-se neutros. Desta forma eles deixam de ser úteis para o processo de desbastamento. Entretanto, elétrons, chamados secundários, são ejetados do alvo durante as colisões e são fortemente repelidos. Estes têm energia suficiente para colidirem com um átomo e re-ionizá-lo. Em um processo de *sputtering* diodo dc, por exemplo, esta re-ionização não é muito eficiente para manter a descarga, pois os elétrons são acelerados para longe do alvo. Na tentativa de solucionar este problema criou-se o *magnetron sputtering*. Trata-se da utilização de campos magnéticos para confinar os elétrons secundários em uma região próxima ao alvo, de maneira a manter a ionização dos átomos do gás e, conseqüentemente, o desbastamento do alvo. Esta, mais especificamente, foi a técnica utilizada na deposição das amostras utilizadas neste trabalho.

A técnica de *sputtering* encontra grande aplicação na indústria, sendo o principal método utilizado na produção de discos rígidos. Ela também é empregada, por exemplo, na deposição de filmes finos de diversos tipos em circuitos integrados, na produção de coberturas anti-reflexo e na confecção de guias de onda ópticas.

## 2.2 AGFM

O *Alternating Gradient Force Magnetometer*<sup>1,79</sup>(AGFM), ou Magnetômetro de Gradiente de Força Alternada, é um dispositivo capaz de medir variações no momento magnético com alta sensibilidade ( $\approx 10^{-9} \text{Am}^2$ ). Através dele é possível realizar medidas de magnetização em

filmes com espessuras da ordem de 1 nm. É um equipamento muito mais sensível que um VSM convencional, e pode traçar curvas de histerese mais rapidamente que um SQUID. Seu princípio de funcionamento baseia-se na força sofrida por um momento magnético quando submetido a um gradiente de campo magnético.

O AGFM utilizado na caracterização magnética das amostras estudadas no presente trabalho não é um equipamento comercial, tendo sido produzido em nosso próprio laboratório. A figura 2.1 mostra esquematicamente a configuração do equipamento. Ele é constituído basicamente por uma haste, uma cápsula protetora, um eletroímã e pequenas bobinas de gradiente. A haste é formada por um tubo capilar de vidro. Em uma de suas extremidades encontra-se um pedaço retangular de vidro, que serve como porta-amostra, enquanto na outra temos um elemento de material piezoelétrico colado a um suporte plástico. Pequenos fios de cobre são soldados ao piezoelétrico e o conectam ao suporte plástico, onde se encontram coletores para a leitura do sinal elétrico.

A cápsula envolve a haste e serve para protegê-la contra choques mecânicos e interferências eletromagnéticas. Ela possui um conector ligado aos coletores da haste, utilizado para transferir o sinal elétrico produzido pelo piezoelétrico até um amplificador *Lock-In*, onde ele é lido.

Para que uma medida seja realizada, colocamos uma amostra magnética na extremidade

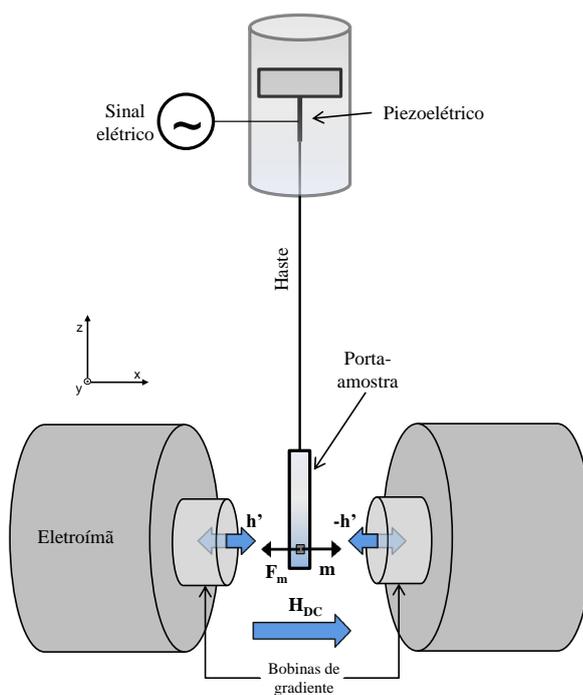


Figura 2.1: Configuração esquemática do AGFM.

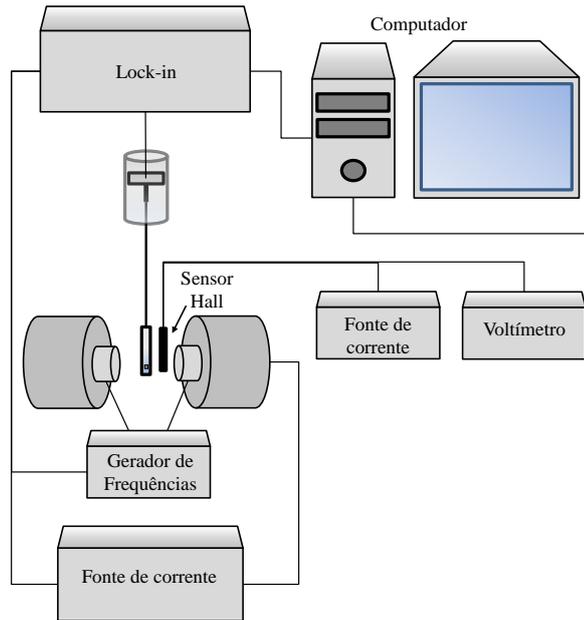


Figura 2.2: Diagrama de blocos do AGFM.

da haste, onde encontra-se o suporte de vidro, fixando-a com graxa. Na outra extremidade da haste temos incorporado o material piezoelétrico. A amostra é então magnetizada por um campo magnético dc,  $\mathbf{H}_{dc}$ , produzido pelas bobinas do eletroímã. Simultaneamente, ela é submetida a um campo alternado, proveniente das bobinas de gradiente. Estas pequenas bobinas configuram-se de forma a produzirem campos em sentidos opostos,  $\mathbf{h}'$ , produzindo um gradiente de campo magnético. A aplicação de tal gradiente alternado gera uma força  $\mathbf{F}_m$  na amostra, também alternada, que causa uma deflexão da haste e, conseqüentemente, produz uma diferença de potencial no piezoelétrico. O sinal elétrico produzido será proporcional à magnitude do gradiente de campo e à componente da magnetização da amostra  $\mathbf{m}$  na direção do campo  $\mathbf{H}_{dc}$ . Conhecendo o gradiente alternado, podemos obter informação sobre a magnetização da amostra. Procura-se aplicar o gradiente de campo na mesma frequência da ressonância mecânica do sistema (piezoelétrico, haste, porta-amostra e amostra), aumentando a amplitude de oscilação da haste, e maximizando o sinal de saída. Pode-se, assim, traçar curvas de histerese magnética, bastando apenas variar  $\mathbf{H}_{dc}$ , responsável pela magnetização da amostra. É importante notar que o equipamento não fornece uma medida absoluta de magnetização, mas apenas um sinal elétrico proporcional a esta quantidade.

Temos na figura 2.2 um diagrama de blocos do equipamento, no qual todos os seus componentes estão representados. Aqui podemos ver, além dos componentes citados anteriormente, outros itens importantíssimos para o funcionamento do AGFM. Uma fonte de corrente e um multímetro, juntamente com um sensor Hall, são utilizados para medir  $\mathbf{H}_{dc}$ . As bobinas res-

ponsáveis pelo gradiente de campo são alimentadas por um gerador de funções, que conecta-se também com o *Lock-in*. Através desta comunicação, as fases do amplificador e do sistema permanecem iguais durante uma medida. O *Lock-in*, além de executar a leitura do sinal proveniente do piezoelétrico, controla a fonte de alimentação das bobinas que magnetizam a amostra. Finalmente, os dados são recebidos por um computador, onde são armazenados e processados.

Dada a extrema sensibilidade do equipamento, uma câmara protetora é usada para envolvê-lo. Esta é dotada de um sistema anti-vibração e de isolamento acústico, evitando que ruídos do ambiente perturbem as medições

## 2.3 Forno resistivo

O EB é um fenômeno de interface, e ocorre quando existe contato atômico entre um material FM e um AF. Entretanto, nem todas as amostras que possuem tal interface apresentam o efeito. Em algumas delas não existe uma estrutura cristalográfica que o favoreça. O IrMn, por exemplo, deve crescer com uma textura (111) para que seja observado EB. Certas amostras como-feitas, porém, não exibem um deslocamento da curva de histerese magnética, mesmo possuindo as características estruturais adequadas. Na realidade, o efeito precisa ser iniciado, e para este fim diferentes técnicas podem ser empregadas. Como mencionado na seção 1.3, pode-se fabricar amostras na presença de um campo magnético aplicado, submetê-las a um bombardeamento iônico também na presença de um campo,<sup>30-33</sup> ou ainda expô-las a campos magnéticos extremamente intensos.<sup>36,37</sup> Tal ativação também pode ser obtida através de tratamentos térmicos na presença de campo magnético aplicado,<sup>34</sup> técnica implementada para um dos conjuntos de amostras estudadas neste trabalho. No caso de um material FM com anisotropia pequena, mesmo sua magnetização remanente é capaz de principiar o fenômeno.<sup>38</sup>

Entende-se por tratamento térmico a exposição de uma amostra a altas temperaturas, na presença de um campo magnético aplicado. Este procedimento foi realizado com um forno resistivo, representado na figura 2.3. O equipamento é constituído basicamente de uma haste que possui uma resistência elétrica em uma de suas extremidades, onde encontra-se um porta-amostra. A haste é envolvida por uma cápsula, isolando-a do ambiente. Conectada a esta cápsula existe uma bomba de vácuo, garantindo que a pressão do sistema mantenha-se baixa durante os tratamentos e evitando assim a oxidação das amostras.

Colocado próximo ao porta-amostra, existe um sensor de temperatura que conecta-se a um controlador de potência. Neste controlador somos capazes de programar a temperatura na qual

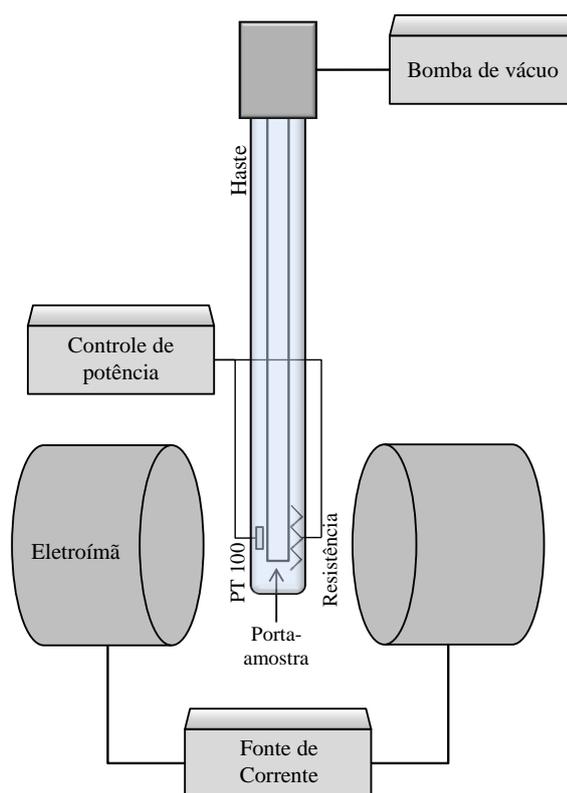


Figura 2.3: Diagrama de blocos do forno resistivo.

desejamos realizar o tratamento térmico. O controlador faz com que uma corrente elétrica percorra a resistência que existe na ponta da haste, fazendo com que o sistema se aqueça. Conforme a temperatura dentro do sistema varia, o sensor manda esta informação para o controlador de potência, que aumenta ou diminui a corrente na resistência de maneira a alcançar e manter a temperatura programada.

Para a realização de tratamentos térmicos na presença de um campo magnético externo, colocamos a haste com as amostras entre as bobinas de um eletroímã. Este é conectado a uma fonte de corrente, o que nos possibilita controlar o campo aplicado nas amostras variando a corrente que percorre as bobinas. Um gaussímetro é usado para monitorar este campo, que no nosso caso sempre estava em torno de 2 kOe.

## 2.4 Magnetômetro SQUID

O SQUID, ou *Superconducting QUantum Interference Device*, é um dispositivo extremamente sensível, capaz de medir campos magnéticos muito pequenos. Ele é utilizado na construção dos chamados magnetômetros SQUID,<sup>1</sup> onde funciona como sensor de fluxo mag-

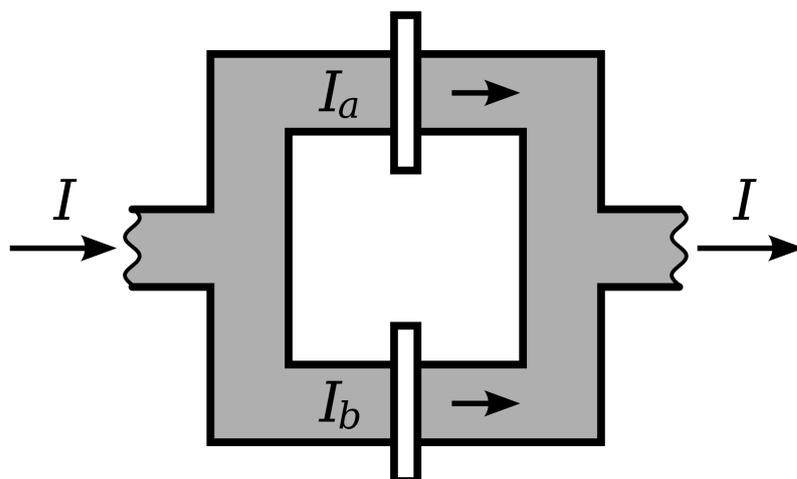


Figura 2.4: Representação esquemática de um SQUID de duas junções.

nético. Seu princípio de funcionamento baseia-se na quantização do fluxo magnético que atravessa um anel supercondutor e no efeito Josephson.<sup>80</sup> Quando dois materiais supercondutores são separados por uma junção isolante muito fina, existe a probabilidade de pares de Cooper tunelarem a barreira, em adição a eventuais processos de partícula única. Os fenômenos resultantes deste tunelamento de pares são coletivamente chamados de efeitos Josephson. A passagem de corrente contínua através da junção sem qualquer resistência e sem que a junção seja polarizada caracteriza o efeito Josephson dc. Este comportamento só ocorre para correntes menores que uma determinada corrente crítica  $I_c$ , acima da qual a junção torna-se resistiva. O efeito Josephson ac, por sua vez, ocorre quando uma voltagem contínua é aplicada através da junção e observa-se o surgimento de correntes alternadas.

Um SQUID dc, ou SQUID de duas junções, é um dispositivo formado por um anel supercondutor que contém duas junções de Josephson, como ilustrado na figura 2.4,\* e é a base dos magnetômetros mais comuns no mercado hoje. No estado supercondutor, quando a corrente  $I$  é menor que  $I_c$ , o circuito não apresenta resistência elétrica, e a tensão verificada nos seus terminais é nula. Para  $I > I_c$ , entretanto, as junções tornam-se resistivas e passa-se a verificar uma tensão.

Ao variarmos o campo magnético que atravessa o circuito supercondutor, uma corrente de blindagem  $I_B$  surgirá no sistema, criando um campo magnético que tenta se opor à variação do fluxo. Em consequência disto, observamos uma redução no valor da corrente crítica efetiva do SQUID. Isto ocorre porque a corrente de blindagem se superpõe à corrente de polarização  $I$ ,

\*Figura retirada de <http://en.wikipedia.org/wiki/SQUID>

somando-se a  $I_a$  e  $I_b$  e aumentando a corrente total que atravessa um dos braços do circuito. Conforme aumentamos o fluxo magnético que atravessa o sistema,  $I_B$  também aumenta, diminuindo cada vez mais a corrente crítica efetiva. O processo continua até que o fluxo atinge um valor equivalente a metade de um quantum de fluxo. Neste momento, as junções tornam-se momentaneamente resistivas e a corrente de blindagem reverte seu sentido. A partir daí, o valor de  $I_B$  decresce, tornando-se nulo quando o fluxo magnético que atravessa o sistema atinge o valor de um quantum. Se continuarmos aumentando o campo magnético externo, o processo se repete e a corrente crítica efetiva passa a apresentar um comportamento periódico em função do campo aplicado.

Em um magnetômetro SQUID<sup>81</sup> mede-se a variação local na densidade de fluxo magnético produzido por uma amostra que atravessa bobinas sensoras. Estas bobinas estão conectadas à entrada do SQUID, que fica localizado dentro de uma blindagem a uma certa distância. Nesta configuração, as bobinas de detecção são parte do circuito supercondutor. Portanto, a mudança no fluxo magnético na bobina de detecção produzirá uma mudança na corrente que flui na entrada do SQUID e pode ser detectada por ele. Como a supercondutividade é uma propriedade fundamental para o seu funcionamento, o equipamento precisa ser mantido em baixas temperaturas. As bobinas sensoras são normalmente colocadas entre os polos de um eletroímã, que costuma ser feito também de um material supercondutor, aumentando o campo máximo que pode ser atingido. Este magneto é utilizado para aplicar campos magnéticos na amostra que se deseja medir, alterando seu estado de magnetização. A amostra é movida através das bobinas sensoras e a variação de fluxo gerada, que está relacionada com seu momento magnético, é então registrada.

## 3 *Resultados*

*O trabalho desenvolvido é apresentado e os principais resultados expostos. A discussão se inicia com o modelo teórico proposto para explicar o comportamento magnético de interfaces FM/AF em sistemas policristalinos. Uma explicação detalhada de como foi realizada a adaptação da técnica de curvas de remanência vem na sequência. Por fim, os dados obtidos através da aplicação do método em diferentes sistemas são abordados.*

### 3.1 **Modelo teórico**

O *exchange bias* é um fenômeno complexo. Escondem-se em cada curva de histerese diversas informações sobre a natureza magnética do sistema. Na tentativa de extrair estas informações e reproduzir todo tipo de comportamento, uma grande quantidade de modelos teóricos já foi proposta. Nenhum destes modelos, contudo, foi capaz de prever todas as nuances do efeito. Buscando esclarecer algumas das dúvidas que ainda pairam, uma abordagem um pouco diferente para multicamadas policristalinas foi introduzida recentemente.<sup>82</sup> Baseando-se no trabalho de Fulcomer e Charap,<sup>41</sup> imaginou-se uma interface FM/AF constituída por inúmeros grãos de características distintas, como ilustrado na figura 3.1. Estes elementos, que podem ser descritos como monodomínios ferromagnéticos, classificam-se como estáveis, parcialmente estáveis e instáveis,<sup>28,33</sup> segundo seus parâmetros de anisotropia e acoplamento. Uma possível distribuição destes em função de um determinado parâmetro de estabilidade é mostrada na figura 3.2. A escolha desta distribuição log-normal baseia-se em um estudo cuidadoso do tamanho dos grãos encontrados em filmes FM/AF em função da espessura do material antiferromagnético.<sup>28</sup>

Grãos instáveis podem ser separados em dois grupos, os superparamagnéticos (SPM) e os rodáveis. Os estáveis, por sua vez, dividem-se entre aqueles que podem ser ativados, ou seja, alinhados em uma determinada direção preferencial durante a deposição do filme ou tratamento

posterior, e os que não podem, cuja magnetização permanece imutável no decorrer destes processos.

Assume-se que grãos superparamagnéticos e grãos estáveis não-ativados não afetam o campo coercivo, tampouco o de *exchange bias*. Esta suposição se justifica para o caso de elementos SPM porque estes são extremamente instáveis, e a orientação de sua magnetização sofre forte influência da agitação térmica. Durante a reversão da magnetização, estes grãos não contribuirão para dificultar o processo, dada sua anisotropia extremamente baixa. Os spins estáveis porém não ativados, por sua vez, encontram-se na extremidade oposta da distribuição de estabilidade. Seu estado magnético não será afetado durante o processo de ativação, e é razoável assumir que a orientação das magnetizações deste grupo de grãos se distribuirá isotropicamente. Não existe, portanto, a criação de um eixo preferencial, logo, não há contribuição para  $H_{eb}$ .

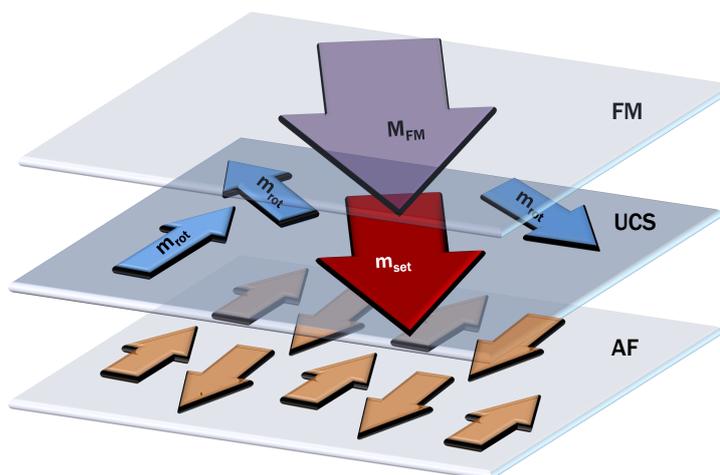


Figura 3.1: Ilustração esquemática de uma interface FM/AF, onde estão representadas as magnetizações de diferentes grãos.

Desta forma, considera-se que a magnetização da camada FM interage apenas com os outros dois tipos de spins não-compensados (UCS) presentes na interface, os rodáveis e os estáveis passíveis de ativação. Os primeiros são responsáveis por um aumento na coercividade, enquanto os outros contribuem para o deslocamento da curva de histerese. A energia magnética livre do sistema pode então ser escrita como

$$E = E_{FM} + E_{UCS} + E_{int}, \quad (3.1)$$

onde o primeiro termo no lado direito, que representa a energia da camada FM, é formado por sua energia de anisotropia  $E_{an}$  (magnetocristalina, de stress, de forma, etc.) e pelo termo

Zeeman,

$$E_{\text{FM}} = E_{\text{an}} - V\mathbf{H} \cdot \mathbf{M}_{\text{FM}}. \quad (3.2)$$

Aqui,  $V = At$  é o volume da camada, cuja espessura é  $t$ , a área interfacial é  $A$  e a magnetização é  $\mathbf{M}_{\text{FM}}$ . De maneira análoga, a energia dos spins interfaciais não-compensados é dada por

$$E_{\text{UCS}} = \sum_i (E_{\text{an}}^i - v_i \mathbf{H} \cdot \mathbf{m}_i), \quad (3.3)$$

sendo  $E_{\text{an}}^i$  a energia de anisotropia de um grão de magnetização  $\mathbf{m}_i$ , espessura  $t_i$  e área interfacial  $a_i$ . O termo de interação da equação (3.1),

$$E_{\text{int}} = - \sum_i a_i j_i \frac{\mathbf{M}_{\text{FM}} \cdot \mathbf{m}_i}{M_{\text{FM}} m_i} + E_{\text{UCS}}^{\text{int}}, \quad (3.4)$$

inclui a energia associada ao acoplamento de troca FM/UCS (primeiro termo), e aquela correspondente à interação entre os spins não-compensados, que pode ser de *exchange* ou dipolar.

Um aspecto que diferencia este modelo é o fato do campo de anisotropia rodável efetivamente mudar durante o traçado do laço de histerese. Isto pode resultar em uma coercividade não nula no eixo difícil de magnetização, algo comumente observado em sistemas com EB mas raramente reproduzido em simulações que assumem rotação coerente. Outra característica importante que surge naturalmente nesta aproximação<sup>42</sup> é o chamado efeito de treinamento atérmico.<sup>83,84</sup> Quanto à aplicabilidade em sistemas reais, ótimos resultados foram obtidos para filmes semelhantes aos estudados aqui, porém com um espaçador de Cr. Mais detalhes podem ser encontrados em [27, 82].

O código original produzido para implementação deste modelo assume um sistema cons-

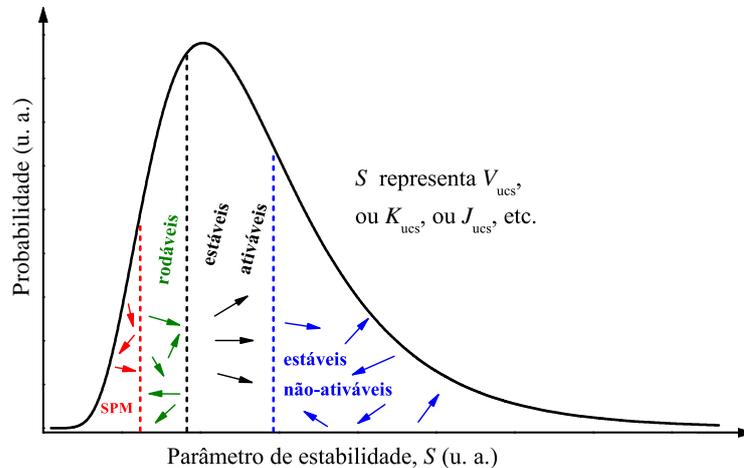


Figura 3.2: Distribuição esquemática dos grãos em função de um parâmetro de estabilidade.

tituído por inúmeros grupos de até quatro momentos magnéticos. Estes interagem entre si dentro de cada grupo, mas não consideram a influência dos elementos externos. Como a utilização das curvas de remanência busca caracterizar exatamente quais são as interações magnéticas que atuam no sistema, foi necessária a elaboração de um novo software que as trate de maneira mais abrangente. Na próxima seção, este novo código é apresentado e discutido. Ele baseia-se na mesma aproximação de um sistema policristalino, mas permite o acoplamento de um número maior de elementos.

### 3.1.1 Simulações numéricas

A utilização de curvas de remanência no estudo de sistemas com EB tem um enorme potencial. Entretanto, é necessário que a grande quantidade de dados obtidos em cada rotina de medida seja cuidadosamente analisada. Na tentativa de compreender melhor o que cada curva experimental revela sobre a amostra estudada, um software capaz de simular seu comportamento vem sendo desenvolvido. O programa, que traça a evolução da magnetização através da equação de Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG),<sup>85,86</sup> considera um sistema formado por diversos grãos ferromagnéticos. Cada um destes grãos possui seus próprios parâmetros de anisotropia e de acoplamento com os vizinhos, e pode estar localizado na camada FM, na camada AF, ou ainda em uma camada interfacial.

No limite de grandes amortecimentos, o emprego da equação de LLG é equivalente a um processo de minimização da energia. Nos cálculos realizados neste trabalho, estamos interessados em curvas de magnetização estática. Busca-se encontrar um estado de equilíbrio para a magnetização em função do campo magnético externo. Desta forma, traça-se a evolução da magnetização durante um determinado período de tempo, até um estado em que esta praticamente não apresenta variações.

A equação de Landau-Lifshitz-Gilbert, que rege a dinâmica da magnetização, é dada por

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\gamma\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{ef}} + \frac{\alpha}{M_s} \left( \mathbf{M} \times \frac{d\mathbf{M}}{dt} \right). \quad (3.5)$$

Multiplicando vetorialmente ambos os lados da equação acima por  $\mathbf{M}$  e lembrando que  $\mathbf{M} \cdot \frac{d\mathbf{M}}{dt} = 0$ , obtemos facilmente a chamada equação de Landau-Lifshitz na formulação de Gilbert,

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\frac{\gamma}{1+\alpha^2} (\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{ef}}) - \frac{\gamma\alpha}{(1+\alpha^2)M_s} \mathbf{M} \times (\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{ef}}), \quad (3.6)$$

que foi a forma empregada durante as simulações. Aqui,  $\mathbf{M}$  representa a magnetização de

um grão,  $M_s$  sua magnetização de saturação,  $\mathbf{H}_{\text{ef}}$  o campo efetivo que age sobre ele e  $\alpha$  uma constante de amortecimento característica de cada material. A constante  $\gamma$  é dada por  $\frac{g_j |e^-| \mu_0}{2m_e}$ , sendo  $g_j$  o fator de Landé, que será utilizado como sendo igual a 2,  $e^-$  e  $m_e$  a carga e a massa do elétron respectivamente, e  $\mu_0$  a permeabilidade magnética do vácuo.

Antes que o caminho percorrido pela magnetização durante uma curva de histerese ou de remanência seja traçado, é necessário construir o sistema que se deseja reproduzir. Este é o passo inicial do algoritmo que encontra-se descrito de maneira resumida na figura 3.3. Nele são definidas todas as características do conjunto de momentos magnéticos, como a distribuição de anisotropias, os parâmetros de interação e o tamanho de cada um. Inicialmente, define-se por quantas camadas o conjunto será composto, a quantidade de grãos em cada uma delas e a magnetização de saturação destes, que em geral é igual para todos. A partir daí, cada ‘fatia’ é montada separadamente.

Geram-se valores que seguem uma distribuição log-normal para as constantes de anisotropia uniaxial e ângulos distribuídos em forma gaussiana que indicam a direção dos eixos fáceis. Cada elemento então recebe aleatoriamente um par destes valores, um para a constante de anisotropia e outro que indica a posição de seu eixo fácil, que juntamente com o valor de  $M_s$  determinam suas características magnéticas. Desta forma, os parâmetros que definem a anisotropia do sistema são aqueles que caracterizam estas duas distribuições. Isto significa que, mesmo que uma simulação seja repetida utilizando os mesmos valores de entrada, não estaremos tratando de sistemas exatamente iguais. Todavia, o seu comportamento global é o mesmo, fazendo com que as curvas de histerese e de remanência sejam reproduzíveis. Por uma questão de simplicidade, todos os grãos foram considerados como sendo cúbicos e o sistema como um todo apresenta a forma de um paralelepípedo de arestas  $l_x$ ,  $l_y$  e  $l_z$ , sendo  $l_x = l_y > l_z$ .

Uma vez determinada a anisotropia do sistema, define-se como se dará a interação de troca entre os momentos magnéticos, que aqui é considerada apenas entre primeiros vizinhos. Escolhe-se como os grãos interagem através de constantes  $J_i$ , que caracterizam seu acoplamento com cada um de seus semelhantes mais próximos. Como optou-se pela utilização de elementos com simetria cúbica, são necessárias seis destas constantes. Todavia, é razoável considerar que entidades de um mesmo grupo, um fragmento de um material ferromagnético por exemplo, atuem em seus vizinhos de maneira equivalente. Desta forma, todas as  $J_i$  possuiriam um mesmo valor. Como o objeto de estudo do presente trabalho são filmes finos, toma-se interações dentro de uma mesma camada como sendo equivalentes. O estado inicial de cada um dos grãos também é determinado durante esta etapa da simulação. Em geral, escolhe-se arranjos muito simples para suas magnetizações, como por exemplo um alinhamento perfeito em uma direção

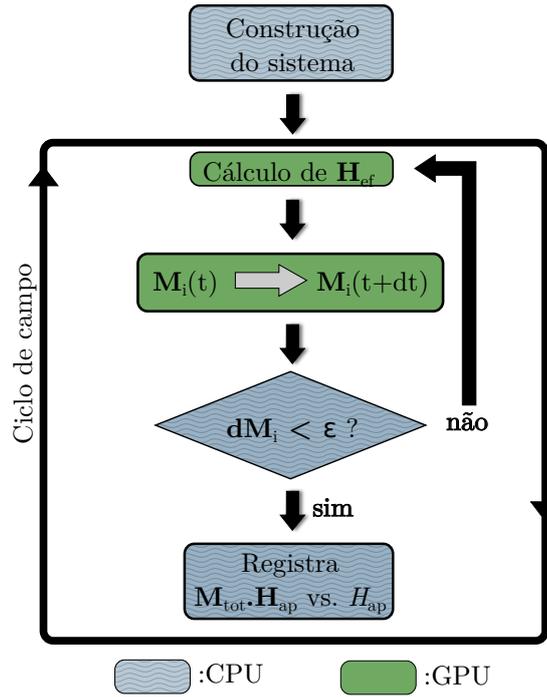


Figura 3.3: Diagrama esquemático do algoritmo implementado para simulação de curvas de histerese e de remanência.

ou uma rede de spins anti-paralelos, dependendo do tipo de camada que deseja-se obter.

Após construído o sistema, passa-se para o cálculo de seus estados magnéticos propriamente ditos. O segundo passo do algoritmo mostrado na figura 3.3 refere-se à estimativa dos campos efetivos que agem sobre os grãos. Dependendo do arranjo considerado,  $\mathbf{H}_{\text{ef}}$  pode ser formado por até quatro campos distintos,

$$\mathbf{H}_{\text{ef}} = \mathbf{H}_{\text{ap}} + \mathbf{H}_{\text{anis}} + \mathbf{H}_{\text{ex}} + \mathbf{H}_{\text{dip}}. \quad (3.7)$$

O primeiro termo em (3.7) é o campo magnético externo aplicado, que entra sempre como parâmetro e é o único que independe do estado magnético do sistema. A maneira como este campo é variado determina o tipo de medida que será reproduzido pelo programa. Por exemplo, para obter-se uma curva de histerese o ciclo de  $\mathbf{H}_{\text{ap}}$  inicia em seu valor máximo  $H_{\text{max}}$ , diminui seu módulo até passar pelo zero, reverte seu sentido e diminui até atingir um valor mínimo igual a  $-H_{\text{max}}$ , retornando pelo mesmo caminho até o estado inicial.

O segundo termo de (3.7) representa o campo de anisotropia de um determinado elemento. Nas simulações consideradas neste trabalho, apenas a anisotropia uniaxial foi considerada. Desta forma,

$$\mathbf{H}_{\text{anis}} = \mathbf{H}_{\text{uni}} = \frac{2K}{M_s} (\mathbf{m} \cdot \mathbf{p}) \mathbf{p}, \quad (3.8)$$

onde  $K$  é a constante de anisotropia, o vetor unitário  $\mathbf{p}$  indica a direção do eixo fácil de magnetização e  $\mathbf{m} = \mathbf{M}/M_s$ . O terceiro e o quarto termo em (3.7) caracterizam interações de troca e dipolares entre um grão e um elemento de magnetização  $\mathbf{M}' = M'_s \mathbf{m}'$ . Eles apresentam-se, respectivamente, como

$$\mathbf{H}_{\text{ex}} = \frac{J}{M_s t_M} \mathbf{m}', \quad (3.9)$$

sendo  $J$  a constante de troca e  $t_M$  a espessura do grão e

$$\mathbf{H}_{\text{dip}} = -\frac{V' \mathbf{M}'}{R^3} + \frac{3V' (\mathbf{M}' \cdot \hat{e}) \hat{e}}{R^3}, \quad (3.10)$$

onde  $R$  é a distância entre as partículas,  $\hat{e}$  um vetor unitário paralelo a linha que as conecta e  $V'$  o volume da partícula cuja magnetização é  $\mathbf{M}'$ .

A terceira etapa do algoritmo é resolver a equação diferencial definida em (3.6) para cada um dos grãos através de um método numérico. Nesta primeira versão do programa optou-se pelo simples método de Euler para a execução de tal tarefa. Basicamente, calcula-se a taxa de variação da magnetização em relação ao tempo, explicitamente apresentada em (3.6), para depois utilizá-la na evolução de  $\mathbf{M}$  em um período infinitesimal de tempo. Como a magnetização representa uma grandeza vetorial, separa-se a equação de Landau-Lifshitz-Gilbert em três equações diferenciais acopladas. Portanto, para se obter a magnetização  $\mathbf{M}^i(t + dt)$  de um determinado elemento, uma vez conhecido o valor de  $\mathbf{H}_{\text{ef}}$  no tempo  $t$ , segue-se os seguintes passos:

- Calcula-se  $\frac{dM_x^i(t)}{dt}$ ,  $\frac{dM_y^i(t)}{dt}$  e  $\frac{dM_z^i(t)}{dt}$
- e evolui-se  $\mathbf{M}$ ,

$$\begin{aligned} M_x^i(t + dt) &= M_x^i(t) + \frac{dM_x^i(t)}{dt} dt, \\ M_y^i(t + dt) &= M_y^i(t) + \frac{dM_y^i(t)}{dt} dt, \\ M_z^i(t + dt) &= M_z^i(t) + \frac{dM_z^i(t)}{dt} dt. \end{aligned}$$

Para se encontrar o estado magnético de todo o conjunto no tempo  $t + dt$ , este procedimento deve ser aplicado a todos os momentos magnéticos que o compõem. Para que o sistema atinja o equilíbrio, o segundo e o terceiro passo do algoritmo são repetidos até que a taxa de variação da magnetização em relação ao tempo de todos os grãos seja menor que um determinado valor  $\varepsilon$ . Isto indica que a configuração dos momentos magnéticos tornou-se estável.

Mesmo tratando-se de uma sequência simples de regras, este processo pode levar a simulações demoradas quando sistemas com grande número de componentes são levados em

conta. Isto porque para que se dê um único passo no tempo, é necessário calcular o campo efetivo que age sobre cada um dos elementos do conjunto e em seguida atualizar o estado de suas magnetizações. Para que um estado de equilíbrio seja alcançado, milhares destes passos precisam ser dados, tornando o procedimento extremamente lento.

Para executar estas tarefas com mais rapidez, o código foi escrito na linguagem C utilizando a plataforma de computação CUDA<sup>TM</sup>,\* criada pela empresa NVIDIA. CUDA é uma sigla para “*Compute Unified Device Architecture*”, e trata-se de uma especificação da arquitetura de um dispositivo e de uma pequena extensão de uma linguagem de programação. Ela permite aumentos significativos de performance computacional ao aproveitar a potência da unidade de processamento gráfico (GPU). A partir de sua utilização, o sistema de computação passa a ser formado pela tradicional unidade de processamento central (CPU) e um ou mais dispositivos que são processadores paralelos equipados com um grande número de unidades de execução aritmética. Desta forma, torna-se possível a execução segura de diversas operações em estruturas de dados de maneira simultânea.

Lançada em 2006, a CUDA veio para transformar as GPUs da NVIDIA em dispositivos com propósito geral, capazes de serem programados de maneira intuitiva. Inúmeras aplicações foram desenvolvidas desde então nas mais diversas áreas de pesquisa. Códigos criados para o controle de tráfego aéreo e para simulação da dinâmica molecular em escala nanométrica,<sup>87</sup> por exemplo, encontraram nesta ferramenta uma poderosa aliada, capaz de aumentar incrivelmente sua performance. No Brasil, a empresa Petrobras utiliza a grande capacidade de processamento das GPUs em códigos capazes de gerar imagens subterrâneas que facilitam a busca por petróleo.<sup>†</sup> Este potencial também foi aplicado em simuladores micromagnéticos. Códigos capazes de estimar interações magnetostáticas até cem vezes mais rápido do que programas anteriores<sup>88</sup> permitiram a simulação de sistemas extremamente complexos. Foi possível modelar pela primeira vez o comportamento de um cabeçote de gravação magnética completo<sup>89</sup> discretizando-o em centenas de milhões de elementos. Além da grande utilidade deste tipo de software na pesquisa básica, seu poder preditivo permite a análise, desenvolvimento e validação de equipamentos antes e durante sua fabricação. Isto torna-os fundamentais na construção de sistemas de gravação, imageamento por ressonância magnética, componentes spintrônicos entre outros.

Um programa escrito em CUDA<sup>90</sup> consiste de diversas fases, que são implementadas em um hospedeiro (*host*), que seria a CPU, ou em um dispositivo (*device*), por exemplo uma GPU. Etapas que não necessitam de um processamento simultâneo são executadas no *host*, enquanto

---

\* [www.nvidia.com.br/cuda](http://www.nvidia.com.br/cuda)

† <http://www.nvidia.com/content/cuda/spotlights/paulo-souza-petrobras.html>

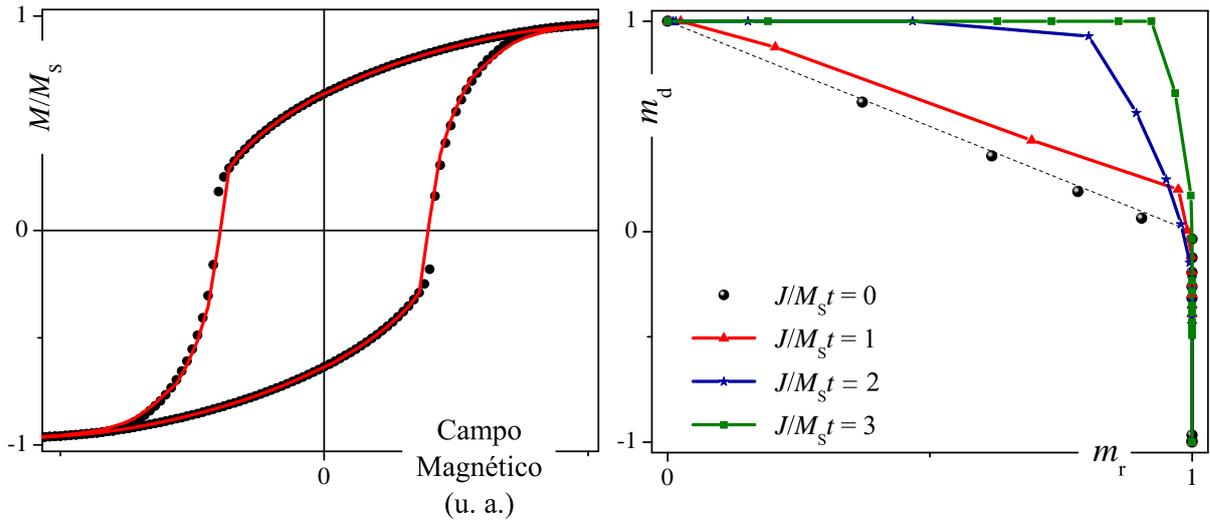


Figura 3.4: Painel esquerdo: comparação entre duas curvas de histerese obtidas para um sistema de partículas não-interagentes cujos eixos de anisotropia uniaxial distribuem-se de maneira homogênea em um plano. A curva representada pela linha cheia foi obtida pelo código escrito em CUDA, enquanto os pontos foram calculados com a ajuda de software que considera rotação coerente da magnetização. Painel direito: *Henkel plots* construídos via CUDA para o mesmo conjunto de partículas após uma desmagnetização dc considerando diferentes parâmetros de acoplamento.

aquelas que exigem paralelismo são realizadas pelo *device*. Estas frações distintas são escritas dentro de um mesmo código fonte, mas são separadas durante o processo de compilação. As unidades fundamentais de processamento paralelo utilizadas pela CUDA são as chamadas *threads*. Ao invocarmos uma função que deve ser realizada na GPU, criam-se blocos de *threads* que formam uma rede e realizam todas a mesma tarefa. No diagrama mostrado na figura 3.3 podemos observar que algumas etapas do algoritmo são realizadas na CPU, enquanto outras indicam operações da GPU. Todos os passos referentes à criação do sistema que será estudado são feitas no *host*. Os dados são então transferidos para o *device*, onde cria-se uma rede que reproduz o sistema em questão. Cada *thread* passa a representar um único momento magnético, e torna-se responsável por todas as operações que possam modificar seu estado. Primeiramente, elas avaliam o valor do campo efetivo que age sobre seu elemento, acessando uma memória global para extrair informações sobre o estado dos outros grãos e em seguida evoluem sua magnetização no tempo. As informações sobre os novos estados magnéticos e sobre as taxas de variação destas são então transferidos para o *host*, onde são analisadas. Caso  $\frac{d\mathbf{M}}{dt}$  seja suficientemente pequeno para todos os elementos, o processo encerra-se, e assume-se que o sistema está em equilíbrio. Caso contrário, retorna-se para o *device* e implementa-se mais um passo no tempo.

Com o objetivo de testar a confiabilidade do software, alguns cálculos preliminares foram realizados. No painel esquerdo da figura 3.4 observa-se uma comparação entre dois laços de histerese obtidos para um mesmo sistema de partículas não-interagentes cujos eixos de aniso-

tropia uniaxial distribuem-se de maneira homogênea em um plano. A linha cheia, que resulta de cálculos realizados pelo programa escrito em CUDA, mostra-se muito semelhante aos pontos, traçados com a ajuda de um código desenvolvido por J. Geshev<sup>91</sup> e que já foi utilizado na análise de diversos sistemas.<sup>17,24,27</sup> É importante salientar que a magnetização remanente obtida é exatamente aquela esperada para esta configuração de anisotropias. Como não existe interação entre os momentos magnéticos, cada um deve alinhar-se com seu EF para  $H = 0$ . Considerando que o sistema foi previamente saturado por um campo magnético, e que a magnetização de cada elemento faz um ângulo  $\phi$  com a direção deste, temos

$$\frac{M_r}{M_s} = \frac{2 \int_0^{\pi/2} \cos \phi d\phi}{2 \int_0^{\pi/2} d\phi} \approx 0,636619, \quad (3.11)$$

justamente o valor obtido computacionalmente, que pode ser extraído dos dados mostrados na figura 3.4. No painel direito da mesma figura vê-se *Henkel plots* construídos para o mesmo conjunto de partículas após uma desmagnetização dc, calculados considerando valores distintos do parâmetro de acoplamento. O caso sem interação, representado pelos pontos pretos, praticamente reproduz a previsão teórica, indicada pela linha tracejada. Um desvio cada vez maior em relação a este primeiro caso surge quando aumenta-se o campo de interação de troca entre os elementos. Como era esperado para interações que favorecem o estado magnetizado, este deslocamento ocorre para cima, demonstrando que, ao menos qualitativamente, os cálculos estão corretos.

Não basta, entretanto, que os resultados fornecidos pelo programa sejam apenas qualitativos. Para que este seja realmente útil, é necessário que reproduza de maneira consistente os dados experimentais. Para um primeiro teste, optou-se por analisar a amostra composta por Si/Ta(5 nm)/Ru(15 nm)/Co(5 nm)/Cu(2 nm), que possui apenas uma camada magnética. A figura 3.5 apresenta algumas medidas, ilustradas pelos pontos, juntamente com os melhores ajustes obtidos, representados por linhas cheias. No painel superior esquerdo pode-se observar o laço de histerese traçado para o eixo fácil de magnetização, enquanto no painel superior direito apresenta-se o  $HP_{dc}$  do sistema. Para as simulações, considerou-se um conjunto de  $32 \times 32 \times 2$  grãos acoplados ferromagneticamente. Sua distribuição de anisotropia foi definida por uma densidade de probabilidade log-normal para os valores de campo,

$$P(x) = \frac{1}{x\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(\ln \frac{x}{x_m})^2}{2\sigma^2}}, \quad (3.12)$$

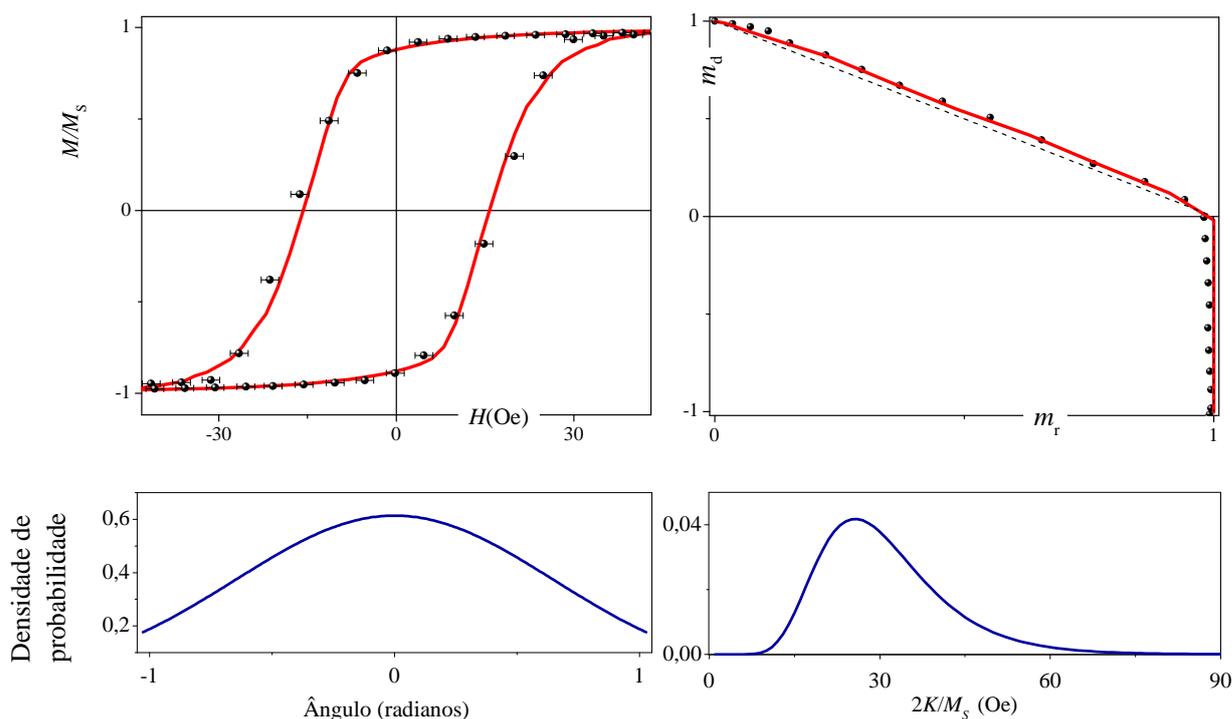


Figura 3.5: Painéis superiores: dados experimentais (pontos) e os respectivos melhores ajustes obtidos (linhas cheias) para a amostra de Co. Painéis inferiores: densidades de probabilidade que caracterizam a anisotropia do sistema.

e uma gaussiana para os ângulos que definem a direção dos eixos fáceis no plano,

$$P'(x) = \frac{1}{\sigma' \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{x^2}{2\sigma'^2}}, \quad (3.13)$$

ambas mostradas nos painéis inferiores da figura 3.5. A interação entre os elementos foi tomada como sendo igual para todos, com  $\frac{J}{M_s t} = 0,1$  Oe, e foram utilizados  $\sigma = 0,35$ ,  $\sigma' = 0,56$  rad e  $x_m = 29$  Oe. Nota-se uma excelente concordância entre as curvas experimentais e as calculadas, principalmente quando leva-se em conta o erro presente nas medidas. Mesmo tratando-se do espécime mais simples dentre os filmes estudados, este é um resultado promissor.

## 3.2 Curvas de remanência em sistemas com *Exchange Bias*

Recentemente, foram realizadas tentativas de aplicação das técnicas de curvas de remanência (seção 1.4) na caracterização de interações magnéticas em sistemas que apresentam *exchange bias*.<sup>92,93</sup> Este método, entretanto, foi desenvolvido originalmente para materiais com uma única fase magnética, que apresentam curvas de histerese simétricas e não deslocadas. Quando

este é o caso, as magnetizações remanentes associadas ao ramo descendente ( $M_{r1}$ ) e ao ascendente ( $M_{r2}$ ) do ciclo de histerese apresentam um mesmo valor, mas sinais opostos. Isto nem sempre é verdade quando existe EB, pois o deslocamento negativo da curva de histerese (para o caso convencional do efeito) acaba fazendo com que  $|M_{r2}| < M_{r1}$ . Muitas vezes  $M_{r2}$  é positivo ou mesmo igual a  $M_{r1}$ , como exemplificado na figura 3.6. Sendo assim, o método tradicional de curvas de remanência não pode ser prontamente aplicado. Uma solução prática é redefinir o sistema de referência de forma que a origem coincida com o centro da curva deslocada, fazendo com que as novas magnetizações remanentes tenham valores iguais e sinais opostos e tornando viável o uso da técnica.

Além desta peculiaridade nos valores de  $M_{r1}$  e  $M_{r2}$ , curvas de histerese deslocadas geralmente apresentam uma assimetria intrínseca entre seus ramos. Isto permite que, ao redefinirmos a origem dos eixos coordenados, dois pares de curvas IRM e DCD coexistam, aumentando o número de gráficos de  $\delta M$  e de Henkel possíveis. Podemos traçar duas curvas IRM,  $m_r^+$  e  $m_r^-$ , para cada método de desmagnetização (ac ou dc) utilizado na obtenção de seu estado inicial, e duas curvas DCD,  $m_d^+$  e  $m_d^-$ . Aqui, a notação ‘+’ e ‘-’ se refere à direção da varredura do campo magnético durante a obtenção de cada uma das curvas. Parece intuitivo que ‘+’ (‘-’) em  $m_d^+$  ( $m_d^-$ ) também indica que o sinal do último campo aplicado antes do início de sua aquisição, capaz de saturar magneticamente a amostra, é negativo (positivo). Para  $m_r$ , ‘+’ e ‘-’ ainda indicam o sinal do campo magnético aplicado para saturar a amostra antes de iniciar o processo de desmagnetização, ou seja, sua obtenção segue a receita clássica.<sup>62</sup>

Tomemos como exemplo um filme fino de IrMn/Co, que faz parte de uma série de amostras que é apresentada em detalhe na seção 3.3.2. A figura 3.7 mostra curvas de remanência

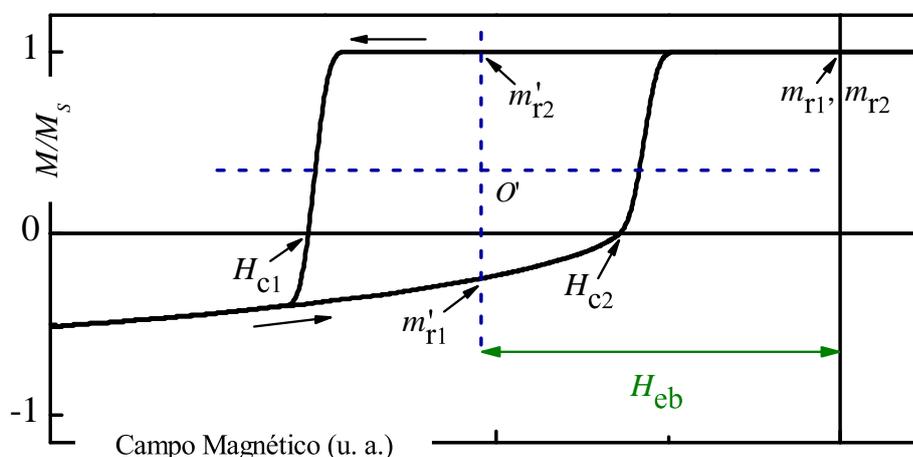


Figura 3.6: Parâmetros utilizados na caracterização de sistemas com *exchange bias*. As retas tracejadas indicam a nova origem do sistema de coordenadas, redefinida para permitir a utilização de curvas de remanência.

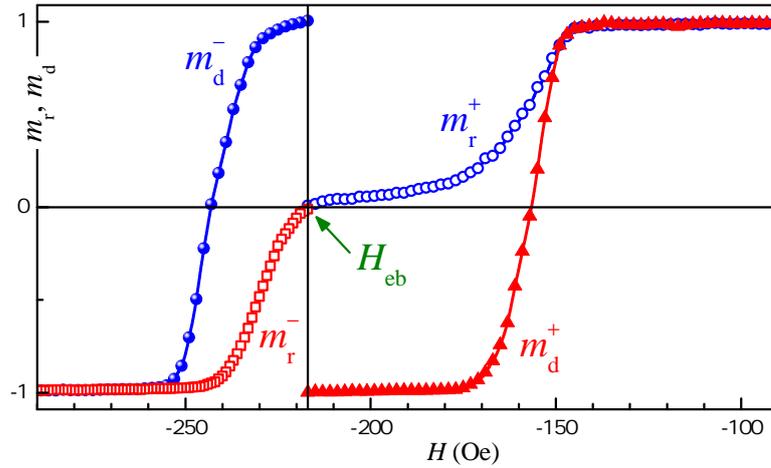


Figura 3.7: Curvas de remanência obtidas para uma amostra de IrMn/Co. O estado inicial das curvas  $m_r$  foi obtido através de uma desmagnetização dc.

obtidas para tal filme no caso de uma desmagnetização dc. A partir destas, quatro HP distintos podem ser traçados,  $HP_{dc}^{++}$ ,  $HP_{dc}^{+-}$ ,  $HP_{dc}^{-+}$ ,  $HP_{dc}^{--}$ . Os sinais indicam, respectivamente, a  $m_r(H)$  e a  $m_d(H)$  utilizadas em sua construção. Um  $HP_{ac}^{+-}$ , por exemplo, seria concebido a partir de  $m_d^-(H)$  e  $m_r^{+ac}(H)$ . É importante notar que, para que todas estas combinações sejam possíveis, reflexões das curvas de remanência em relação aos eixos coordenados devem ser empregadas. O par  $m_r(H)$  e  $m_d(H)$  deve ser ajustado para que reproduza o do método tradicional, no qual a primeira termina com valor positivo, a segunda inicia com valor positivo e termina com um negativo. Ambas as curvas devem partir de um mesmo campo, no caso o campo de EB, e seguir para campos positivos. No método tradicional, as curvas partem de  $H = 0$ . É importante salientar aqui que apesar da possibilidade de construção de quatro HP distintos, é preciso interpretar cada um deles com cuidado. Pares com sinais opostos, por exemplo, comparam caminhos diferentes da magnetização e não necessariamente fornecem informações sobre as interações que agem no sistema. Na seção 3.3.2, uma discussão sobre este assunto é apresentada, juntamente com resultados experimentais.

Além de aumentar no número de gráficos tradicionais que podem ser construídos, a assimetria dos laços sugere a definição de duas novas curvas:

$$\Delta m_r(H) = m_r^-(H) - m_r^+(H), \quad (3.14)$$

$$\Delta m_d(H) = m_d^-(H) - m_d^+(H). \quad (3.15)$$

Dependendo do tipo de desmagnetização empregado, podemos ter  $\Delta m_r^{dc}(H) = m_r^{-dc}(H) - m_r^{+dc}(H)$  ou  $\Delta m_r^{ac}(H) = m_r^{-ac}(H) - m_r^{+ac}(H)$ . Estas novas equações poderiam ser utilizadas

para caracterizar mecanismos de reversão da magnetização e/ou interações em sistemas com EB.

### 3.2.1 Processos de desmagnetização

O estado inicial, obtido após um processo de desmagnetização, tem influência direta nas curvas de remanência traçadas posteriormente. Para que medidas reprodutíveis possam ser obtidas, é necessário dar especial atenção a este procedimento prévio. Como veremos a seguir, durante este trabalho dois métodos distintos foram empregados, a desmagnetização dc e a ac, ambas descritas na seção 1.4. Os experimentos realizados após processos de desmagnetização ac, porém, se mostraram inconsistentes, e voltamos o nosso foco apenas para a técnica dc.

O estado desmagnetizado é um dos conceitos mais básicos do magnetismo, e é de grande importância no estudo de materiais ferromagnéticos. Ele é comumente definido de duas formas: (i) as magnetizações dos domínios magnéticos no interior do material orientam-se aleatoriamente, ou (ii) a magnetização total resultante é nula na ausência de um campo magnético externo.<sup>94</sup> Para o caso de amostras com *exchange bias*, a interação de troca entre FM e AF em geral garante uma orientação preferencial da magnetização quando  $H = 0$ . No contexto do presente trabalho, portanto, torna-se necessário redefinirmos o conceito de estado desmagnetizado. Como o sistema de coordenadas precisa ser modificado para que as curvas de remanência possam ser implementadas em amostras com EB, o processo de desmagnetização deve levar isto em conta. Desta forma, consideramos um estado desmagnetizado como aquele em que a magnetização é nula na presença de um campo externo  $H = H_{\text{eb}}$ .

Inicialmente, verificou-se qual o passo em campo,  $p_{\text{des}}$ , seria adequada para desmagnetização. Constatou-se que valores entre 2 e 4 Oe levavam a estados bastante semelhantes, pelo menos no que tange o valor da magnetização remanente no referencial redefinido, ou seja, em  $H = H_{\text{eb}}$ . Na figura 3.8 (a) podemos ver várias curvas de desmagnetização, obtidas com diferentes passos para uma amostra de Co(5 nm)/Ir<sub>20</sub>Mn<sub>80</sub>(7 nm). Estas curvas ilustram a magnetização residual obtida para um campo igual a  $H_{\text{eb}}$  após a aplicação de um campo  $H_{\text{des}}$ .

Na figura 3.8 (b) pode-se observar as curvas  $m_r^+(H)$  obtidas após cada uma das desmagnetizações dc. Nota-se que dentre elas apenas o comportamento observado para  $p_{\text{des}} = 8$  Oe destoa dos demais. Desta forma, passamos a utilizar  $p_{\text{des}} = 2$  Oe como valor padrão para o passo de desmagnetização. Esta figura também demonstra a reprodutibilidade dos resultados experimentais, indicando que as informações extraídas dos HP e das curvas  $\delta M^{\text{dc}}$  são confiáveis.

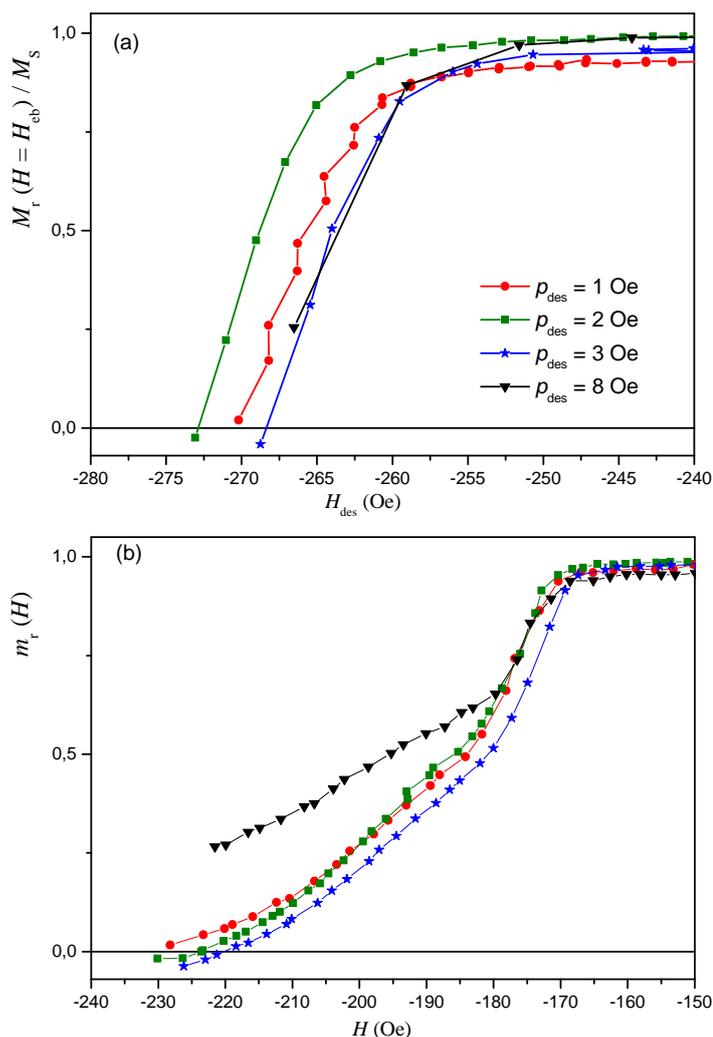


Figura 3.8: (a) curvas de desmagnetização obtidas para uma amostra de IrMn/Co utilizando diferentes valores de passo em campo. O gráfico ilustra o valor da magnetização residual obtida para  $H = H_{eb}$  após a aplicação de um campo  $H_{des}$ . (b) curvas de IRM traçadas após cada uma das desmagnetizações.

### 3.3 Aplicação da técnica

Para testar a aplicabilidade da técnica, uma série de filmes policristalinos foi depositada via *magnetron sputtering* (seção 2.1) sobre substratos de Si. Diferentes conjuntos de amostras foram produzidos, com o objetivo de submeter sistemas FM/AF com propriedades distintas ao método de curvas de remanência. Os filmes dividem-se basicamente em três grupos:

- Si/Ni<sub>60</sub>Cr<sub>40</sub>(6 nm)/Ir<sub>20</sub>Mn<sub>80</sub>(7 nm)/Ni<sub>75</sub>Cu<sub>25</sub>(30 nm)/Cr(4 nm), que apresentam temperatura de Curie do FM menor que a temperatura de Néel do AF;
- Si/Ta(5 nm)/Ru(15 nm)/Co(5 nm)/Cu( $t_{Cu}$ )/Ir<sub>20</sub>Mn<sub>80</sub>(7 nm)/Ta(3 nm), com uma espessura variável da camada espaçadora de Cu;

- Si/Ta(5 nm)/Ru(15 nm)/IrMn( $t_{\text{IrMn}}$ )/Co<sub>50</sub>Fe<sub>50</sub>(5 nm)/Ru(3 nm), com uma espessura variável da camada AF.

A seguir, serão descritos os resultados obtidos para cada um dos tipos de amostra.

### 3.3.1 IrMn/NiCu

O modelo intuitivo para o *exchange bias*, introduzido na seção 1.3, explica o fenômeno através da orientação preferencial de momentos magnéticos não-compensados que existem na interface. Para ativar o efeito é necessário organizar estes elementos, que inicialmente orientam-se de maneira aleatória. O processo é realizado através de um tratamento térmico, no qual a amostra é aquecida na presença de um campo magnético aplicado. Atinge-se uma temperatura tal que a agitação térmica é capaz de destruir a ordem AF, mas mantém intacta a FM. Obviamente, isto só é possível quando a temperatura de Curie da camada ferromagnética é maior que a temperatura de Néel da antiferromagnética. Esta relação é satisfeita na maioria dos sistemas com EB estudados, e nestes casos o modelo intuitivo pode ser útil. O fenômeno, entretanto, também pode ser observado em uma variedade de sistemas FM/AF que apresentam  $T_C < T_N$ .<sup>95-97</sup> Apesar destes possuírem inúmeras características interessantes, pesquisas sobre o tema ainda são escassas. Isto se deve, provavelmente, à dificuldade de ativação e manipulação do EB imposta pela relação entre as temperaturas críticas.

Recentemente, uma série de filmes que possuem esta relação característica entre temperaturas críticas foi estudada em detalhe.<sup>98</sup> Apesar das curvas de histerese não apresentarem nenhum deslocamento em campo, evidenciou-se um acoplamento entre as porções ferromagnética e antiferromagnética das amostras. Basicamente, notou-se que a presença do material AF contribui para a anisotropia do sistema. O aumento do campo coercivo, quando comparado com o de um material FM desacoplado, é uma das assinaturas do EB, de maneira que este não é um efeito surpreendente. A ausência de deslocamento em campo das curvas de magnetização se justifica, provavelmente, pela impossibilidade de promover um alinhamento preferencial dos momentos magnéticos interfaciais mais estáveis. Estas características fazem deste conjunto de filmes um sistema interessante para ser estudado pela técnica de curvas de remanência, já que esta é empregada no estudo das interações magnéticas. Como  $H_{\text{eb}} = 0$ , pode-se usar o método tradicional, sem a necessidade de uma redefinição do sistema de coordenadas. Mesmo assim, espera-se que a interação FM-AF promova modificações visíveis nos HP.

Filmes de composição nominal Ni<sub>60</sub>Cr<sub>40</sub>(6 nm)/Ir<sub>20</sub>Mn<sub>80</sub>(7 nm)/Ni<sub>75</sub>Cu<sub>25</sub>(30 nm)/Cr(4 nm) foram depositados via *magnetron sputtering* sobre substratos de Si(100) naturalmente oxidados.

A pressão de base durante a deposição foi de  $1 \times 10^{-8}$  Torr. A camada não-magnética de  $\text{Ni}_{60}\text{Cr}_{40}$  foi co-depositada a partir de um alvo de Ni e um de Cr. Ela funciona como semente, possibilitando o crescimento preferencial do IrMn com uma textura (111), essencial para a existência do  $\text{EB}^{50}$  em sistemas que utilizam este material AF. A cobertura de Cr, por sua vez, tem a função de prevenir a oxidação. O IrMn foi crescido através da técnica de *sputtering* de a partir de um alvo de  $\text{Ir}_{20}\text{Mn}_{80}$  em uma atmosfera de argônio com pressão de 7,5 mTorr. A camada de NiCu(30 nm) foi co-depositada a partir de um alvo de Ni e um de Cu em uma pressão de Ar de 2 mTorr. No processo, buscou-se uma proporção entre Cu e Co que resultasse em uma  $T_C$  menor que a  $T_N$  do IrMn. Análises posteriores mostraram que o objetivo foi atingido, indicando uma temperatura de Curie próxima a 373 K, enquanto a temperatura de Néel do IrMn é de aproximadamente 520 K. Todo processo de deposição se deu na presença de um campo magnético de 130 Oe aplicado paralelamente ao plano dos filmes. Este campo, porém, não foi capaz de induzir deslocamento das curvas de histerese. Também foram depositados filmes contendo apenas a camada ferromagnética de  $\text{Ni}_{75}\text{Cu}_{25}$ , permitindo o estudo da influência do acoplamento FM/AF.

Posteriormente, as amostras foram submetidas a irradiações iônicas com  $\text{He}^+$  e implantações de  $\text{Ge}^+$ . As irradiações foram realizadas com feixes de 40 keV, densidades de corrente de  $100 \text{ nA/cm}^2$  e fluências que variaram desde  $3 \times 10^{13}$  até  $1 \times 10^{15}$  ions/cm<sup>2</sup>. No caso das implantações, a energia foi mantida em 40 keV, a densidade de corrente em  $50 \text{ nA/cm}^2$  e a fluência assumiu valores entre  $5 \times 10^{13}$  e  $1 \times 10^{15}$ . Ambos os processos foram realizados na presença de um campo magnético de 5,5 kOe aplicado no plano das amostras.

A figura 3.9 mostra a dependência do campo coercivo com a fluência observada tanto no

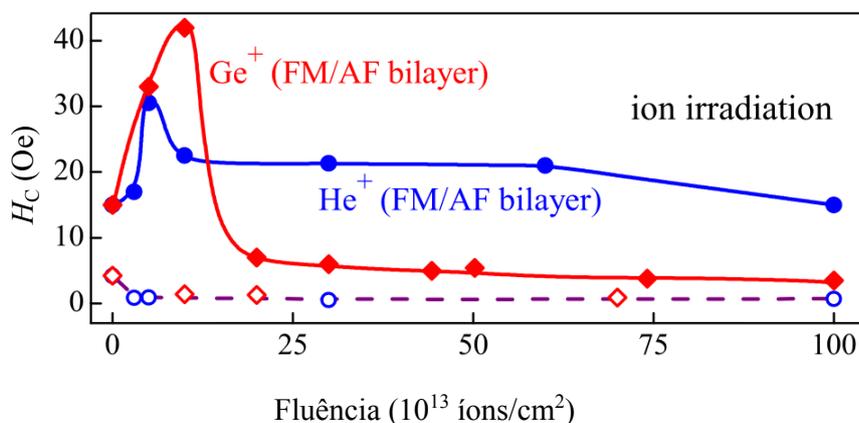


Figura 3.9: Variação do campo coercivo em função da dose observada para os filmes de IrMn/NiCu. Os símbolos vazios representam os valores de  $H_c$  medidos para filmes que não possuem a camada antiferromagnética. As linhas são apenas guias para os olhos.

caso das implantações quanto no das irradiações. Não foi possível, entretanto, induzir um deslocamento em campo nas curvas de histerese através destes processos. Os detalhes sobre os resultados provenientes destes experimentos não são discutidos aqui e podem ser encontrados na referência [98]. Nesta seção o foco é voltado apenas para os dados obtidos através das curvas de remanência e as simulações computacionais que foram realizadas na tentativa de interpretá-los. O método foi aplicado na tentativa de compreender se existe uma relação entre os valores de  $H_c$  observados para diferentes íons/fluências e as interações magnéticas presentes no sistema. Curvas  $m_d(H)$  e  $m_r(H)$  traçadas após uma desmagnetização dc foram medidas para amostras submetidas a diferentes processos pós-deposição e os respectivos HP e  $\delta M^{dc}$  construídos.

Curvas representativas de magnetização, IRM e DCD obtidas para uma amostra de IrMn/NiCu irradiada com  $\text{He}^+$  com uma dose de  $3 \times 10^{14}$  íons/cm<sup>2</sup> podem ser observadas na figura

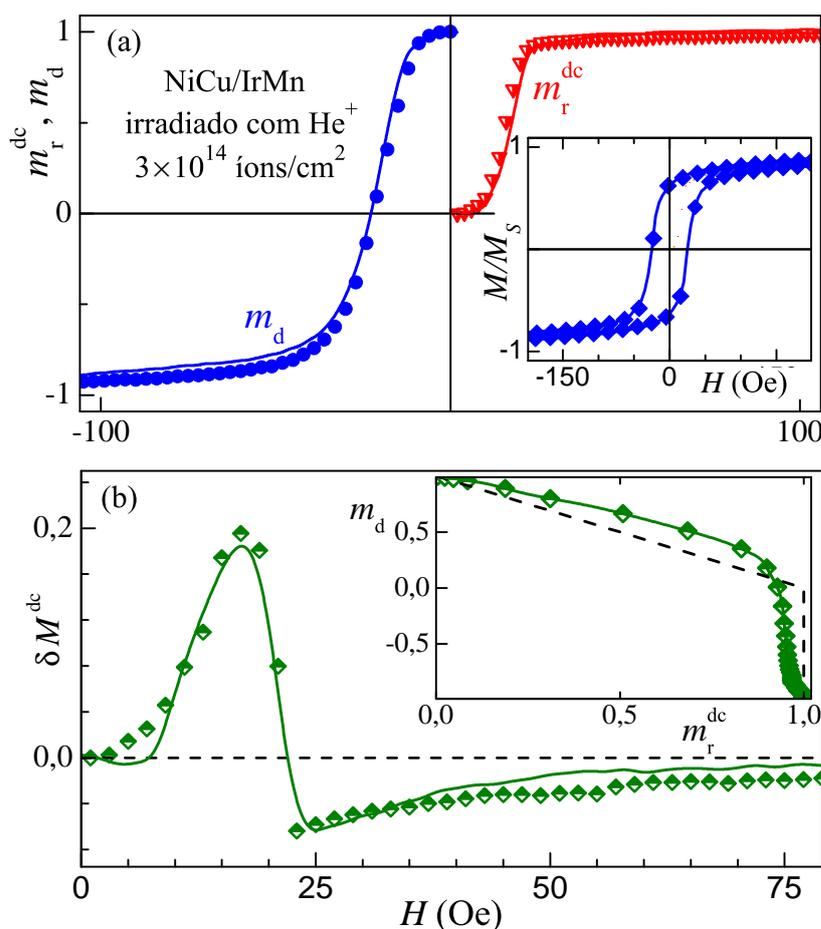


Figura 3.10: (a) curvas de remanência obtidas para a amostra de NiCu/IrMn irradiada com  $\text{He}^+$  com uma dose de  $3 \times 10^{14}$  íons/cm<sup>2</sup>; o inset ilustra uma curva de histerese obtida para a mesma amostra. (b) Curva  $\delta M^{dc}$  e Henkel plot (inset) correspondentes. As curvas tracejadas representam o comportamento esperado para um sistema que não apresenta interações magnéticas. As linhas sólidas foram simuladas utilizando  $H_{\text{ex}}^{\text{FM-FM}}/M_s = 0,64$ ,  $H_{\text{ex}}^{\text{FM-AF}}/M_s = 12$ ,  $H_{\text{ex}}^{\text{AF-AF}}/M_s = 50$ , juntamente com campos de anisotropia definidos pelos valores médios  $H_{\text{uni}}^{\text{FM}}/M_s = 8$  e  $H_{\text{uni}}^{\text{AF}}/M_s = 33$ , com desvios padrão 0,3 e 3 respectivamente.

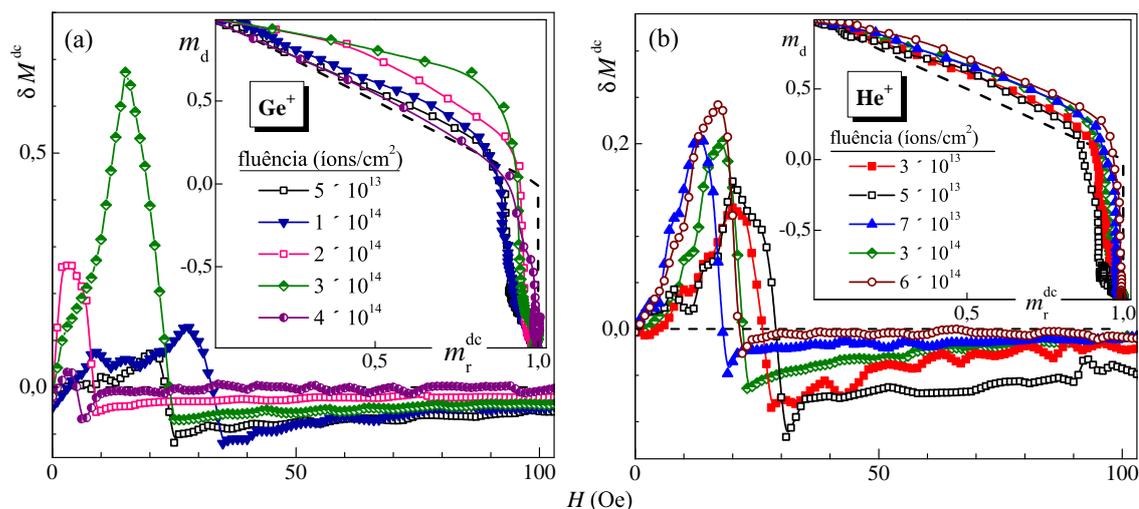


Figura 3.11: Curvas  $\delta M^{\text{dc}}(H)$  traçadas para amostras de NiCu/IrMn submetidas a (a) implantações de  $\text{Ge}^+$  e (b) irradiações com  $\text{He}^+$  com diferentes fluências. Os *insets* ilustram os respectivos *Henkel plots*. As curvas tracejadas identificam o comportamento esperado quando não existem interações magnéticas atuando no sistema.

3.10 (a). No painel (b) da mesma figura estão ilustradas a curva  $\delta M^{\text{dc}}(H)$  e os *Henkel plots* correspondentes. Até  $H \approx 25$  Oe, vemos que  $\delta M^{\text{dc}}$  mantém-se acima da reta esperada para sistemas não-interagentes, atingindo um valor máximo,  $\delta M_{\text{max}}$ , para um campo de aproximadamente 17 Oe. Após cruzar o eixo das abscissas, a curva passa por um mínimo,  $\delta M_{\text{min}}$ , e evolui gradualmente, aproximando-se assintoticamente de zero com o aumento de  $H$ . Este comportamento, com interações que se mostram ora magnetizantes, ora desmagnetizantes, também surge no HP, que apresenta desvios positivos e negativos da reta não-interagente.

As curvas  $\delta M^{\text{dc}}(H)$  e os HP correspondentes obtidos para amostras submetidas a diferentes implantações e irradiações estão ilustradas, respectivamente, nos painéis (a) e (b) da figura 3.11. Qualitativamente, estes gráficos apresentam um comportamento semelhante ao observado na figura 3.10. Novamente, percebe-se desvios positivos e negativos do comportamento não-interagente em regiões distintas das curvas. Buscando verificar a existência de uma correlação entre os parâmetros de  $\delta M^{\text{dc}}(H)$  e as variações de  $H_c$  em função da fluência, foi construída a figura 3.12. Nela compara-se  $H_{\delta M_{\text{min}}}$ , que é o campo para o qual o mínimo ocorre,  $\delta M_{\text{max}}$  e  $\delta M_{\text{min}}$  com o campo coercivo. Aparentemente, não existe conexão entre  $\delta M_{\text{max}}$  (ou sua posição) com a coercividade das amostras. Isto seria um indicativo de que interações magnetizantes, que determinam o comportamento inicial das curvas  $\delta M^{\text{dc}}(H)$  e dos HP, não são responsáveis por um aumento de  $H_c$ . Por outro lado, a quantidade  $|\delta M_{\text{min}}|$ , que está ligada a possíveis interações que favorecem um estado desmagnetizado, apresenta uma evolução com a fluência das irradiações/implantações muito semelhante à observada para o campo coercivo. A posição deste mínimo também apresenta um comportamento similar ao de  $H_c \times$  fluência. Estas

relações são indícios de que a coercividade é determinada predominantemente por interações que tradicionalmente são classificadas como desmagnetizantes ou negativas.

Na tentativa de elucidar o papel dos campos de anisotropia e acoplamento presentes no sistema nos processos de inversão da magnetização, uma série de simulações numéricas baseadas no modelo descrito na seção 3.1 foi realizada. Os cálculos foram realizados através do software apresentado na seção 3.1.1. Foi construído um sistema composto por um conjunto de elementos magnéticos. Cada um destes elementos possui seus próprios parâmetros de anisotropia e acoplamento com os vizinhos e é tratada como um mono-domínio. No caso específico das simulações que serão descritas a seguir, foi considerada uma rede tridimensional constituída por  $32 \times 32 \times 8$  momentos magnéticos acoplados via interação de troca com seus primeiros vizinhos. Interações dipolares não foram consideradas.

A porção AF do sistema é representada aqui por um ou dois planos de momentos magnéticos que interagem antiferromagneticamente ( $J_{AF/AF} < 0$ ) entre si. Isto acaba gerando camadas com-

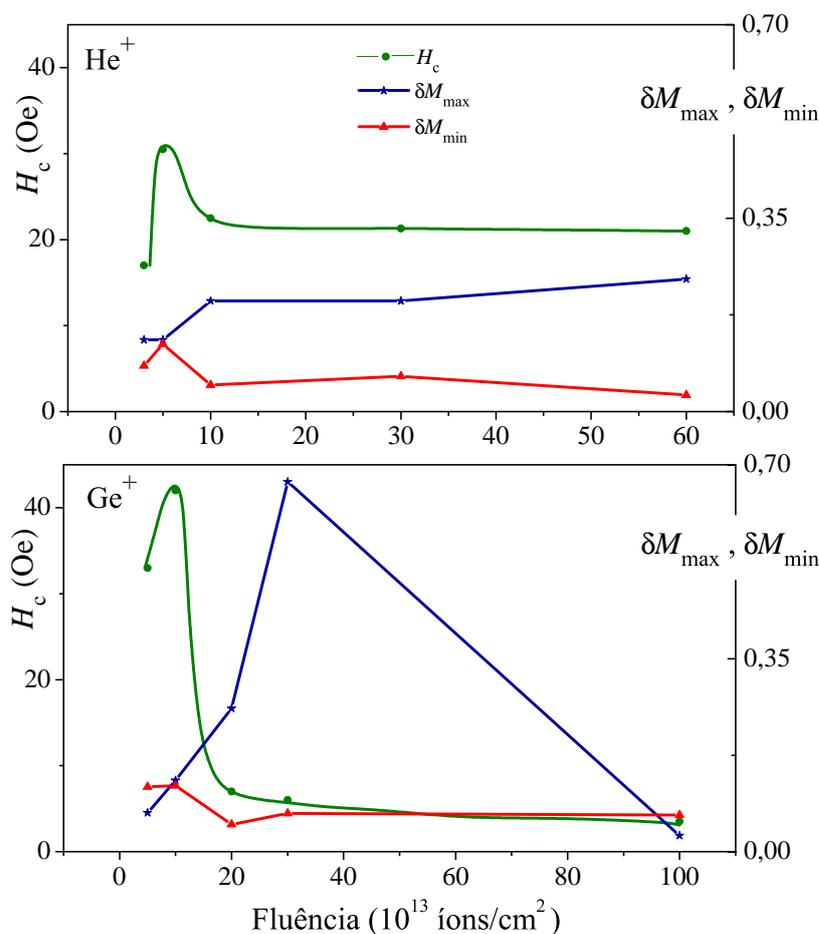


Figura 3.12:  $H_c$ ,  $\delta M_{max}$ ,  $\delta M_{min}$  e  $H_{\delta M_{min}}$  em função da fluência para amostras irradiadas com He $^+$  e implantadas com Ge $^+$ . Apenas a região de baixas fluências está ilustrada.

pensadas que se acoplam com o restante do conjunto, que representa a fatia FM de nossos filmes finos. Esta segunda porção é caracterizada por elementos que interagem ferromagneticamente ( $J_{FM/FM} > 0$ ) uns com os outros. Na interface FM/AF, foi definido um acoplamento preferencialmente paralelo entre momentos vizinhos, isto é,  $J_{FM/AF} > 0$ . Somente anisotropias uniaxiais foram consideradas, com seus eixos fáceis de magnetização distribuídos isotropicamente no plano da amostra. Durante os cálculos, foram utilizados um parâmetro de amortecimento  $\alpha = 0,03$ , e um passo temporal  $dt = 10$  ns. O valor de  $\alpha$  encontra-se dentro do intervalo de valores possíveis usualmente utilizados neste tipo de simulação e o passo temporal se mostrou adequado para os cálculos realizados.

Através desta abordagem foi possível obter bons ajustes dos dados experimentais. As linhas cheias ilustradas na figura 3.10 são todas resultados de simulações numéricas. Todas as curvas foram calculadas a partir do mesmo conjunto de parâmetros, que estão descritos na legenda da figura 3.10. Esta boa concordância entre modelo e experimento indica que os desvios negativos do comportamento não-interagente observados nesta série de amostras não necessariamente são provenientes de interações magnetostáticas. Aparentemente, o formato das curvas  $\delta M^{dc}$  e dos HP pode ser explicado considerando-se interações de troca apenas.

A contribuição de cada um dos parâmetros foi estudada através de uma série de cálculos qualitativos, nos quais a intensidade do campo de troca na interface,  $H_{ex}^{AF/FM}$ , e no interior da camada FM,  $H_{ex}^{FM/FM}$ , foram variados separadamente. Os *Henkel plots* obtidos encontram-se na figura 3.13. Observa-se que ao aumentarmos o acoplamento no interior da camada FM o desvio positivo da reta não-interagente também aumenta. As regiões negativas de  $\delta M(H)$ , por sua vez, estão aparentemente relacionadas com a interação interfacial. Apesar de um acréscimo em  $H_{ex}^{AF/FM}$  levar a uma pequena diminuição nos desvios positivos dos HP, o seu efeito mais evidente é o de incrementar os desvios negativos. Estes, que normalmente estão ligados a interações desmagnetizantes, como a magnetostática, surgem aqui apenas das interações de troca FM/AF. Trata-se, portanto, de um resultado importante, que indica que através da análise de *Henkel plots* e de curvas  $\delta M(H)$  é possível separar as contribuições da interface e do interior da camada para o comportamento magnético do sistema.

No caso específico desta série de amostras, é possível entender este comportamento de uma maneira relativamente simples. Vamos partir de uma característica comum a todas as amostras, i. e., a ausência de deslocamento em campo das curvas de histerese. Esta poderia ser explicada de diferentes formas. A primeira seria a inexistência de interação entre a camada de NiCu e a de IrMn. Esta hipótese, porém, já foi refutada, uma vez que existem certas variações da coercividade em função da fluência dos bombardeamentos iônicos observadas apenas quando o

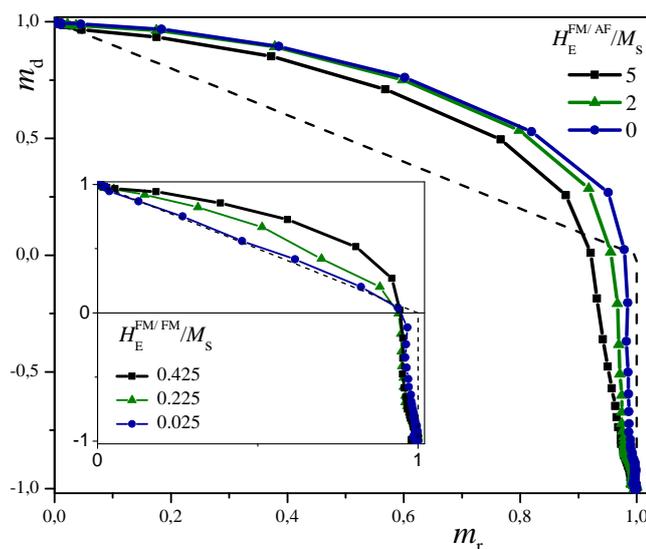


Figura 3.13: *Henkel plots* simulados para valores distintos do acoplamento FM/AF e com  $H_{\text{ex}}^{\text{FM}/\text{FM}}/M_s = 0,425$  constante. No *inset* vemos o comportamento dos HP para  $H_{\text{ex}}^{\text{AF}/\text{FM}}/M_s = 5$  e diferentes intensidades de  $H_{\text{ex}}^{\text{FM}/\text{FM}}$ . Em ambos os casos foram utilizados  $H_{\text{uni}}^{\text{FM}}/M_s = 9$  e  $H_{\text{uni}}^{\text{AF}}/M_s = 33$  como valores médios e desvios padrão de 0,3 e 3 respectivamente. A interação AF/AF foi mantida constante,  $H_{\text{ex}}^{\text{FM}/\text{FM}}/M_s = 50$ . O valor de  $M_s$  foi mantido igual a  $1 \text{ emu/cm}^3$  para todos os elementos.

material AF está presente.<sup>98</sup> Outra possibilidade seria uma textura inadequada do filme antiferromagnético, que não favorece o surgimento do EB. Esta ideia também pode ser desconsiderada, já que análises de espectros de raios-x indicam um crescimento preferencial (111) do IrMn.<sup>98</sup> Também poderíamos assumir que os momentos interfaciais não-compensados e estáveis, responsáveis pelo  $H_{\text{eb}}$ , orientam-se aleatoriamente. Esta desordem faria com que sua contribuição se compensasse, de maneira que não existiria um eixo de orientação preferencial e consequentemente teríamos  $H_{\text{eb}} = 0$ . Ao que tudo indica, esta configuração não é alterada durante os processos de irradiação ou implantação.

Tomando esta última suposição como verdadeira, poderíamos compreender os resultados ilustrados na figura 3.11 (b), obtidos para amostras irradiadas com  $\text{He}^+$ , e as simulações mostradas na figura 3.13. Em uma abordagem simplificada, o acoplamento de troca na interface se dá entre um grão FM e seu primeiro vizinho da camada AF. Se estes vizinhos interfaciais, que são altamente anisotrópicos, estiverem orientados aleatoriamente, esta interação favorecerá um estado desmagnetizado. Considerando que a interação de troca no interior da camada FM é menor que na interface, os pares AF/FM tenderão a se alinhar, fazendo com que a camada ferromagnética repita a configuração do antiferromagneto, que é magneticamente mais estável, na ausência de um campo externo. A configuração magnética da interface terá, portanto, grande influência no formato das curvas  $\delta M(H)$ . Assim sendo, alterações causadas nesta região dos fil-

mes através dos bombardeamentos iônicos poderiam explicar porque os HP variam em função da fluência. As modificações interfaciais parecem ser o principal efeito das irradiações com  $\text{He}^+$ . Cálculos realizados com o software SRIM<sup>99</sup> mostraram que os íons de hélio atravessam completamente o filme, e terminam por se depositar no substrato de silício, como mostra a figura 3.14. Sua passagem também não causa uma quantidade considerável de defeitos no interior das camadas magnéticas. O pico na coercividade, observado para uma fluência de  $5 \times 10^{13}$  íons/cm<sup>2</sup>, foi atribuído a uma configuração ótima da frustração magnética e/ou do tamanho dos domínios na parte antiferromagnética da interface.<sup>98</sup> Evidentemente, não se pode desconsiderar o acoplamento ferromagnético no interior da porção FM, que favorecerá um alinhamento da magnetização. No caso das curvas experimentais, também não é possível descartar as interações magnetostáticas, que possuem características desmagnetizantes. Contudo, as simulações apresentadas na figura 3.13 indicam que estas não precisam necessariamente ser dominantes para que valores negativos de  $\delta M(H)$  sejam observados. Teremos, em geral, uma competição entre diferentes interações durante os processos de reversão da magnetização, dando origem a desvios positivos e negativos do comportamento não-interagente.

No caso das amostras implantadas com  $\text{Ge}^+$ , o mesmo raciocínio pode ser utilizado. Simulações realizadas com o software SRIM<sup>99</sup> foram utilizados para prever a possível distribuição dos íons no interior das amostras após o processo de implantação. Os cálculos indicaram que praticamente todos os íons de germânio acabam permanecendo no interior da camada de NiCu, ou seja, nunca chegam a interface, como pode ser visto na figura 3.14. Alguns deles, porém, acabam atingindo a fronteira entre a camada FM e a AF. A presença destes átomos de germânio altera as propriedades da interface, contribuindo para variações nas interações magnéticas que ocorrem no sistema. Novamente, não se pode descartar a contribuição do acoplamento no

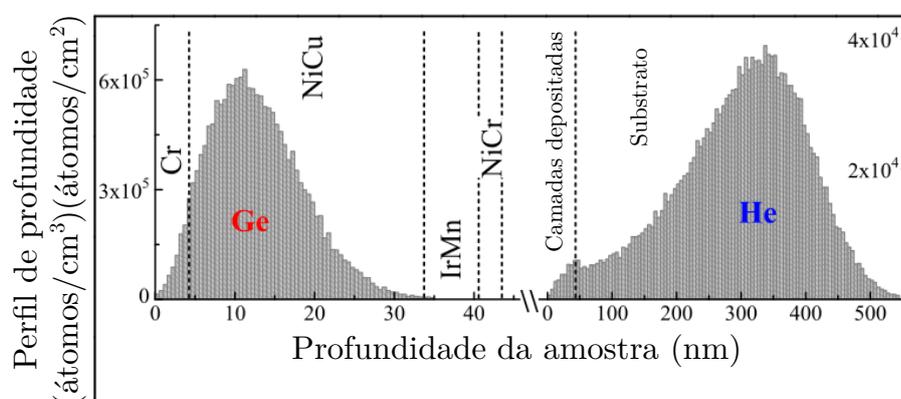


Figura 3.14: Distribuições de íons em função da profundidade das amostras obtidas para irradiações com  $\text{He}^+$  (esquerda) e  $\text{Ge}^+$  (direita) a 40 keV.<sup>98</sup> Os perfis foram calculados utilizando o software SRIM.<sup>99</sup>

interior da camada FM, tampouco das interações dipolares, para os *Henkel plots*. Todavia, poderíamos imaginar que a intensidade das interações provenientes da porção ferromagnética dos filmes não se altera muito para os diferentes processos de implantação. Uma evidência disto é que as amostras que contêm apenas NiCu, e não IrMn, apresentam poucas variações do  $H_c$  em função da fluência. As modificações ilustradas na figura 3.11 (a), portanto, seriam um resultado do balanço entre as diversas interações, que varia conforme a estrutura da interface NiCu/IrMn é alterada pela presença de Ge.

Um teste fundamental, que poderia ser realizado para separar a contribuição da interface e a do interior da camada FM para as curvas  $\delta M(H)$ , seria o estudo de uma amostra que não possui IrMn. Neste caso, poderíamos descartar completamente o acoplamento FM/AF e observaríamos apenas os efeitos das interações que ocorrem na camada de NiCu. A coercividade destes filmes, porém, é muito pequena, sendo aproximadamente igual a 4 Oe para amostras como-feitas. Isto impossibilita a obtenção das curvas  $m_r(H)$  e  $m_d(H)$ , já que a reversão da magnetização ocorre em um intervalo de campo comparável ao passo mínimo que o aparato experimental pode atingir.

### 3.3.2 Co/Cu( $t_{Cu}$ )/IrMn

O segundo conjunto de amostras analisado neste trabalho apresenta grandes diferenças em relação ao primeiro. Ao contrário dos filmes de IrMn/NiCu, o sistema Co/Cu/IrMn possui curvas de histerese deslocadas em campo, de forma que nele é possível observar as manifestações mais marcantes do EB. As curvas de remanência utilizadas em sua caracterização magnética, portanto, foram obtidas através do método adaptado descrito na seção 3.2.

Amostras de composição nominal Ta(5 nm)/Ru(15 nm)/Co(5 nm)/Cu( $t_{Cu}$ )/Ir<sub>20</sub>Mn<sub>80</sub>(7 nm)/Ta(3 nm), foram crescidas sobre Si, com diversas espessuras para o espaçador de cobre,  $t_{Cu}$ , que variaram entre 0 e 2 nm. Foi mantida uma pressão de Ar de 2 mTorr durante a deposição de Ta, Ru, Cu e Co, e de 7,5 mTorr durante a do IrMn. A pressão de base foi sempre próxima a  $1 \times 10^{-7}$  Torr. O acoplamento entre o cobalto (ferromagnético) e o irídio-manganês (anti-ferromagnético) dá origem ao EB, ativado pela presença de um campo magnético de 180 Oe aplicado paralelamente ao plano do filme durante o processo de deposição. O cobre serve como um atenuador do efeito, diminuindo a superfície de contato entre as duas camadas. As camadas iniciais de Ta e Ru servem para induzir um crescimento texturizado do AF,<sup>49</sup> enquanto os 3 nm finais de Ta protegem o filme contra oxidação. Também foi produzida uma amostra de Ta(5 nm)/Ru(15 nm)/Co(5 nm)/Cu(2 nm), para que as contribuições magnéticas do Co pudessem ser investigadas separadamente.

Diversos laços de histerese magnética foram medidos em temperatura ambiente para cada uma das amostras com um AGFM (seção 2.2). A figura 3.15 mostra a evolução dos campos coercivos e de *exchange bias* (medidos para o eixo fácil de magnetização) em função de  $t_{\text{Cu}}$ . Nota-se que, conforme o espaçador aumenta, o valor de  $H_{\text{eb}}$  decresce até tornar-se nulo. Tal comportamento, que já foi observado anteriormente em sistemas semelhantes,<sup>17,24,25</sup> indica que a camada de cobre diminui gradativamente o contato atômico entre o Co e o IrMn, até eventualmente separá-los completamente quando atinge uma espessura crítica de 1,5 nm, findando o EB. O campo coercivo apresenta uma leve diminuição conforme  $t_{\text{Cu}}$  varia entre 0 e 0,75 nm. Em seguida seu valor sofre um aumento sutil.

Este conjunto de amostras foi escolhido para testar as modificações aqui propostas na técnica de curvas de remanência justamente por apresentar este comportamento variável de  $H_{\text{eb}}(t_{\text{Cu}})$ . Como a estrutura dos filmes de Co é praticamente a mesma, acredita-se que a variação de suas características magnéticas seja proveniente apenas das mudanças na interação FM-AF, que devem se refletir nos gráficos de Henkel e de  $\delta M$ . Antes de apresentarmos uma comparação entre os gráficos das diferentes amostras, entretanto, seria interessante mostrar a quantidade de informação que pode ser obtida para cada uma delas. A figura 3.16 mostra curvas medidas para a amostra sem o espaçador de cobre. Para facilitar a visualização, o sentido de varredura do campo das  $m_{\text{d}}(H)$  utilizadas na construção dos gráficos de  $\delta M$  com sinais mistos foi revertido. Podemos perceber que estas curvas nunca trocam de sinal, permanecendo positivos para o caso ‘-+’ e negativos para o ‘+-’. Os respectivos HP apresentam uma forma de ‘L’, que se deve ao fato de que o  $m_{\text{r}}(H)$  [ou  $m_{\text{d}}(H)$ ] utilizado em sua construção varia muito pouco no intervalo de campo em que o  $m_{\text{d}}(H)$  [ou  $m_{\text{r}}(H)$ ] é praticamente revertido. Este comportamento pode ser

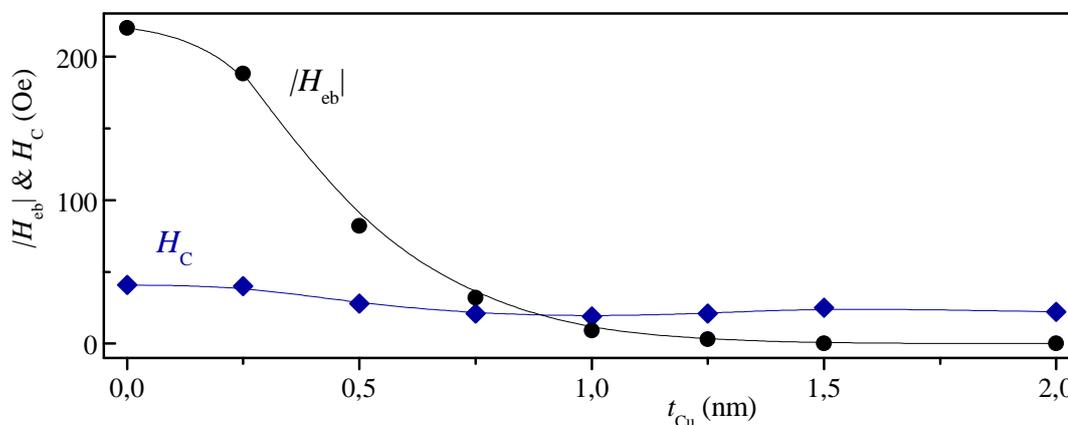


Figura 3.15: Campos coercivos e de *exchange bias* medidos para a série de tricamadas de Co/Cu/IrMn. Todos os valores foram obtidos para os respectivos eixos fáceis de magnetização. As linhas servem apenas como guias para os olhos.

observado na figura 3.7, quando comparamos, por exemplo,  $m_r^-(H)$  e  $m_d^+(H)$ . Uma primeira análise indicaria que para pares ‘ $-+$ ’ predominam interações que favorecem um estado magnetizado, enquanto que para os ‘ $+-$ ’ interações desmagnetizantes se sobressaem. Este resultado parece um tanto contraditório, já que estamos tratando de um único sistema. É necessário que estes dados sejam tratados com cuidado, pois resultam da comparação de curvas obtidas em ramos distintos de magnetização. Dada a assimetria destes ramos, não poderíamos extrair informações sobre as interações existentes no sistema de curvas com sinais mistos, já que estas incorporam caminhos diferentes tomados pela magnetização. Todavia, as formas dos  $HP^{+-}$  e  $HP^{-+}$  parecem indicar que existe uma facilidade maior de magnetizarmos o nosso sistema para campos negativos quando este é aplicado no eixo fácil.

A maioria dos gráficos ‘ $++$ ’ e ‘ $--$ ’ que podem ser observados na figura 3.16 apresentam tanto desvios positivos quanto negativos das linhas que correspondem ao caso não-interagente. Se a interpretação tradicional das curvas de remanência for utilizada, isto seria uma indicação de que interações magnetizantes (de troca) e desmagnetizantes (dipolar) coexistem no sistema. O  $HP_{--}^{ac}$ , entretanto, mostra apenas desvios positivos da reta teórica, o que classicamente aponta a existência de interações de troca apenas. Uma vez que as interações que atuam no sistema não podem depender do método de desmagnetização, é possível que a “leitura” correta destas curvas

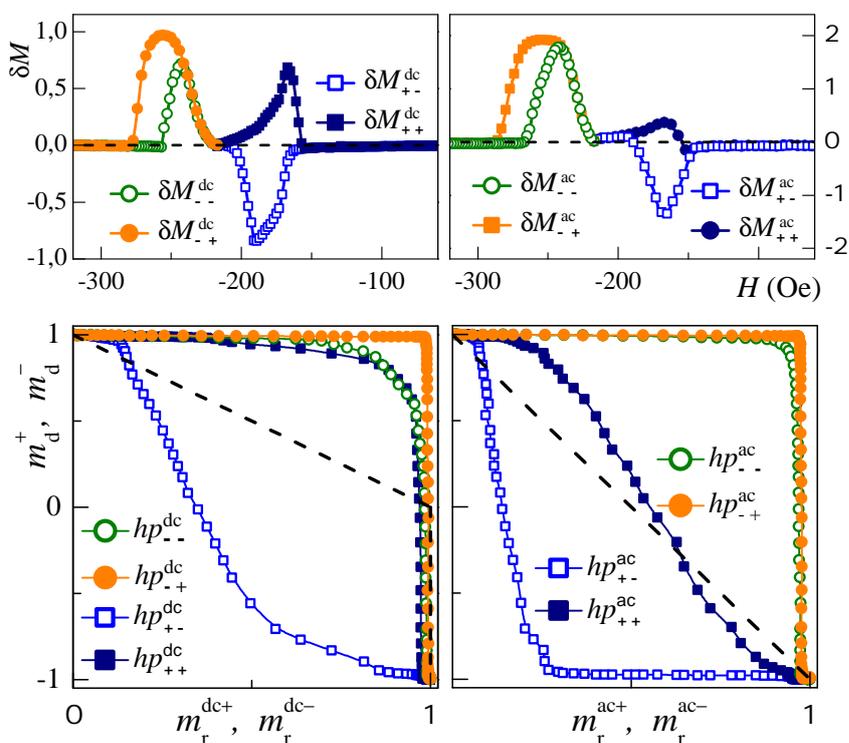


Figura 3.16: Curvas de  $\delta M$  (painel superior) e *Henkel plots* (painel inferior) obtidos para a amostra sem o espaçador de cobre. As linhas tracejadas indicam o comportamento esperado para um sistema sem interação.

não seja necessariamente a mesma que é tradicionalmente aplicada em sistemas sem EB.

Os gráficos definidos pelas equações (3.14) e (3.15), por outro lado, parecem apresentar uma interpretação bastante direta. As curvas  $\Delta m_d$  e  $\Delta m_r$  poderiam ser utilizados para estimar a assimetria dos processos irreversíveis de reversão da magnetização que ocorrem para campos ascendentes e descendentes em sistemas com EB. O painel direito da figura 3.17 apresenta dados obtidos para a amostra com  $t_{Cu} = 0$  nm, que refletem as grandes diferenças existentes entre os ramos distintos de magnetização. No painel esquerdo da mesma figura, pode-se observar uma comparação entre as  $\Delta m_r^{dc}(H)$  traçadas para filmes com  $t_{Cu} \leq 1$  nm. Vê-se claramente que o valor máximo destas curvas diminui e sua posição desloca-se para campos cada vez menores (em modulo) conforme aumenta a espessura do espaçador de cobre. O acoplamento interfacial efetivo entre o Co e o IrMn decresce com o aumento de  $t_{Cu}$  e o mesmo acontece para as respectivas assimetrias no formato das curvas de histerese, o que explica a diminuição de  $\Delta m_r^{dc}$ . O deslocamento dos picos, por sua vez, se deve aos valores distintos de  $H_{eb}$  apresentados pelas amostras. Para o filme com  $t_{Cu} = 1$  nm, que possui  $H_{eb} \approx 10$  Oe, vemos que praticamente não existem diferenças entre  $m_r^{+dc}$  e  $m_r^{-dc}$ . No caso de amostras com camadas de Cu mais espessas, e campos de *exchange bias* ainda menores ou até inexistentes, estes gráficos são essencialmente zero para todos os valores de  $H$ , o que é esperado para curvas simétricas.

A figura 3.18 exprime boa parte dos resultados experimentais obtidos para esta série de amostras. Nela observa-se a evolução dos *Henkel plots* em função da espessura do espaçador de cobre. Nos painéis localizados no lado direito da figura 3.18 encontram-se os gráficos obtidos após uma desmagnetização ac. Diferentemente dos dados ilustrados nos painéis da esquerda,

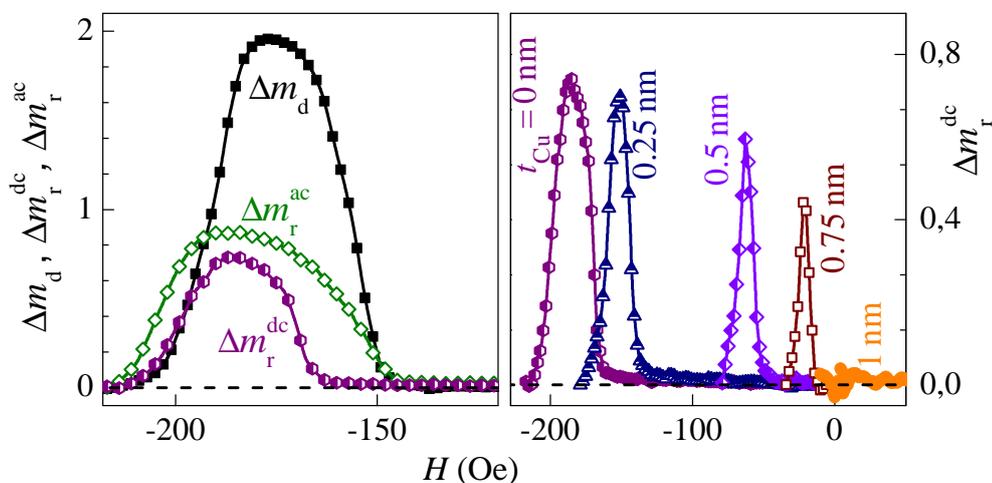


Figura 3.17: Painel esquerdo: curvas de  $\Delta m_d$  e  $\Delta m_r$  traçadas para a amostra sem espaçador de cobre. Painel direito: comparação entre curvas  $\Delta m_r^{dc}$  obtidas para amostras com  $t_{Cu} \leq 1$  nm.

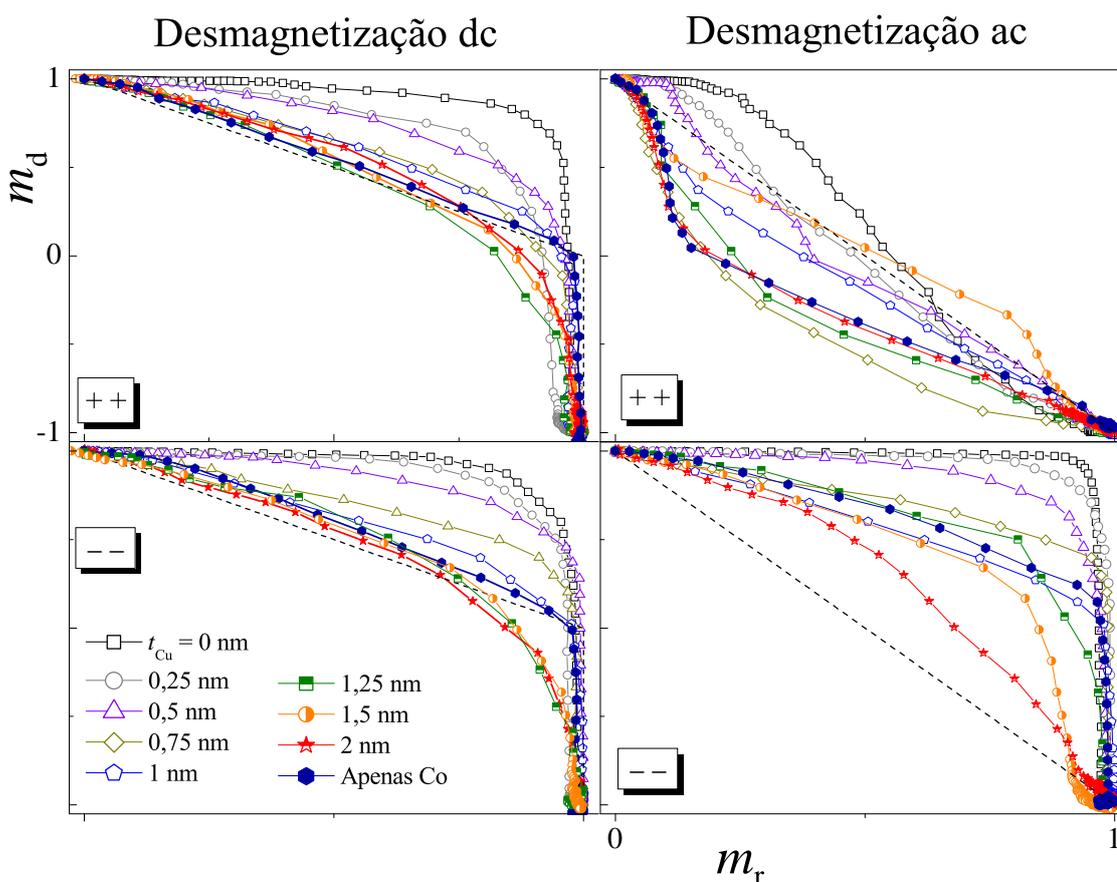


Figura 3.18: *Henkel plots* obtidos para cada uma das amostras após desmagnetizações dc e ac.

nestes não se observa uma tendência clara. As curvas ‘++’ apresentam desvios ora para cima, ora para baixo, enquanto nas ‘--’ estes ocorrem quase sempre para o mesmo lado. Tais resultados parecem bastante incoerentes, já que a natureza das interações magnéticas não pode depender do sentido do campo aplicado. Ao que tudo indica, a rotina de desmagnetização implementada não é capaz de conduzir o sistema ao estado inicial desejado, apesar de atingir uma remanência nula. Por isso, na discussão que segue, apenas curvas obtidas após desmagnetizações dc serão consideradas.

Discutamos agora os dados ilustrados nos painéis localizados no lado esquerdo da figura 3.18, nos quais apresentam-se curvas traçadas após uma desmagnetização dc. O maior desvio em relação a linha tracejada, que indica o caso sem interação, ocorre para a amostra que não possui camada espaçadora. Como esta curva surge acima da reta prevista pelas equações (1.12) e (1.13), acredita-se que interações magnetizantes agem no sistema. Este efeito parece diminuir conforme  $t_{Cu}$  aumenta até 1,25 nm, quando um estado de saturação parece ser atingido. A amostra que não possui camada antiferromagnética, por sua vez, apresenta diferenças muito sutis em relação ao que seria esperado de um sistema não-interagente.

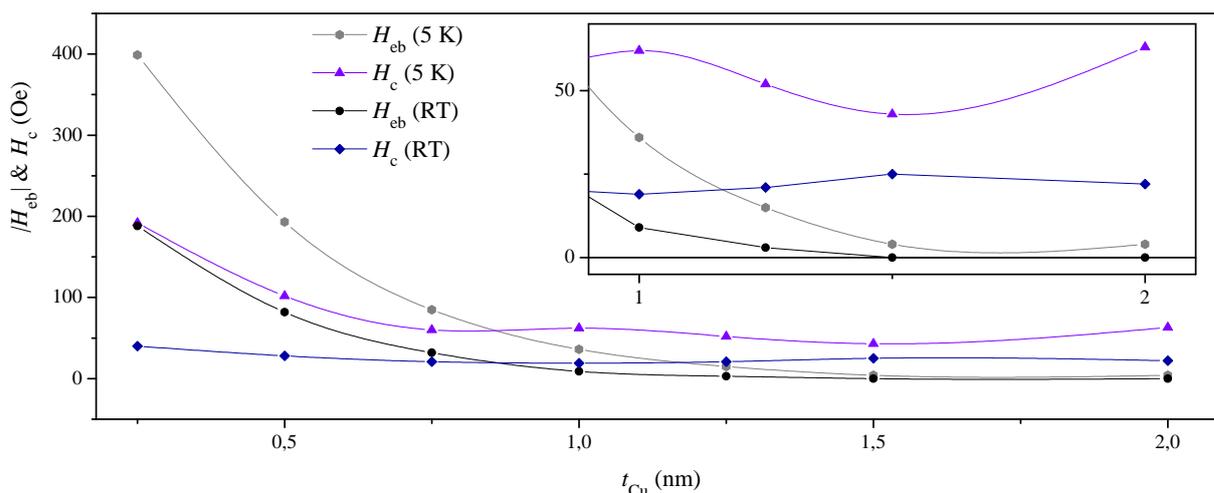


Figura 3.19: Comportamento do campo de *exchange bias* e do campo coercivo em função da espessura do espaçador de cobre obtidos em temperatura ambiente (RT) e em 5 K para o eixo fácil de magnetização. O *inset* traz uma ampliação da região entre  $t_{Cu} = 1$  e 2 nm para facilitar a visualização. As linhas são apenas guias para os olhos.

Estes resultados sugerem que a camada de Co é constituída por grãos ferromagnéticos que pouco interferem um com o outro. Aparentemente, as supostas interações magnetizantes surgem do acoplamento de troca existente entre o Co e o IrMn. Conforme a espessura do espaçador de cobre cresce e a superfície de contato efetiva entre estes materiais diminui, o efeito torna-se cada vez menor. Para  $t_{Cu} \geq 1,25$  nm não se observa mais grandes distinções entre os  $HP_{dc}$ , o que é coerente com fato de que a partir desta espessura o  $H_{eb}$  é muito pequeno ou nulo. Quando se compara estas curvas com as obtidas para amostra sem IrMn, no entanto, nota-se uma clara diferença. Enquanto esta praticamente reproduz o comportamento de um sistema de partículas não-interagentes com anisotropia uniaxial, aquelas apresentam um claro desvio para baixo. Assumindo que a única diferença entre estes filmes é a presença do material AF e que o Cu é capaz de separar completamente as camadas, era de se esperar que tais gráficos fossem praticamente iguais, ao menos para  $t_{Cu} = 2$  nm. Como este claramente não é o caso, é possível que algum tipo de interação entre o FM e o AF ainda exista, mesmo que incapaz de induzir um deslocamento do laço de histerese.

Para esclarecer esta questão, curvas de histerese foram medidas em baixas temperaturas para todas as amostras que possuíam um espaçador de cobre. Para a realização destas medidas foi utilizado um magnetômetro SQUID, cujo princípio de funcionamento foi apresentado na seção 2.4. Antes da realização das medidas, as amostras foram resfriadas sem campo magnético aplicado. A figura 3.19 mostra a comparação entre os valores de  $H_{eb}$  e  $H_c$  obtidos para o eixo fácil de magnetização em temperatura ambiente (RT) e em 5 K. Nota-se que mesmo para espaçadores mais espessos, que aparentemente extinguem o EB em RT, ainda temos uma

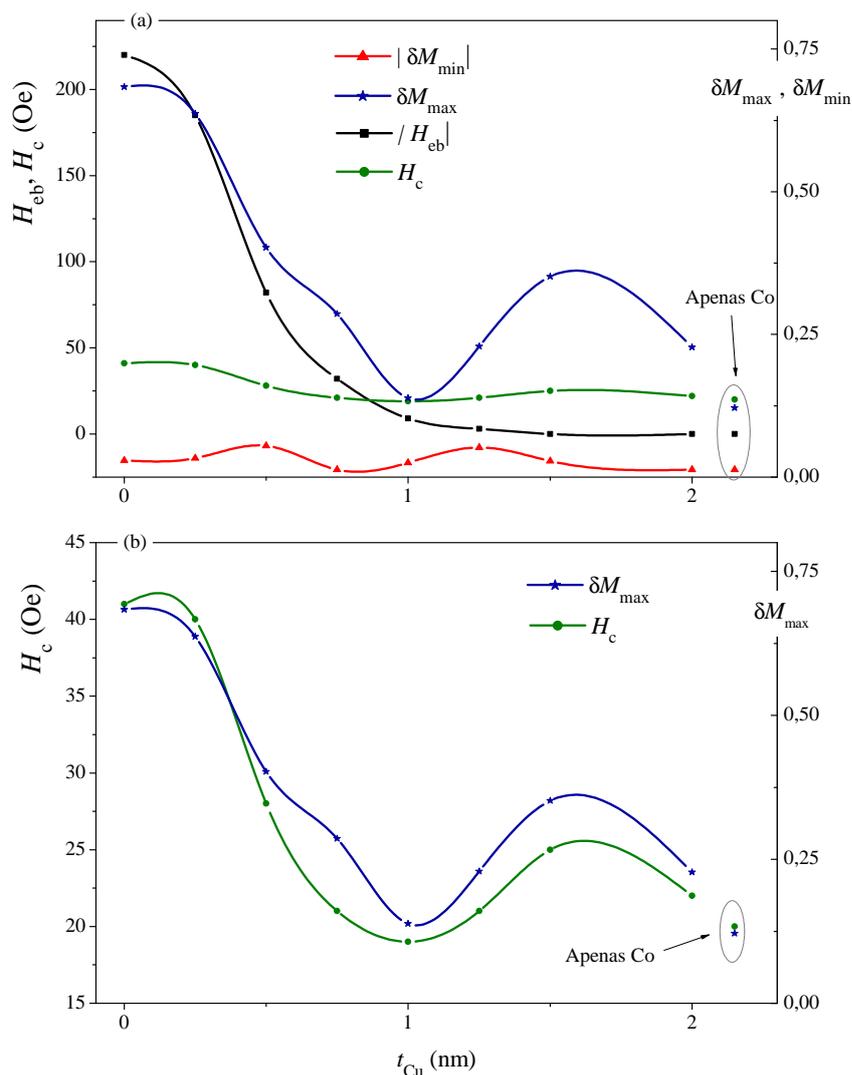


Figura 3.20: (a) comportamento de  $H_c$ ,  $H_{eb}$ ,  $\delta M_{max}^{++}$  e  $|\delta M_{min}^{++}|$  em função da espessura do espaçador de cobre  $t_{Cu}$ . Os valores dos campos coercivo e de *exchange bias* estão representados no eixo coordenado localizado do lado esquerdo de cada painel, enquanto os valores máximo e mínimo de  $\delta M$  no do lado direito. (b) comparação entre  $H_c$  e  $\delta M_{max}$  ilustrada em outra escala para facilitar a visualização. As linhas são apenas guias para os olhos.

pequena interação entre o Co e o IrMn, que fica evidente em 5 K. Apesar de não induzir um deslocamento da curva de histerese em temperaturas mais elevadas, este acoplamento FM-AF poderia afetar os processos de reversão da magnetização. Isto explicaria o comportamento distinto entre HP obtidos para a amostra sem IrMn e aqueles traçados para filmes com  $t_{Cu} \geq 1,25$  nm.

Assim como no caso das amostras de IrMn/NiCu, comparamos  $\delta M_{max}^{++}$  e  $|\delta M_{min}^{++}|$  com os campos característicos observados nas curvas de histerese. A figura 3.20 (a) ilustra a evolução destes parâmetros em função da espessura da camada de Cu. Para  $t_{Cu} \leq 1$  nm, o comportamento de  $\delta M_{max}$  se assemelha ao do  $H_{eb}$  e também ao do  $H_c$ , como pode ser visto em detalhe

na figura 3.20 (b). Por outro lado, quando  $H_{eb}$  torna-se muito pequeno ou nulo, para  $t_{Cu} > 1$  nm, o máximo da curva  $\delta M(H)$  passa a seguir a evolução do campo coercivo apenas. Como mencionado anteriormente, as manifestações mais conhecidas do EB são o deslocamento em campo da curva de histerese e um aumento da coercividade, quando comparada com a de um material FM desacoplado. Usualmente, associa-se o primeiro efeito ao acoplamento dos momentos magnéticos da camada ferromagnética com UCS interfaciais estáveis. Quando estes momentos estáveis alinham-se em uma direção preferencial, observamos o surgimento de  $H_{eb}$ , já que durante o processo de reversão da magnetização eles mantêm sua orientação original. O aumento de  $H_c$ , por sua vez, está ligado à existência de spins interfaciais instáveis, que acompanham a evolução da magnetização da camada FM. Apesar de serem chamados instáveis, estes momentos magnéticos possuem anisotropia, exigindo maior energia para que a reversão da magnetização do FM acoplado a eles ocorra, e conseqüentemente aumentando a coercividade do FM. A existência de um espaçador de cobre reduz a superfície de contato entre as camadas de Co e IrMn, diminuindo efetivamente a interação entre elas. Isto por si só já poderia explicar a dependência de  $H_{eb}$  com  $t_{Cu}$ . Porém, é preciso considerar que, como a interação FM-AF é menor, a possibilidade de orientarmos os UCS estáveis durante a deposição dos filmes, ou através de um tratamento posterior, também diminui. Portanto, para valores maiores de  $t_{Cu}$  poderíamos supor que as orientações das magnetizações dos UCS distribuem-se aleatoriamente.

Um aspecto interessante que surge ao compararmos este conjunto de dados com os obtidos para os filmes de IrMn/NiCu reportados na seção anterior é que aqui a razão  $\delta M_{max}/|\delta M_{min}|$  é maior, pelo menos para os casos em que  $H_{eb}$  é grande. Este resultado poderia ser interpretado considerando as diferentes configurações interfaciais que estão aparentemente presentes em cada tipo de amostra. No caso do sistema IrMn/NiCu, aparentemente existe uma interação entre as camadas FM e AF, que se manifesta através da variação do  $H_c$ . Não existe, porém, deslocamento em campo das curvas de histerese. É razoável assumir, portanto, que os UCS interfaciais que poderiam contribuir para o  $H_{eb}$  não foram suficientemente orientados em uma direção preferencial durante a deposição dos filmes ou dos bombardeamentos iônicos. Temos então uma interface composta por momentos magnéticos estáveis mas orientados isotropicamente. A interação destes spins interfaciais com a camada ferromagnética fará com que esta busque uma configuração semelhante a do AF, dando origem a uma interação efetivamente desmagnetizante. Tal acoplamento se refletirá em valores negativos da curva  $\delta M(H)$ . Para a série de amostras de Co/Cu/IrMn, entretanto, a configuração da interface é diferente, apresentando uma orientação preferencial dos UCS que dá origem a um  $H_{eb}$  não-nulo. Considerando o eixo de fácil magnetização, poderíamos supor que esta configuração favorecerá um estado magnetizado da porção FM dos filmes, gerando regiões onde  $\delta M(H) > 0$ .

Esta ideia, porém, precisa ser discutida mais a fundo. À primeira vista, poderíamos imaginar que uma interface bem orientada facilitaria a magnetização da amostra apenas em um sentido, dificultando o processo no sentido oposto. Esta é justamente a ideia do modelo intuitivo descrito na seção 1.3, que constitui uma das abordagens mais simples para se explicar o EB. Os resultados da figura 3.18, obtidos após desmagnetizações dc, sugerem que a contribuição do acoplamento FM-AF para os HP não é exatamente esta. Nela podemos observar *Henkel plots* obtidos para diferentes amostras e construídos a partir de pares  $m_r(H)$  e  $m_d(H)$  traçados para os dois ramos da magnetização. Fica claro que o comportamento dos  $HP^{++}$  e  $HP^{--}$  é muito semelhante. Em outras palavras, interações similares agem sobre o sistema, independentemente da direção em que estamos tentando magnetizá-lo ou desmagnetizá-lo. Para entendermos esta aparente contradição, é preciso lembrar que estas curvas foram obtidas através do método de remanência adaptado, apresentado na seção 3.2. Na técnica original, as curvas  $m_r(H)$  e  $m_d(H)$  ilustram a evolução da magnetização remanente em função de um campo externo aplicado e subsequentemente retirado. Aqui, estamos preocupados com o valor de  $M$  quando o campo externo se equivale ao campo de *exchange bias*, e não quando ele é nulo. Poderíamos supor que a presença deste campo  $H$  compensa, de certa forma, a ação de  $H_{eb}$ .

Na tentativa de esclarecer o que faz com que este conjunto de amostras apresente tal comportamento, uma série de simulações foram realizadas. O ponto de partida é a figura 3.20 (a), que traz a variação dos parâmetros das curvas  $\delta M(H)$  em função da espessura da camada de cobre. Como mencionado anteriormente, existe uma correlação aparente entre  $\delta M_{max}$  e  $H_{eb}$ , enquanto este é diferente de zero. A evolução do campo de *exchange bias* poderia estar relacionada a diferentes configurações interfaciais dos UCS estáveis. Quanto maior o alinhamento destes momentos em um sentido preferencial, maior o deslocamento em campo da curva de histerese. Outra possibilidade seria a modificação do acoplamento efetivo entre as camadas FM e AF. Esta parece se adequar melhor a esta série de amostras, já que o espaçador de cobre separa gradualmente o Co e o IrMn. A figura 3.21 ilustra os resultados obtidos para diferentes simulações, nas quais apenas o acoplamento FM-AF foi variado. A linha cheia representa o comportamento do filme que contém somente cobalto, e foi traçada a partir do melhor ajuste obtido para os dados experimentais. No cálculo foi utilizada uma única camada, totalizando  $32 \times 32 \times 1$  momentos magnéticos de volume  $5 \times 5 \times 5 \text{ nm}^3$ , acoplados via interação de troca com  $J/M_{st} = 0,1 \text{ Oe}$ . Quanto aos demais parâmetros, foram consideradas uma distribuição angular gaussiana dos eixos fáceis, com desvio padrão  $\sigma = 0,65 \text{ rad}$  e centrada em zero, e uma distribuição log-normal dos campos de anisotropia uniaxial, com  $\sigma' = 0,35$  e valor médio  $29 \text{ Oe}$ . A presença do material AF foi modelada a partir da introdução de uma camada extra, contendo também  $32 \times 32 \times 1$  momentos magnéticos de volume  $5 \times 5 \times 5 \text{ nm}^3$ . Por simpli-

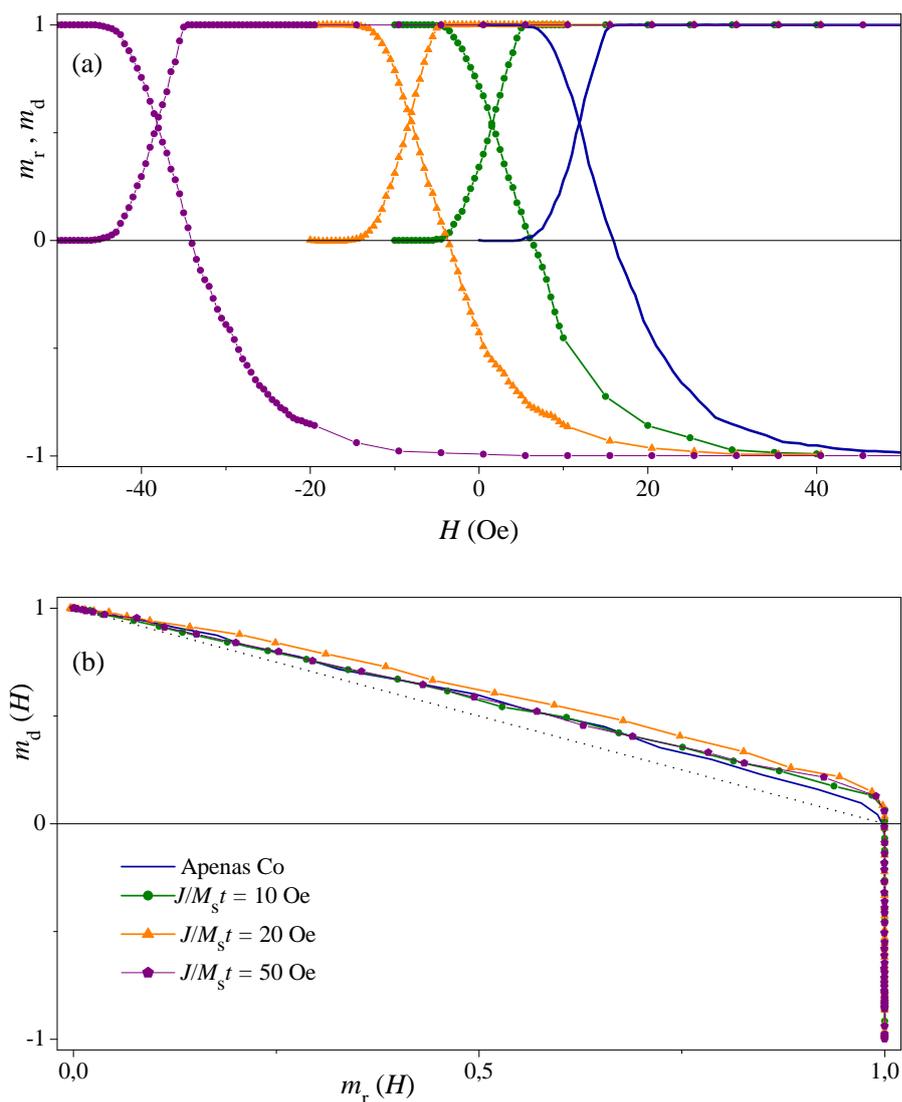


Figura 3.21: (a) curvas  $m_r(H)$  e  $m_d(H)$  calculadas para diferentes acoplamentos entre uma camada FM e um AF. (b) os respectivos *Henkel plots*. A linha pontilhada representa o caso sem interações.

cidade, consideramos nesta primeira aproximação que todos possuíam eixos fáceis alinhados e que não acoplavam-se entre si. Como estes spins devem representar UCS estáveis, a eles foram atribuídos campos de anisotropia muito grandes, para que permanecessem imóveis enquanto a magnetização da camada vizinha evolui. A magnetização de saturação de todos os elementos foi mantida em  $1400 \text{ emu/cm}^3$ .

O painel (a) da figura 3.21 traz as curvas  $m_r(H)$  e  $m_d(H)$  obtidas para diferentes valores de acoplamento entre as duas camadas, aplicando o campo externo paralelamente à orientação da camada AF. Apenas a magnetização da camada que representa o ferromagneto foi considerada. Além dos deslocamentos em campo, praticamente não se nota diferenças entre as curvas. Isto se reflete nos respectivos *Henkel plots*, que são apresentados no painel (b) da mesma fi-

gura. Estes cálculos indicam que, para o caso de uma camada AF interfacial perfeitamente não-compensada, a interação de troca não causa mudanças significativas no HP. Este resultado não é surpreendente, já que nesta configuração o campo  $H_{\text{ex}}^{\text{FM-AF}}$  permanece fixo durante toda a simulação e simplesmente se soma ao campo aplicado.

Supondo que a contribuição dos UCS estáveis não altera a forma dos HP, voltamos nossa atenção para os momentos magnéticos instáveis da interface, os chamados rodáveis. Como mostrado na figura 3.20 (b), a evolução de  $\delta M_{\text{max}}$  e a de  $H_c$  em função de  $t_{\text{Cu}}$  é bastante semelhante. Poderíamos considerar, portanto, que existe uma relação direta entre a anisotropia rodável e o aparente aumento das interações magnetizantes presentes no sistema. O aumento da coercividade, quando comparada com a de um ferromagneto desacoplado, é uma das manifestações mais tradicionais do EB. Como mencionado nas seções 1.3 e 3.1, acredita-se que momentos magnéticos interfaciais não-compensados são os responsáveis por este comportamento. Os parâmetros de anisotropia e de interação de troca destes elementos são tais que sua magnetização segue a da camada FM durante um processo de reversão.<sup>82</sup> Uma quantidade maior de energia passa a ser necessária para que a reversão ocorra, resultando em um aumento do  $H_c$ .

Para esclarecer qual é a contribuição dos momentos rodáveis nas curvas  $\delta M(H)$  e nos *Henkel plots*, foram realizadas algumas simulações numéricas. Os resultados estão ilustrados na figura 3.22, e foram obtidos para um par de camadas, cada uma contendo  $32 \times 32 \times 1$ . Uma delas representa o material ferromagnético, e em sua construção foram utilizados os mesmos parâmetros implementados nas simulações anteriores. A outra faz o papel dos momentos rodáveis, que neste caso não interagem entre si, apenas com a camada FM. A magnetização de saturação destes elementos foi mantida em  $900 \text{ emu/cm}^3$ , e foi atribuída a eles uma distribuição isotrópica de eixos fáceis no plano. A magnetização desta camada, entretanto, não foi levada em conta na construção dos HP. Isto significa que, apesar dos momentos rodáveis existirem durante os cálculos, os valores de  $m_d(H)$  e  $m_r(H)$  foram obtidos considerando apenas a porção FM do sistema.

No painel (a), vemos a evolução dos HP em função do campo de anisotropia médio dos grãos rodáveis,  $H_{\text{uni}}^{\text{rod}}$ . Em todos os casos, foi considerada uma distribuição log-normal destes campos, com  $\sigma' = 0,35$  e um acoplamento com a camada FM dado por  $J/M_s t = H_{\text{ex}}^{\text{FM-rod}} = 5 \text{ Oe}$ . Para  $H_{\text{uni}}^{\text{rod}} = 10 \text{ Oe}$ , o HP praticamente reproduz o comportamento não-interagente. Este resultado é um tanto inesperado, já que continua existindo interação ferromagnética no interior da camada FM. Aparentemente, a presença destes grãos rodáveis pouco anisotrópicos compensou este acoplamento. Ao aumentarmos o valor do campo de anisotropia médio dos momentos

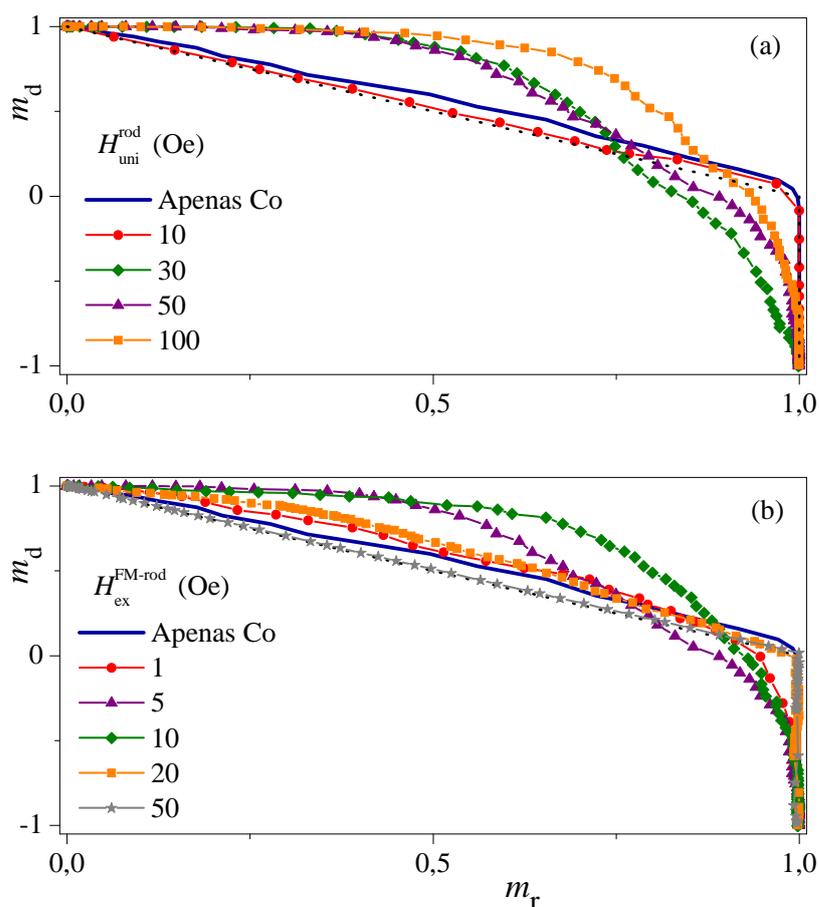


Figura 3.22: (a) Henkel plots obtidos para diferentes valores médios dos campos de anisotropia dos momentos rodáveis e (b) para diferentes acoplamentos com a camada ferromagnética. A linha tracejada representa o caso sem interações, já a linha cheia representa o melhor ajuste obtido para o filme que contém apenas cobalto.

rodáveis, entretanto, sua contribuição para os HP começa a mudar. Surgem desvios positivos cada vez maiores em relação ao comportamento não-interagente, acompanhados de desvios negativos. No painel (b) da mesma figura, vemos a evolução dos HP em função do acoplamento  $H_{ex}^{FM-rod}$  entre as duas camadas. Neste caso, o valor de  $H_{uni}^{rod}$  foi mantido sempre em 50 Oe. Podemos notar que, conforme o acoplamento aumenta, passam a surgir desvios cada vez maiores do comportamento não-interagente. Novamente, os desvios são ora positivos, ora negativos. Esta evolução, porém, segue apenas até  $H_{ex}^{FM-rod} = 10$  Oe. Para um campo de interação de troca de 20 Oe, os desvios começam a diminuir. Vale salientar que as curvas obtidas para  $H_{ex}^{FM-rod} = 1$  e 20 Oe são muito semelhantes. Esta, entretanto, não apresenta desvios negativos. Quando a interação atinge o valor de 50 Oe, observamos um HP praticamente igual ao esperado para um sistema em que não atuam interações magnéticas.

Apesar da dependência dos HP com a anisotropia rodável ser complicada, os resultados desta série de simulações são interessantes. Eles indicam que o comportamento observado expe-

rimentalmente, e que está ilustrado na figura 3.18, poderia ser explicado através da contribuição de UCS instáveis. Isto estaria de acordo com a correlação entre a coercividade e o valor de  $\delta M_{\max}$ , apresentado na figura 3.20, já que acredita-se que estes elementos são responsáveis pelo aumento de  $H_c$  em sistemas com EB. A contribuição destes momentos magnéticos rodáveis também deve ser considerada na análise dos dados obtidos para os filmes de IrMn/NiCu irradiados e implantados. Mesmo que lá não exista ligação aparente entre  $\delta M_{\max}$  e a coercividade, o formato dos HP é provavelmente afetado por eles. O mais razoável seria supor que o seu papel se soma ao dos UCS estáveis na determinação do Henkel plots e das curvas  $\delta M(H)$ . É importante salientar que, assim como no caso de momentos magnéticos estáveis, os desvios negativos do comportamento não-interagente surgiram de um acoplamento interfacial.

### 3.3.3 IrMn( $t_{\text{IrMn}}$ )/CoFe

O terceiro e último tipo de sistema no qual a técnica de curvas de remanência foi testada é um conjunto de filmes finos de IrMn/CoFe, que possuem diferentes espessuras de material anti-ferromagnético. As amostras possuem a seguinte composição nominal Ta(5 nm)/Ru(15 nm)/IrMn( $t_{\text{IrMn}}$ )/Co<sub>50</sub>Fe<sub>50</sub>(5 nm)/Ru(3 nm), e foram depositados via *magnetron sputtering* em substratos de silício naturalmente oxidados. Assim como no caso das amostras de Co/Cu/IrMn discutidas na seção anterior, as camadas de 5 nm de Ta e 15 nm de Ru servem como sementes, auxiliando no crescimento preferencial (111) do material AF. A cobertura de Ru, por sua vez, ajuda a prevenir a oxidação. A espessura do IrMn,  $t_{\text{IrMn}}$ , foi variada entre 5 e 20 nm.

Diferentemente dos outros dois conjuntos de amostras estudados, esta série não foi depositada na presença de campo magnético. Apesar de pequenos, foi possível observar deslocamentos em campo nas curvas de histerese traçadas para amostras como-feitas. Possivelmente,

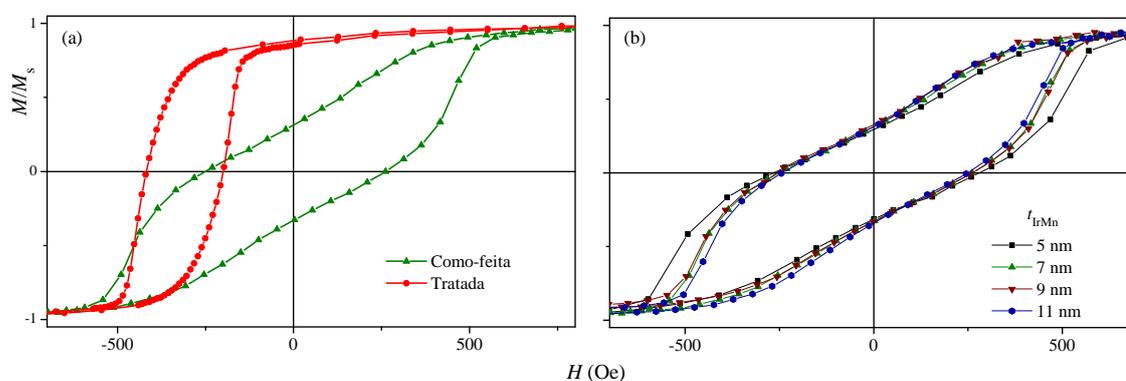


Figura 3.23: (a) curvas de histerese obtidas para a amostra de IrMn(7 nm)/CoFe antes e depois de ser submetida a um tratamento térmico. (b) laços traçados para diferentes amostras como-depositadas.

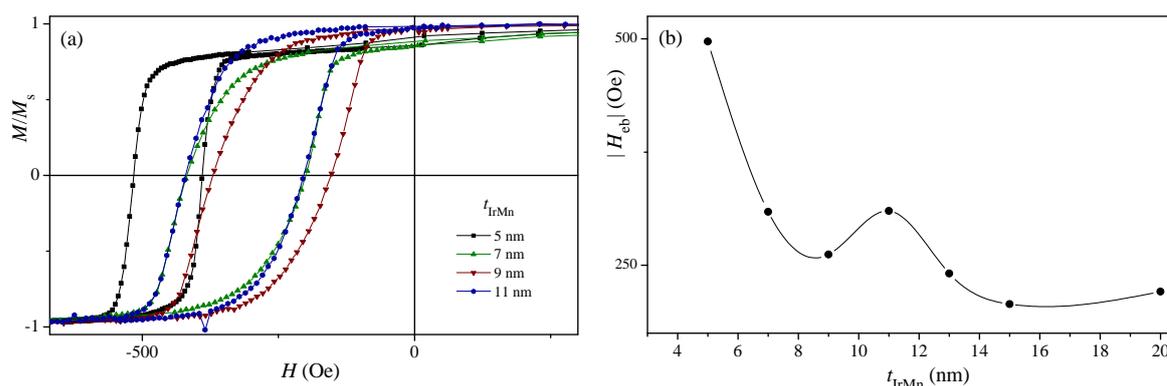


Figura 3.24: (a) curvas de histerese medidas no eixo fácil para amostras tratadas termicamente que possuem camadas de IrMn com diferentes espessuras. (b) evolução do campo de *exchange bias* em função da espessura do IrMn.

o próprio campo magnético do *magnetron* foi capaz de induzir uma direção preferencial de orientação dos UCS. Mesmo assim, os filmes foram submetidos a tratamentos térmicos na presença de campo magnético, na tentativa de tornar o efeito de EB mais evidente. O forno resistivo descrito na seção 2.3 foi utilizado nestes procedimentos. Cada uma das amostras foi aquecida até aproximadamente 210 °C, e posteriormente resfriada até a temperatura ambiente, tudo sob a ação de um campo magnético de 2 kOe aplicado paralelamente ao plano filme. A temperatura máxima de tratamento foi escolhida com base em um estudo prévio realizado em amostras de Co/IrMn.<sup>35</sup>

A figura 3.23 (a) traz laços de histerese representativos obtidos para a amostra de IrMn(7 nm)/CoFe como-feita e após o tratamento térmico. No caso da amostra tratada, a curva ilustrada foi traçada aplicando o campo externo na direção de fácil magnetização do sistema. Nota-se um comportamento bastante peculiar na histerese magnética da amostra virgem, que parece indicar a presença de duas fases magnéticas. Entretanto, este formato nada mais é do que uma assinatura do acoplamento entre a camada FM e os UCS orientados aleatoriamente. Um estudo realizado com uma série de filmes finos de IrMn/NM/Co mostrou que tal comportamento desaparece gradativamente conforme a espessura do espaçador não-magnético (NM) aumenta.<sup>100</sup> Na figura 3.23 (b) se pode notar que as curvas de magnetização obtidas para outras amostras como-depositadas apresentam praticamente o mesmo formato, independentemente do valor de  $t_{\text{IrMn}}$ .

Curvas de histerese representativas obtidas para amostras tratadas termicamente estão ilustradas na figura 3.24 (a). Todas elas foram obtidas para o eixo fácil de magnetização, que coincide com a direção do campo magnético aplicado durante o processo de recozimento. Nota-se que a amostra que possui a menor espessura de IrMn,  $t_{\text{IrMn}} = 5$  nm, apresenta o maior desloca-

mento em campo da curva de magnetização. Também é possível observar que o formato desta curva distingue-se das demais, sendo mais retangular e sugerindo que o processo de inversão da magnetização é mais abrupto nesta amostra. Os demais filmes apresentam laços de formato semelhante, porém com valores de  $H_{eb}$  levemente distintos. No painel (b) da mesma figura, podemos observar a evolução do campo de *exchange bias* em função da espessura do material AF para esta série de amostras. Um máximo deslocamento é encontrado para  $t_{IrMn} = 5$  nm, quando  $H_{eb} \approx 500$  Oe, mas seu valor decresce e passa a oscilar em torno de aproximadamente 250 Oe conforme  $t_{IrMn}$  aumenta.

A dependência do campo de *exchange bias* com a espessura do material antiferromagnético,  $t_{AF}$ , é bastante complexa. Ela já foi estudada em diversos sistemas, e comportamentos variados foram observados.<sup>23</sup> Em geral,  $H_{eb}$  mostra-se independente de  $t_{AF}$  para camadas AF relativamente espessas, i.e., maiores que 20 nm. Conforme a espessura começa a decrescer, o campo de EB experimenta uma redução abrupta, eventualmente tornando-se nulo. Os fatores que levam a esta evolução são vários. Dentre eles podemos destacar a variação da anisotropia do material AF em função da diminuição de sua espessura. Isto o torna magneticamente instável, e conseqüentemente incapaz de dificultar de maneira significativa a inversão da magnetização de um material FM adjacente. Outra grandeza que pode variar com  $t_{AF}$  é a temperatura de Néel, afetando a temperatura de bloqueio e por sua vez a quantidade de grãos que podem ser ativados em um determinado tratamento pós-deposição. Esta tendência de diminuição abrupta do  $H_{eb}$  para camadas muito finas do material AF, porém, nem sempre é verificada. Em alguns casos, um máximo é encontrado para valores relativamente pequenos de  $t_{AF}$  e é seguido de um decréscimo abrupto conforme a espessura diminui. Tal comportamento assemelha-se com o observado nesta série de filmes finos de IrMn/CoFe, como vê-se na figura 3.24 (b). Ele pode estar associado com a modificação da configuração de domínios magnéticos que ocorre quando  $t_{AF}$  diminui, ou ainda com variações na estrutura cristalina do sistema.<sup>23</sup>

O comportamento de  $H_c$ ,  $H_{eb}$ ,  $\delta M_{max}^{++}$  e  $\delta M_{min}^{++}$  em função da espessura da camada de IrMn está ilustrado na figura 3.25. Assim como no caso das amostras de Co/Cu/IrMn, aqui também se observa semelhanças entre a evolução de  $H_{eb}$  e  $\delta M_{max}^{++}$ . Diferentemente do caso das amostras com espaçadores de Cu, porém, aqui não parece razoável atribuir a variação de  $H_{eb}$  com uma diminuição do acoplamento efetivo entre a camada FM e a AF.

O principal objetivo da aplicação da técnica de curvas de remanência a esta série de amostras era a comparação entre os comportamentos das amostras recozidas e como-feitas. A figura 3.26 ilustra os *Henkel plots* e as curvas  $\delta M(H)^{++}$  obtidas para diferentes amostras de IrMn/CoFe. Fica claro que a amostra com 5 nm de IrMn, que possui o maior  $H_{eb}$  do conjunto,

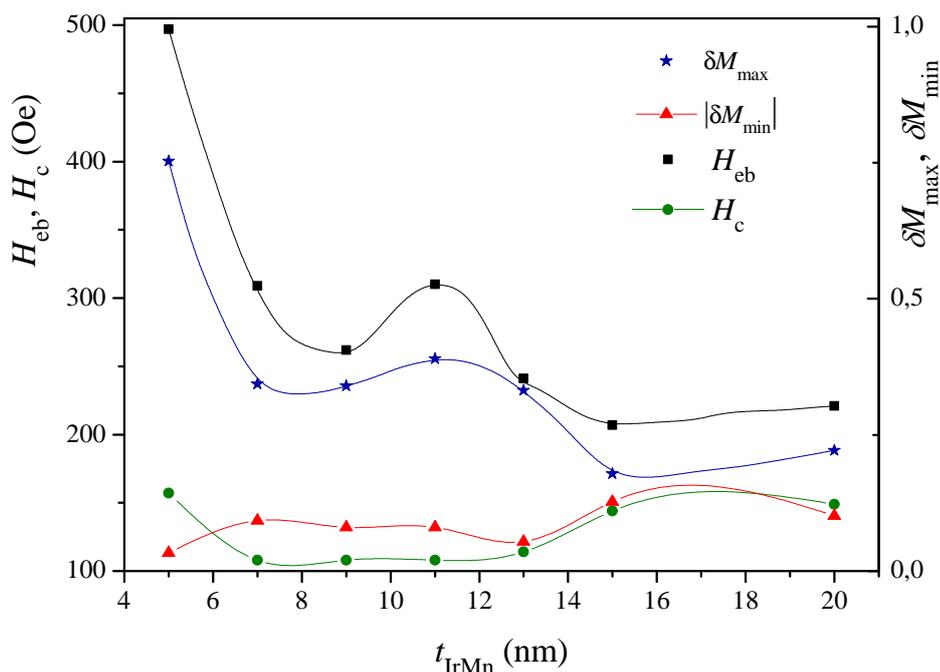


Figura 3.25: Evolução de  $H_c$ ,  $H_{\text{eb}}$ ,  $\delta M_{\text{max}}$  e  $\delta M_{\text{min}}$  em função da espessura da camada antiferromagnética de IrMn. Os valores dos campos coercivo e de *exchange bias* estão representados no eixo coordenado localizado do lado esquerdo do painel, enquanto os valores máximo e mínimo de  $\delta M$  no do lado direito. As linhas são apenas guias para os olhos.

apresenta o maior desvio positivo em relação a um comportamento não-interagente. Este filme também é caracterizado por um pico em  $\delta M(H)$  mais estreito e bem definido. As outras amostras da série possuem curvas  $\delta M(H)$  e HP bastante semelhantes. Todos apresentam desvios positivos mais acentuados do que os negativos. Os valores de  $\delta M_{\text{max}}$ , porém, são consideravelmente menores que o obtido para  $t_{\text{IrMn}} = 5$  nm. Na mesma figura também estão ilustrados os dados experimentais referentes a amostra de IrMn(5 nm)/CoFe como-feita. Nota-se grandes diferenças em relação ao comportamento observado para o sistema recozido na presença de campo magnético. Enquanto este sugere interações fortemente magnetizantes, que originam uma curva  $\delta M(H)$  positiva, aquele indica fracas interações desmagnetizantes. Tal resultado corrobora a interpretação sugerida anteriormente na seção 3.3.1, de que uma estrutura de UCS interfaciais estáveis magneticamente desordenada contribui para desvios negativos do comportamento não-interagente.

Para que a evolução dos *Henkel plots* ilustrados na figura 3.26 possa ser compreendida, é necessário que diversos fatores sejam considerados. O primeiro deles é o papel da anisotropia rodável. Como discutido na seção anterior, onde os resultados para as amostras de Co/Cu/IrMn foram expostos, determinadas configurações de spins interfaciais instáveis podem levar os HP obtidos para camadas FM a apresentarem desvios positivos consideráveis em relação ao com-

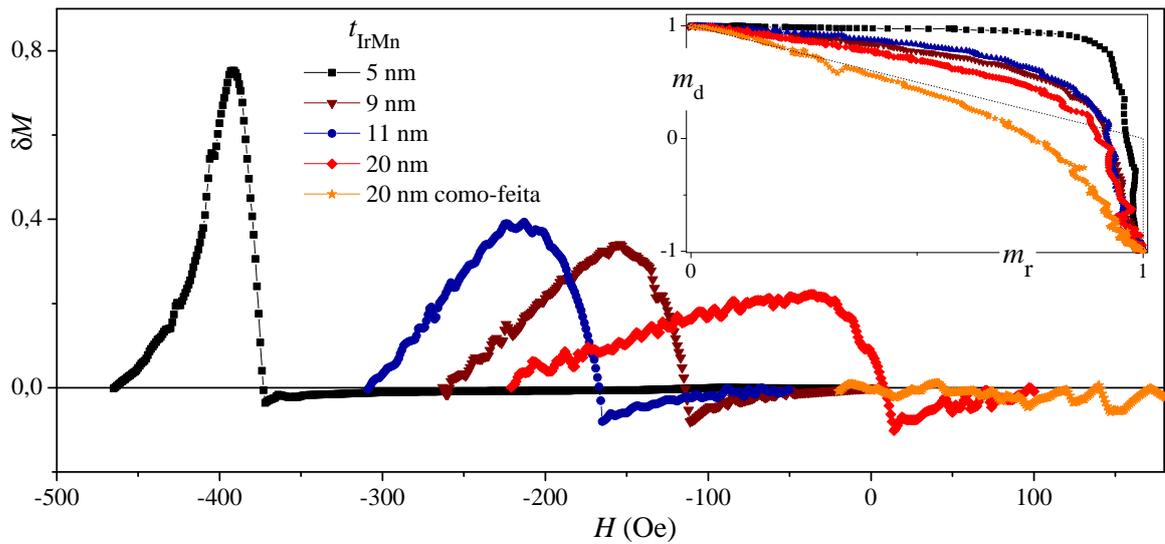


Figura 3.26: Curvas  $\delta M(H)^{++}$  obtidas para amostras tratadas termicamente que apresentam diferentes espessuras de IrMn. Também está representada uma curva  $\delta M(H)^{++}$  traçada para uma amostra como-depositada. O inset traz os respectivos Henkel plots.

portamento não-interagente. Para determinadas configurações, estes são acompanhados de desvios negativos. Assim sendo, a contribuição destes UCS instáveis poderia explicar os resultados expostos na figura 3.26. Entretanto, diferentemente do caso das amostras de Co/Cu/IrMn, aqui não se observa uma correlação tão clara entre  $\delta M_{\max}$  e  $H_c$ . O valor máximo das curvas  $\delta M(H)$ , porém, parece evoluir de forma semelhante a  $H_{eb}$ . Isto sugere que, além da contribuição da anisotropia rodável, é provável que os UCS estáveis também desempenhem um papel importante aqui. De acordo com as conclusões obtidas para o sistema IrMn/NiCu, o comportamento dos HP poderia estar associado à configuração interfacial dos momentos magnéticos não-compensados que dão origem ao campo de *exchange bias*. Para interfaces mais magneticamente desordenadas, um comportamento desmagnetizante seria dominante, enquanto que para UCS perfeitamente alinhados, praticamente não veríamos influência da camada AF.

## 4 Conclusões

O *exchange bias* é um fenômeno intrigante que ainda não é completamente compreendido. Ainda assim, o efeito encontra grande aplicação tecnológica, atraindo a atenção de diversos grupos de pesquisa ao redor do mundo. No presente trabalho, buscou-se alcançar um entendimento mais profundo do EB através de uma técnica experimental usualmente empregada em sistemas magnéticos que possuem curvas de histerese simétricas. O método de curvas de remanência, que é muito utilizado no estudo de interações magnéticas, foi adaptado e aplicado na caracterização de uma série de amostras que possuem interfaces entre um material ferromagnético e um antiferromagnético. Basicamente, o sistema de coordenadas foi redefinido, de maneira a igualar as magnetizações remanentes para os dois ramos da curva de magnetização.

Como sistemas com EB usualmente apresentam laços de magnetização assimétricos, foi possível construir um conjunto de novos gráficos, além dos tradicionais *Henkel plots* e  $\delta M(H)$ . Duas novas curvas foram definidas,  $\Delta m_r(H)$  e  $\Delta m_d(H)$ . A primeira revela a diferença entre  $m_r^+$  e  $m_r^-$ , enquanto a segunda faz o mesmo para curvas  $m_d(H)$ . Ambas são maneiras simples de quantificar a assimetria presente nos laços de histerese de sistemas com EB. No caso da curva  $\Delta m_d(H)$ , temos uma medida que pode ser obtida rapidamente, já que não é necessário partirmos de um estado desmagnetizado, e que pode ser muito útil no estudo de processos de reversão da magnetização.

Outra consequência da assimetria magnética dos sistemas com EB é o aumento no número de *Henkel plots* que podem ser criados. A partir da comparação de curvas IRM e DCD traçadas para cada um dos ramos de magnetização, um total de quatro HP, e consequentemente quatro curvas  $\delta M(H)$ , podem ser compostos. Nem todos eles, porém, são capazes de fornecer informações relevantes. Ao confrontarmos curvas  $m_r(H)$  e  $m_d(H)$  associados a ramos distintos da magnetização em um HP, por exemplo, estaremos comparando dois caminhos magnéticos diferentes. Desta forma, seria complicado extrair qualquer tipo de informação sobre a natureza do sistema. Por outro lado, HP e curvas  $\delta M(H)$  que comparam processos de magnetização e desmagnetização para um mesmo ramo podem ser muito úteis no estudo das propriedades magnéticas. Eles revelam características do processo de reversão da magnetização e podem ser

utilizados para sondar a influência de interações magnéticas.

Para comprovar o potencial do método de curvas de remanência adaptado para sistemas com EB, três conjuntos distintos de amostras depositados via *magnetron sputtering* foram estudados. São eles filmes finos de IrMn/NiCu, nos quais a temperatura de Curie do FM é menor que a temperatura de Néel do AF; amostras de Co/Cu/IrMn, que apresentam espessuras variadas do espaçador de cobre; e sistemas compostos por bicamadas de IrMn/CoFe, com diferentes espessuras do material AF.

As amostras de IrMn/NiCu, apesar de possuírem uma interface FM/AF, não apresentaram deslocamento em campo de suas curvas de histerese. Foram realizados processos usuais para ativar o EB, como tratamentos térmicos e bombardeamentos iônicos na presença de campo magnético, mas nenhum deles foi capaz de induzir o efeito. Notou-se, todavia, uma variação da coercividade das amostras em função das doses utilizadas durante irradiações com He<sup>+</sup> e implantações de Ge<sup>+</sup>. Como a amostra de controle, que não possuía material AF, não apresentou o mesmo comportamento, concluiu-se que existia um acoplamento entre o IrMn e o NiCu.

Curvas  $\delta M(H)$  e *Henkel plots* foram traçados para amostras submetidas a bombardeamentos iônicos com diferentes doses. Em praticamente todos os casos, desvios positivos e negativos do comportamento não-interagente foram observados. Ao confrontarmos a evolução dos parâmetros das curvas  $\delta M(H)$  com o campo coercivo em função da dose, notou-se uma aparente correlação entre  $|\delta M_{\min}|$  e  $H_c$ . Este seria um indício de que interações tradicionalmente classificadas como desmagnetizantes estariam relacionadas com o valor de  $H_c$ .

Para entender melhor o papel da camada AF no comportamento dos HP, uma série de simulações numéricas foi realizada. Os resultados mostraram que os desvios negativos de  $\delta M(H)$  presentes neste sistema poderiam estar ligados à natureza magneticamente desordenada dos UCS interfaciais. Como não se observa valores de  $H_{cb}$  não nulos, mas existe acoplamento entre a camada FM e a AF, podemos supor que os momentos não-compensados interfaciais mais estáveis orientam-se aleatoriamente. O acoplamento do ferromagneto com este conjunto de spins rígidos e desordenados acaba gerando uma interação efetivamente desmagnetizante. Desta forma, através da análise de curvas  $\delta M(H)$  ou de HP, é possível separar, ao menos neste caso específico, as contribuições da interface das do interior da camada FM nos processos de reversão da magnetização.

O segundo sistema estudado, e o primeiro em que a adaptação do método de curvas de remanência foi realmente testado, consiste em uma série de filmes finos de Co/Cu( $t_{Cu}$ )/IrMn. Tal sistema foi escolhido pois, através de espaçadores de cobre de espessuras variadas, se pode controlar o acoplamento efetivo entre as camadas FM e AF. Todas as amostras foram depositadas

na presença de campo magnético, de maneira que foi possível observar *exchange bias* sem a necessidade de tratamentos posteriores. Como esperado,  $H_{\text{eb}}$  decresce gradualmente em função de  $t_{\text{Cu}}$ , tornando-se nulo para camadas de cobre maiores que 1,5 nm. Curvas  $\delta M(H)$  e *Henkel plots* foram traçados para todas as amostras da série, após processos distintos de desmagnetização. Os resultados obtidos após desmagnetizações ac, entretanto, não se mostraram reprodutíveis e desta forma não foram analisados. No caso de desmagnetizações dc, os dados foram mais consistentes. Simulações computacionais foram utilizadas em sua interpretação. Através delas foi possível mostrar que, para o caso de UCS estáveis perfeitamente alinhados, a interação FM-AF não tem grande influência no formato dos HP. Como a adaptação da técnica de curvas de remanência para sistemas com EB implica em uma redefinição do sistema de coordenadas, o conceito de magnetização remanente também se modifica. Busca-se traçar o comportamento da magnetização residual em  $H = H_{\text{eb}}$ , e não mais para campo externo nulo. A presença deste campo acaba, de certa forma, compensando a contribuição de  $H_{\text{eb}}$  nos HP. A anisotropia rodável, por outro lado, desempenha um papel fundamental. Novamente com o auxílio de cálculos computacionais, foi possível mostrar que a presença de UCS interfaciais instáveis poderia explicar os resultados experimentais observados. A interação da camada FM com estes momentos é capaz de gerar tanto desvios positivos quanto negativos do comportamento não-interagente.

O terceiro sistema estudado no decorrer deste trabalho consiste em um conjunto de filmes finos de IrMn/CoFe, que apresentam espessuras variadas de IrMn. Diferentemente dos outros dois grupos de amostras, estas não foram depositadas na presença de campo aplicado. Foi necessária, portanto, a realização de tratamentos térmicos para que o *exchange bias* fosse ativado. Após estes procedimentos, não se pode observar uma correlação clara entre a espessura do material AF e o valor de  $H_{\text{eb}}$ . O valor mais alto do campo de EB foi obtido para amostra com 5 nm de IrMn, para a qual  $H_{\text{eb}} \approx 500$  Oe. Para espessuras maiores de IrMn,  $H_{\text{eb}}$  decresce e passa a oscilar em torno de 250 Oe. Assim como no caso dos filmes de Co/Cu/IrMn, aqui também foi observada uma correlação entre  $\delta M_{\text{max}}$  e o campo de *exchange bias*. A ligação entre a coercividade e o valor máximo de  $\delta M(H)$ , entretanto, não se mostrou tão evidente. Os resultados sugerem que tanto a contribuição dos UCS rodáveis, quanto a dos estáveis é importante aqui. A influência destes últimos estaria conectada a sua organização interfacial, que também é um fator fundamental na determinação dos HP.

Ao analisarmos o conjunto de dados como um todo, podemos concluir que o método de curvas de remanência pode ser útil no estudo de sistemas com *exchange bias*. A interpretação dos resultados, porém, é bastante complexa, já que inúmeros fatores contribuem para o comportamento de  $\delta M(H)$  e dos *Henkel plots*. O estudo relatado no presente documento precisa ser continuado, para que as interpretações sugeridas sejam confirmadas. Interações dipolares,

---

por exemplo, não foram consideradas aqui em nenhum momento. Estas são tradicionalmente desmagnetizantes e poderiam estar relacionadas com as regiões negativas de  $\delta M(H)$  observadas para diversas amostras estudadas. Experimentos adicionais também poderiam auxiliar na interpretação dos dados. Medidas de ressonância ferromagnética, por exemplo, poderiam ser utilizadas para estimar a anisotropia rodável dos sistemas. Como sugerido por nossas simulações, estas parecem desempenhar um papel fundamental nos processos de reversão da magnetização.

## *Lista de Artigos publicados*

Segue uma lista dos artigos para os quais contribuí e que foram publicados durante o período do meu doutorado. Trabalhos relacionados diretamente com a presente tese estão indicados com o símbolo ✓.

- J. Geshev, T. Dias, S. Nicolodi, R. Cichelero, A. Harres, J. J. S. Acuña, L. G. Pereira, J. E. Schmidt, C. Deranlot, and F. Petroff, Role of the uncompensated interface spins in polycrystalline exchange-biased systems, *Journal of Physics D: Applied Physics*, **44** (2011) 095002
- A. Harres and J. Geshev, Athermal training due to exchange and dipolar coupling within a granular model for exchange bias, *Journal of Physics: Condensed Matter*, **23** (2011) 216003
- A. Harres, S. Nicolodi, L. G. Pereira, J. E. Schmidt, A. D. C. Viegas, and J. Geshev, Effect of short-duration annealing on the exchange bias in IrMn/Co films, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **323** (2011) 2398
- S. Nicolodi, A. Harres, L. G. Pereira, J. E. Schmidt, M. A. de Sousa, F. Pelegrini, A. D. C. Viegas, C. Deranlot, F. Petroff, and J. Geshev, Abrupt suppression of the exchange bias across a non-magnetic insulator spacer, *Journal of Applied Physics*, **110** (2011) 063922
- S. Nicolodi, L. G. Pereira, A. Harres, G. M. Azevedo, J. E. Schmidt, I. García-Aguilar, N. M. Souza-Neto, C. Deranlot, F. Petroff, and J. Geshev, Negative rotatable anisotropy in IrMn/Cr/Co thin films, *Physical Review B*, **85** (2012) 224438
- ✓ A. Harres and J. Geshev, A polycrystalline model for magnetic exchange bias, *Journal of Physics: Condensed Matter*, **24** (2012) 326004
- ✓ A. Harres, R. Cichelero, L. G. Pereira, J. E. Schmidt, and J. Geshev, Remanence plots technique extended to exchange bias systems, *Journal of Applied Physics*, **114** (2013) 043902
- ✓ R. Cichelero, A. Harres, K. D. Sossmeier, J. E. Schmidt, and J. Geshev, Magnetic interactions in exchange-coupled yet unbiased IrMn/NiCu bilayers, *Journal of Physics: Condensed Matter*, **25** (2013) 426001

## *Bibliografia*

- [1] B. D. Cullity, *Introduction to magnetic materials*. Menlo Park: Addison-Wesley Publishing Company, 1972.
- [2] J. M. D. Coey, *Magnetism and Magnetic Materials*. The Edinburgh Building, Cambridge CB2 8RU, UK: Cambridge University Press, 2010.
- [3] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin, *Solid State Physics*. Philadelphia: Saunders College Publishing, 1976.
- [4] C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics*. New York: John Wiley & Sons, Inc., 7 ed., 1996.
- [5] P. Weiss, “La variation du ferromagnétisme avec la temperature,” *Comptes Rendus*, vol. 143, p. 1136, 1906.
- [6] P. Weiss, “L’Hypothèse du champ moléculaire et de la propriété ferromagnétique,” *Journal de Physique*, vol. 6, p. 661, 1907.
- [7] C. G. Shull and J. S. Smart, “Detection of antiferromagnetism by neutron diffraction,” *Physical Review*, vol. 76, p. 1256, 1949.
- [8] K. H. J. Buschow and F. R. de Boer, *Physics of Magnetism and Magnetic Materials*. New York: KLUWER ACADEMIC PUBLISHERS, 2003.
- [9] J. H. van Vleck, “On the anisotropy of cubic ferromagnetic crystals,” *Physical Review*, vol. 52, p. 1178, 1937.
- [10] G. van der Laan, “Microscopic origin of magnetocrystalline anisotropy in transition metal thin films,” *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 10, p. 3239, 1998.
- [11] S. Chikazumi and S. H. Charap, *Physics of Magnetism*. Huntington: Robert E. Krieger Publishing Co., Inc., 1<sup>a</sup> ed., 1978.
- [12] R. C. O’Handley, *Modern Magnetic Materials - Principles and Applications*. New York: John Wiley & Sons, Inc., 2000.
- [13] W. H. Meiklejohn and C. P. Bean, “New magnetic anisotropy,” *Physical Review*, vol. 102, no. 5, p. 1413, 1956.
- [14] W. H. Meiklejohn and C. P. Bean, “New magnetic anisotropy,” *Physical Review*, vol. 105, p. 904, Fevereiro 1957.
- [15] M. Takahashi, A. Yanai, S. Taguchi, and T. Suzuki, “A study of exchange anisotropy in Co-CoO evaporated thin films,” *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 19, p. 1093, 1980.

- [16] R. Jungblut, R. Coehoorn, M. Johnson, J. aan de Stegge, and A. Reinders, "Orientational dependence of the exchange biasing in molecular-beam-epitaxy-grown  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$  bilayers," *Journal of Applied Physics*, vol. 75, p. 6659, 1994.
- [17] S. Nicolodi, L. C. C. M. Nagamine, A. D. C. Viegas, J. E. Schmidt, L. G. Pereira, C. Deranlot, F. Petroff, and J. Geshev, "Copper spacer thickness dependence of the exchange bias in  $\text{IrMn}/\text{Cu}/\text{Co}$  ultrathin films," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 316, p. e97, 2007.
- [18] A. E. Berkowitz and J. H. Greiner, "Exchange anisotropy and strain interactions in the  $\text{Ni-NiO}$  system," *Journal of Applied Physics*, vol. 36, p. 3330, 1965.
- [19] T. J. Moran, J. M. Gallego, and I. K. Schuller, "Increased exchange anisotropy due to disorder at permalloy/ $\text{CoO}$  interfaces," *Journal of Applied Physics*, vol. 78, p. 1887, 1995.
- [20] N. March, P. Lambin, and F. Herman, "Cooperative magnetic-properties in single-phase and 2-phase 3d metallic alloys relevant to exchange and magnetocrystalline anisotropy," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 44, p. 1, 1984.
- [21] J. Kouvel, "A ferromagnetic-antiferromagnetic model for copper-manganese and related alloys," *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, vol. 24, p. 795, 1963.
- [22] F. Radu and H. Zabel, *Exchange bias effect of ferro-/antiferromagnetic heterostructures*. Em *Magnetic Heterostructures; Advances and Perspectives in Spinstructures and Spintransport*. Berlin/Heidelberg: Springer-Verlag, editado por H. Zabel, Samuel D. Bader ed., 2008.
- [23] J. Nogués and I. Schuller, "Exchange bias," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 192, p. 203, Julho 1999.
- [24] S. Nicolodi, L. Pereira, J. Schmidt, L. Nagamine, A. Viegas, C. Deranlot, F. Petroff, and J. Geshev, "Angular dependence of the exchange bias and coercivity of  $\text{IrMn}/\text{Co}$  bilayers," *Physica B*, vol. 384, p. 141, 2006.
- [25] J. Geshev, S. Nicolodi, L. G. Pereira, L. C. C. M. Nagamine, J. E. Schmidt, C. Deranlot, F. Petroff, R. L. Rodríguez-Suárez, and A. Azevedo, "Exchange bias through a Cu interlayer in an  $\text{IrMn}/\text{Co}$  system," *Physical Review B*, vol. 75, p. 214402, 2007.
- [26] S. Nicolodi, A. Harres, L. G. Pereira, J. E. Schmidt, M. A. de Sousa, F. Pelegrini, A. D. C. Viegas, C. Deranlot, F. Petroff, and J. Geshev, "Abrupt suppression of the exchange bias across a non-magnetic insulator spacer," *Journal of Applied Physics*, vol. 110, p. 063922, 2011.
- [27] S. Nicolodi, L. G. Pereira, A. Harres, G. M. Azevedo, J. E. Schmidt, I. García-Aguila, N. M. Souza-Neto, C. Deranlot, F. Petroff, and J. Geshev, "Negative rotatable anisotropy in  $\text{irmn}/\text{cr}/\text{co}$  thin films," *Physical Review B*, vol. 85, p. 224438, 2012.
- [28] K. O'Grady, L. Fernandez-Outon, and G. Vallejo-Fernandez, "A new paradigm for exchange bias in polycrystalline thin films," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 322, p. 883, Janeiro 2010.

- [29] A. E. Berkowitz, J.-I. Hong, S. K. McCall, E. Shipton, K. T. Chan, T. Leo, and D. J. Smith, "Refining the exchange anisotropy paradigm: Magnetic and microstructural heterogeneity at the Permalloy-CoO interface," *Physical Review B*, vol. 81, p. 134404, Abril 2010.
- [30] J. Fassbender and J. McCord, "Magnetic patterning by means of ion irradiation and implantation," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 2008.
- [31] J. Fassbender, D. Ravelosona, and Y. Samson, "Tailoring magnetism by light-ion irradiation," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 37, p. R179, Novembro 2004.
- [32] D. Schafer, J. Geshev, S. Nicolodi, L. G. P. and J. E. Schmidt, and P. L. Grande, "Controlled rotation of the exchange-bias direction in IrMn/Cu/Co via ion irradiation," *Applied Physics Letters*, vol. 93, p. 042501, Julho 2008.
- [33] D. Schafer, P. L. Grande, L. G. Pereira, and J. Geshev, "Ion irradiation effects on the exchange bias in IrMn/Co films," *Journal of Applied Physics*, vol. 109, p. 023905, 2011.
- [34] R. Cicheler, L. G. Pereira, T. Dias, J. E. Schmidt, C. Deranlot, F. Petroff, and J. Geshev, "Engineering double-shifted hysteresis loops in Co/IrMn/Cu/Co films," *Applied Physics Letters*, vol. 95, p. 112501, Setembro 2009.
- [35] A. Harres, S. Nicolodi, L. G. Pereira, J. E. Schmidt, A. D. C. Viegas, and J. Geshev, "Effect of short-duration annealing on the exchange bias in IrMn/Co films," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 323, p. 2398, 2011.
- [36] J. Nogués, L. Morellon, C. Leighton, M. R. Ibarra, and I. K. Schuller, "Antiferromagnetic spin flop and exchange bias," *Physical Review B*, vol. 61, p. R6455, 2000.
- [37] J. Nogués, J. Sort, S. S. nach, J. S. M. noz, M. D. Baró, J. F. Bobo, U. Lüders, E. Haanappel, M. R. Fitzsimmons, A. Hoffmann, and J. W. Cai, "Isothermal tuning of exchange bias using pulsed fields," *Applied Physics Letters*, vol. 82, p. 3044, 2003.
- [38] J. Geshev, L. G. Pereira, and V. Skumryev, "Comment on "Exchange bias dependence on interface spin alignment in a Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>/(Ni,Fe)O thin film",," *Physical Review Letters*, vol. 100, p. 039701, 2008.
- [39] R. D. McMichael, M. D. Stiles, P. J. Chen, and J. W. F. Egelhoff, "Ferromagnetic resonance studies of NiO-coupled thin films of Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>," *Physical Review B*, vol. 58, p. 8605, 1998.
- [40] J. Geshev, L. G. Pereira, and J. E. Schmidt, "Rotatable anisotropy and coercivity in exchange-bias bilayers," *Physical Review B*, vol. 66, p. 134432, Junho 2002.
- [41] E. Fulcomer and S. H. Charap, "Thermal fluctuation aftereffect model for some systems with ferromagnetic-antiferromagnetic coupling," *Journal of Applied Physics*, vol. 43, no. 10, p. 4190, 1972.
- [42] A. Harres and J. Geshev, "Athermal training due to exchange and dipolar coupling within a granular model for exchange bias," *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 23, p. 216003, 2011.

- [43] P. Y. Yang, C. Song, B. Fan, F. Zeng, and F. Pan, "The role of rotatable anisotropy in the asymmetric magnetization reversal of exchange biased NiO/Ni bilayers," *Journal of Applied Physics*, vol. 106, p. 013902, 2009.
- [44] J. Nogués, D. Lederman, T. J. Moran, I. K. Schuller, and K. V. Rao, "Large exchange bias and its connection to interface structure in FeF<sub>2</sub>-Fe bilayers," *Applied Physics Letters*, vol. 68, p. 3186, 1996.
- [45] J. X. Shen and M. T. Kief, "Exchange coupling between NiO and NiFe thin films," *Journal of Applied Physics*, vol. 79, p. 5008, 1996.
- [46] D. Han, J. G. Zhu, and J. H. Judy, "NiFe/NiO bilayers with high exchange coupling and low coercive fields," *Journal of Applied Physics*, vol. 81, p. 4996, 1997.
- [47] D. Han, J. G. Zhu, J. H. Judy, and J. M. Sivertsen, "Texture and surface/interface topological effects on the exchange and coercive fields of NiFe/NiO bilayers," *Journal of Applied Physics*, vol. 81, p. 340, 1997.
- [48] H. Uyama, Y. Otani, K. Fukamichi, O. Kitakami, Y. Shimada, and J. Echigoya, "Relation between the exchange-coupling field and the grain size in Cr<sub>70</sub>Al<sub>30</sub>/Fe<sub>19</sub>Ni<sub>81</sub> bilayers," *Journal of the Magnetism Society of Japan*, vol. 21, p. 911, 1997.
- [49] J. van Driel, F. R. de Boer, K.-M. H. Lenssen, and R. Coehoorn, "Exchange biasing by Ir<sub>19</sub>Mn<sub>81</sub> : Dependence on temperature, microstructure and antiferromagnetic layer thickness," *Journal of Applied Physics*, vol. 88, p. 975, Julho 2000.
- [50] G. Vallejo-Fernandez, T. Dimopoulos, M. Ruehrig, and K. O'Grady, "Annealing effect on thermal stability and microstructure in IrMn/Co<sub>60</sub>Fe<sub>20</sub>B<sub>20</sub> bilayers," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 310, p. e786, 2007.
- [51] C. P. Bean, *Structure and Properties of Thin Films*. New York: Wiley, 1959.
- [52] L. Néel *Annals of Physics (N. Y.)*, vol. 2, p. 61, 1967.
- [53] A. P. Malozemoff, "Random-field model of exchange anisotropy at rough ferromagnetic-antiferromagnetic interfaces," *Physical Review B*, vol. 35, no. 7, p. 3679, 1987.
- [54] D. Mauri, H. C. Siegmann, P. S. Baus, and E. Kay, "Simple model for thin magnetic films exchange coupled to an antiferromagnetic substrate," *Journal of Applied Physics*, vol. 62, p. 3047, 1987.
- [55] N. C. Koon, "Calculations of exchange bias in thin films with ferromagnetic/antiferromagnetic interface," *Physical Review Letters*, vol. 78, p. 4865, 1997.
- [56] T. C. Schulthess and W. H. Butler, "Consequences of spin-flop coupling in exchange biased films," *Physical Review Letters*, vol. 81, p. 4516, Novembro 1998.
- [57] T. C. Schulthess and W. H. Butler, "Coupling mechanisms in exchange biased films (invited)," *Journal of Applied Physics*, vol. 85, no. 8, p. 5510, 1999.
- [58] M. D. Stiles and R. D. McMichael, "Model for exchange bias in polycrystalline ferromagnet-antiferromagnet bilayers," *Physical Review B*, vol. 59, p. 3722, 1999.

- [59] U. Nowak, K. D. Usadel, J. Keller, P. Miltényi, B. Beschoten, and G. Güntherodt, "Domain state model for exchange bias. I. Theory," *Physical Review B*, vol. 66, p. 014430, Julho 2002.
- [60] P. Miltényi, M. Gierlings, J. Keller, B. Beschoten, G. Güntherodt, U. Nowak, and K. D. Usadel, "Diluted antiferromagnets in exchange bias: Proof of the domain state model," *Physical Review Letters*, vol. 84, p. 4224, 2000.
- [61] J. Keller, P. Miltényi, B. Beschoten, G. Güntherodt, U. Nowak, and K. D. Usadel, "Domain state model for exchange bias. II. Experiments," *Physical Review B*, vol. 66, p. 014431, Julho 2002.
- [62] E. P. Wohlfarth, "Relations between different modes of acquisition of the remanent magnetization of ferromagnetic particles," *Journal of Applied Physics*, vol. 29, p. 595, 1958.
- [63] P. Bissel, R. Chantrell, G. Tomka, J. Knowles, and M. Sharrock, "Remanent magnetisation and demagnetisation measurements on particulate recording media," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 25, p. 3650, 1989.
- [64] O. Henkel, "Remanenzverhalten und wechselwirkungen in hartmagnetischen teilchenkollektiven," *Phys. Status Solidi*, vol. 7, p. 919, 1964.
- [65] P. Mayo, A. Bradbury, R. Chantrell, P. Kelly, H. Jones, and P. Bissell, "Interaction effects in the remanence curves of CoTi-WPED BaFe systems.," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 25, p. 3881, 1989.
- [66] G. Spratt, P. Bissel, R. Chantrell, and E. P. Wohlfarth, "Static and dynamic experimental studies of particulate recording media," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 75, p. 309, 1988.
- [67] P. Hejda, E. Petrovslj, and T. Zelinka, "The Preisach diagram, Wohlfarth's remanence formula and magnetic interactions," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 30, p. 896, 1994.
- [68] V. Repain, J.-P. Jamet, N. Vernier, M. Bauer, J. Ferré, C. Chappert, J. Gierak, and D. Mailly, "Magnetic interactions in dot arrays with perpendicular anisotropy," *Journal of Applied Physics*, vol. 95, p. 2614, 2004.
- [69] Q. Chen, B. M. Ma, B. Lu, M. Q. Huang, and D. E. Laughlin, "A study on the exchange coupling of NdFeB-type nanocomposites using Henkel plots," *Journal of Applied Physics*, vol. 85, p. 5917, 1999.
- [70] H. wei Zhang, C. bing Rong, X. bo Du, J. Zhang, S. ying Zhang, and B. gen Shen, "Investigation on intergrain exchange coupling of nanocrystalline permanent magnets by henkel plot," *Applied Physics Letters*, vol. 82, p. 4098, 2003.
- [71] J. Geshev and M. Mikhov, "Remanence curves for a disordered system of three- and four-axial fine particles. henkel-type plots," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 104, p. 1569, 1992.
- [72] J. García-Otero, M. Porto, and J. Rivas, "Henkel plots of single-domain ferromagnetic particles," *Journal of Applied Physics*, vol. 87, p. 7376, 2000.

- [73] M. Fearon, R. Chantrell, and E. P. Wohlfarth, "A theoretical study of interaction effects on the remanence curves of particulate dispersions," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 86, p. 197, 1990.
- [74] A. Stancu, L. Stoleriu, and M. Cerchez, "Micromagnetic evaluation of statistical and mean-field interactions in particulate ferromagnetic media," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 225, p. 411, 2001.
- [75] V. Basso and G. Bertotti, "Description of magnetic interactions and Henkel plots by the Preisach hysteresis model," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 30, p. 64, 1994.
- [76] P. E. Kelly, K. O'Grady, P. I. Mayo, and R. W. Chantrell, "Switching mechanisms in cobalt-phosphorus thin films," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 25, p. 3881, 1989.
- [77] J. M. M. Huerta, J. D. L. T. Medina, L. Piraux, and A. Encinas, "Self consistent measurement and removal of the dipolar interaction field in magnetic particle assemblies and the determination of their intrinsic switching field distribution," *Journal of Applied Physics*, vol. 111, p. 083914, 2012.
- [78] D. M. Mattox, *Handbook of Physical Vapor Deposition (PVD) Processing*. Westwood, New Jersey, USA: Noyes publications, 1998.
- [79] P. J. Flanders, "An alternating-gradient magnetometer," *Journal of Applied Physics*, vol. 63, p. 3940, 1988.
- [80] P. Pureur, *Supercondutividade e Materiais Supercondutores - Parte I*. Porto Alegre: Instituto de Física - UFRGS, 2004.
- [81] A. Y. Takeuchi, *Técnicas de Medidas Magnéticas*. São Paulo: Editora Livraria da Física, 2010.
- [82] A. Harres and J. Geshev, "A polycrystalline model for magnetic exchange bias," *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 24, p. 326004, 2012.
- [83] A. G. Biternas, U. Nowak, and R. W. Chantrell, "Training effect of exchange-bias bilayers within the domain state model," *Physical Review B*, vol. 80, p. 134419, 2009.
- [84] L. Fernandez-Outon, G. Vallejo-Fernandez, S. Manzoor, and K. O'Grady, "Thermal instabilities in exchange biased materials," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 303, p. 296, 2006.
- [85] T. L. Gilbert, "Lagrangian formulation of the gyromagnetic equation of the magnetization field," *Physical Review*, vol. 100, p. 1243, 1955.
- [86] T. L. Gilbert and J. M. Kelly, "Anomalous rotational damping in ferromagnetic sheets," *Proceedings of the Pittsburgh Conference on Magnetism and Magnetic Materials*, p. 253, 1955.
- [87] B. G. Levinea, J. E. Stoneb, and A. Kohlmeyer, "Fast analysis of molecular dynamics trajectories with graphics processing units—radial distribution function histogramming," *Journal of Computational Physics*, vol. 230, p. 3556, 2011.

- [88] S. Li, B. Livshitz, and V. Lomakin, "Graphics processing unit accelerated  $O(N)$  micro-magnetic solver," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 46, p. 2373, 2010.
- [89] R. Chang, S. Li, M. V. Lubarda, B. Livshitz, and V. Lomakin, "Fastmag: Fast micromagnetic simulator for complex magnetic structures (invited)," *Journal of Applied Physics*, vol. 109, p. 07D358, 2011.
- [90] D. B. Kirk and H. W. W., *Programming Massively Parallel Processors: A Hands-on Approach*. Burlington: Elsevier Inc., 2010.
- [91] J. Geshev, A. D. C. Viegas, and J. E. Schmidt, "Negative remanent magnetization of fine particles with competing cubic and uniaxial anisotropies," *Journal of Applied Physics*, vol. 84, p. 1488, 1998.
- [92] N. Domingo, D. Fiorani, A. M. Testa, C. Binns, S. Baker, and J. Tejada, "Exchange bias in a superspin glass system of Co particles in Mn matrix," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 41, p. 134009, 2008.
- [93] N. Lakshmi, H. Bhargava, O. P. Suwalka, K. Venugopalan, V. Sebastian, V. R. Reddy, and A. Gupta, "Magnetic properties resulting from core-shell interactions in nanosized  $\text{Ni}_{0.25}\text{Co}_{0.25}\text{Zn}_{0.5}\text{Fe}_2\text{O}_4$ ," *Physical Review B*, vol. 80, p. 174425, 2009.
- [94] Y. Zhang and D. L. Atherton, "Levels of demagnetized state," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 31, p. 2233, 1995.
- [95] X. W. Wu and C. L. Chien, "Exchange coupling in ferromagnet/antiferromagnet bilayers with comparable  $t_c$  and  $t_n$ ," *Physical Review Letters*, vol. 81, p. 2795, 1998.
- [96] J. W. Cai, K. Liu, and C. L. Chien, "Exchange coupling in the paramagnetic state," *Physical Review B*, vol. 60, p. 72, 1999.
- [97] A. E. Berkowitz, G. F. Rodriguez, J. I. Hong, K. An, T. Hyeon, N. Agarwal, D. J. Smith, and E. E. Fullerton, "Antiferromagnetic MnO nanoparticles with ferrimagnetic  $\text{Mn}_3\text{O}_4$  shells: Doubly inverted core-shell system," *Physical Review B*, vol. 77, p. 024403, 2008.
- [98] K. D. Sossmeier, D. Schafer, A. P. O. Bastos, J. E. Schmidt, and J. Geshev, "Tailoring coercivity of unbiased exchange-coupled ferromagnet/antiferromagnet bilayers," *Journal of Applied Physics*, vol. 112, p. 013904, 2012.
- [99] J. F. Ziegler, J. P. Biersack, and U. Littmark, "Srim 2012 code," <http://www.srim.org>.
- [100] J. Geshev, T. Dias, S. Nicolodi, R. Cichelero, A. Harres, J. J. S. A. na, L. G. Pereira, J. E. Schmidt, C. Deranlot, and F. Petroff, "Role of the uncompensated interface spins in polycrystalline exchange-biased systems," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 44, p. in press, 2011.