

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

# **Modificação da Anisotropia Magnética através de Feixes de Íons<sup>1</sup>**

Deise Schäfer

Dissertação realizada sob orientação do Prof. Dr. Pedro Luis Grande e co-orientação do Prof. Dr. Luis Gustavo Pereira, apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Física da UFRGS, como requisito parcial para a obtenção do título de Mestre em Física

Porto Alegre  
Agosto de 2010

---

<sup>1</sup>Trabalho parcialmente financiado pelo Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico  
CNPq

# *Agradecimentos*

*Ao Dr. Pedro Luis Grande, pela orientação, apoio, estímulo, pela oportunidade de realizar este trabalho e por tudo que aprendi no decorrer deste.*

*Ao Dr. Luis Gustavo Pereira pela coorientação, discussões, teorias e guloseimas durante as reuniões.*

*Ao Dr. Julian Penkov Geshev pelas idéias e discussões fundamentais para este trabalho (considero um coorientador também, só não o é no "papel"!).*

*Aos colegas do LAM, pela amizade e pelas conversas durante os longos períodos de medidas no AGFM.*

*À Sabrina Nicolodi de Oliveira Viegas pelas amostras tratadas termicamente, discussões, conversas e amizade, desde os tempos na iniciação científica.*

*Ao C. Deranlot e F. Petroff da Unité Mixte de Physique CNR/Thales pelas amostras.*

*Ao Dr. Henri Budinov e ao PhD Kevin O'Grady pelas sugestões e discussões que foram essenciais para este trabalho.*

*Ao pessoal do implantador, Miro, Paulo Borba e Agostinho, sempre dispostos a ajudar nas irradiações das amostras, fazendo o possível e o impossível quando acontecia algum imprevisto.*

*A todos meus amigos e amigas.*

*À minha família e à do Dani pelo amor, carinho, compreensão, incentivo e apoio.*

*Ao Dani pelo amor e apoio naqueles momentos mais difíceis (e nos não difíceis também!).*

# *Resumo*

São investigadas as modificações na anisotropia magnética de exchange bias (EB) de filmes finos de IrMn/Cu/Co induzidas pela irradiação de íons. Os filmes são constituídos de uma camada antiferromagnética (AF) de IrMn acoplada a uma camada ferromagnética de cobalto (Co), separadas por um espaçador não-magnético de cobre (Cu). Irradiações com íons de  $\text{He}^+$  a baixa energia foram feitas para diferentes fluências e correntes, na presença de um campo magnético de aproximadamente 5 kOe. Amostras com e sem espaçador de Cu foram irradiadas e vários feixes a diferentes energias e fluências foram empregados, de modo a compreender os processos físicos responsáveis pelas modificações observadas nas propriedades magnéticas.

Uma completa reorientação do EB na direção do campo aplicado durante as irradiações é observada, assim como é obtido um aumento do campo de exchange bias ( $H_{EB}$ ) com a fluência. O aumento do  $H_{EB}$  induzido pela irradiação, é maior que o obtido via tratamento térmico. Um aumento maior e mais rápido do  $H_{EB}$  é obtido para as amostras sem espaçador de Cu.

O papel da excitação eletrônica e dos defeitos causados pela irradiação iônica é investigado usando íons de  $\text{H}^+$  e  $\text{Ne}^+$  à energias escolhidas. Uma dependência das modificações provocadas no EB com os defeitos causados pelos íons é bem estabelecida. Os resultados observados são explicados através de um modelo fenomenológico que leva em conta as modificações induzidas na estrutura granular do material AF pela irradiação iônica.

# *Abstract*

The modifications of the magnetic anisotropy (exchange bias, EB) induced by ion irradiation in IrMn/Cu/Co thin films are investigated. The films consist of an antiferromagnetic (AF) layer (IrMn), coupled to a ferromagnetic one (Co) separated by a non-magnetic spacer (Cu). Low energy He<sup>+</sup> irradiation has been performed for different ion fluencies and currents, in an external magnetic field of about 5 kOe. In addition, two different samples have been irradiated (with and without Cu spacer) and ions of other elements, with different energies, have also been used in order to understand the underlying physical processes responsible for the observed modifications of the magnetic properties.

A complete reorientation of the EB direction towards that of the applied field during irradiation is observed. Moreover, an increase of the EB field  $H_{EB}$  with the ion fluence is obtained. The enhancement of  $H_{EB}$  due to the ion irradiation, is larger than that obtained by standard thermal annealing procedure. A faster and larger increase of the  $H_{EB}$  is observed for the samples without Cu spacer.

The role of ion-induced damage and electronic excitation is investigated by using H<sup>+</sup> and Ne<sup>+</sup> ions at selected energies. The dependence of the EB modifications with the ion damage is well established. The observed findings are then explained through a phenomenological model which takes into account the modification of AF granular structure induced by the ion irradiation.

# *Sumário*

<b>Introdução</b>	<b>1</b>
<b>1 Anisotropia Magnética e <i>Exchange Bias</i></b>	<b>5</b>
1.1 Anisotropia de forma . . . . .	5
1.2 Anisotropia Magnetocristalina . . . . .	7
1.3 <i>Exchange Bias (polarização por intercâmbio)</i> . . . . .	9
1.3.1 Modelos teóricos . . . . .	13
<b>2 Irradiação Iônica</b>	<b>17</b>
2.1 Processos de perda de energia na matéria . . . . .	17
2.1.1 Poder de freamento nuclear . . . . .	19
2.1.2 Poder de freamento eletrônico . . . . .	21
2.1.3 Efeitos provocados na matéria . . . . .	22
<b>3 Procedimento Experimental</b>	<b>25</b>
3.1 Amostras . . . . .	25
3.1.1 Confeção das amostras . . . . .	26
3.1.2 Preparação das amostras para irradiações, tratamentos térmicos e caracterização magnética . . . . .	26
3.2 Irradiação de íons . . . . .	27
3.2.1 Aparato experimental . . . . .	27
3.2.2 Simulações . . . . .	28
3.3 Tratamentos térmicos . . . . .	30

3.4	Caracterização magnética . . . . .	31
<b>4</b>	<b>Resultados</b>	<b>34</b>
4.1	Caracterização magnética . . . . .	34
4.1.1	Caracterização magnética da amostra com espaçador de cobre . . . . .	34
4.1.2	Caracterização magnética da amostra sem espaçador . . . . .	40
4.1.3	Discussões . . . . .	47
<b>5</b>	<b>Conclusões</b>	<b>51</b>
	<b>Referências Bibliográficas</b>	<b>53</b>
	<b>Apêndice</b>	<b>58</b>
	Figuras adicionais - Variação do $H_{EB}$ com a corrente (amostra com Cu) . . . . .	58
	Figuras adicionais - Curvas de histerese . . . . .	59
	Figuras adicionais - Variação angular $H_{EB}$ . . . . .	63

# *Introdução*

O estudo de materiais magnéticos sempre foi uma importante ferramenta para impulsionar o desenvolvimento tecnológico. Em especial, nas últimas décadas, a possibilidade de fabricar e analisar materiais na escala nanométrica trouxe à tona uma gama de novas propriedades e tecnologias decorrentes, que também propiciam um amplo campo de investigações teóricas para explicar tais fenômenos.

Materiais magnéticos nanoestruturados têm recebido muita atenção nos últimos anos. Nesses sistemas, devido às suas dimensões físicas serem da ordem da escala atômica, aparecem novas propriedades interessantes que levam, por exemplo, à possibilidade da construção de mídias de armazenamento de alta densidade.

Um dos fenômenos que propiciou uma revolução na informática, descoberto nos anos 80 por Baibich e colaboradores,<sup>(1)</sup> foi a magnetoresistência gigante (GMR - giant magnetoresistance), responsável pelo funcionamento dos cabeçotes de leitura-gravação de discos rígidos. A descoberta do fenômeno rendeu o prêmio Nobel de Física de 2007 e denota a importância desta área de estudo.

A magnetoresistência gigante é um efeito que ocorre quando as configurações magnéticas relativas entre camadas adjacentes de uma multicamada, sofrem alterações. Quando os momentos destas camadas estão orientados em configurações paralelas ou opostas, temos uma grande diferença na resistência elétrica do sistema (o que propicia a construção de sensores magnéticos de grande sensibilidade).

Os dispositivos chamados de *válvulas de spin* são, de forma resumida, compostos de três camadas: duas ferromagnéticas separadas por um espaçador não magnético. Para mudar as configurações magnéticas relativas, uma destas camadas deve responder mais "facilmente" ao campo externo (camada "livre"). O mecanismo capaz de "prender" magneticamente a segunda camada é relacionado ao chamado *exchange bias*, e é conhecido desde a década de 50, quando descoberto por Meiklejohn e Bean<sup>(2)</sup>.

Exchange bias é um fenômeno físico decorrente da interação entre interfaces ferromagnéticas e antiferromagnéticas em contato atômico, que provoca diversas mudanças nas propriedades magnéticas dos materiais. Desde sua descoberta vem sendo extensivamente estudado e até os

dias de hoje, os mecanismos físicos por trás deste fenômeno ainda não são bem entendidos.

Por outro lado, o uso de íons acelerados tem se tornado fundamental para o desenvolvimento da tecnologia e da ciência. Tanto as análises baseadas em feixes iônicos propiciam uma melhor compreensão das propriedades físicas dos materiais, como também a implantação/irradiação de íons na matéria é capaz de modificá-la levando a novos sistemas.

A modificação das propriedades magnéticas através da implantação/irradiação com íons é uma recente área de pesquisa. O primeiro trabalho nesta área foi feito por Chappert e colaboradores<sup>(3)</sup> em 1998, e desde então muitos trabalhos vêm sendo desenvolvidos na área. Nesta publicação pioneira, os autores relatam modificações das propriedades magnéticas através da irradiação iônica com máscaras: cada região irradiada/não irradiada de multicamadas Co/Pt possuía propriedades diferentes (magnetização fora do plano do filme) e sem alteração da rugosidade e propriedades óticas da superfície, o que é importante para aplicações tecnológicas em dispositivos magneto-óticos.

Desde o trabalho de Chappert e colaboradores uma série de modificações nas propriedades magnéticas foram observadas através da irradiação/implantação iônica. A implantação iônica é capaz de modificar a temperatura de Curie e a magnetização de saturação<sup>(4)</sup> e recentemente até iniciar exchange bias em sistemas através da implantação de oxigênio em matriz de cobalto<sup>(5, 6)</sup>.

A irradiação iônica é mais amplamente usada para modificação das propriedades de materiais magnéticos que a implantação. Por exemplo, ordenamento de fases magnéticas é obtido com irradiação de íons leves sem aquecimento macroscópico das amostras<sup>(7)</sup>, assim como um variante químico pode ser favorecido pela irradiação, se um ordenamento de curto alcance é presente<sup>(8)</sup>. Íons de energia mais elevada também causam ordenamento de fases, mas aí a principal causa é o aquecimento macroscópico<sup>(9, 10)</sup>. O ordenamento de fases sem aquecimento macroscópico possibilita a construção de novos sistemas onde há materiais que poderiam se difundir perante um tratamento térmico tradicional.

O desordenamento de fases magnéticas é obtido com irradiação de íons mais pesados. Por exemplo, Hellwig e colaboradores<sup>(11)</sup> irradiaram com íons de nitrogênio uma liga de CrPt<sub>3</sub>, preparada em uma fase ordenada, e observaram que a cristalinidade da amostra permaneceu inalterada ao passo que as posições dos átomos de Pt e Cr foram trocadas randomicamente, desordenando a fase magnética.

Um efeito que ocorre também em sistemas magnéticos irradiados com íons é a formação de camadas magneticamente "mortas". Este efeito é atribuído à mistura nas interfaces de camadas sementes e/ou protetoras com o material ferromagnético. Na literatura é estudado este efeito



de mistura do material ferromagnético com Ta, formando camadas magneticamente mortas até atingir total amorfização<sup>(4, 12)</sup>.

Além de favorecer o ordenamento de fases magnéticas em alguns casos e a desordem em outros, a irradiação com íons possibilita a criação de novas fases. Cheng e colaboradores<sup>(13)</sup> irradiaram filmes de Co-Pt com íons de argônio a baixa energia e observaram a formação de uma nova fase magnética (devido aos deslocamentos dos átomos na rede) onde o momento magnético do Co aumentou em 30% para irradiação sem campo e mais de 50% para irradiação com campo magnético de 500 Oe aplicado durante o procedimento.

A irradiação de íons em materiais magnéticos é capaz também de modificar a interação de troca entre os materiais. Demokritov<sup>(14)</sup> e colaboradores estudaram a interação de troca de sanduíches de Fe-Cr-Fe submetidos à irradiação com íons de hélio. Os autores observaram relação da mudança de acoplamento (ferromagnético para antiferromagnético) com a fluência da irradiação.

Outros trabalhos fazem o uso da irradiação de íons em sistemas que apresentam exchange bias, como válvulas de spin. No caso destas últimas, pode-se, através da irradiação com íons de hélio, orientar a camada presa, com campo magnético durante o procedimento, e aumentar o efeito de exchange bias sem alterar a magnetoresistência<sup>(15)</sup> (em outros trabalhos observa-se redução deste último efeito<sup>(16, 17)</sup>).

O exchange bias pode ser aumentado e mudado de direção através da irradiação com íons leves na presença de campo magnético<sup>(18, 19)</sup>. Porém, há trabalhos que mostram também redução do exchange bias e até supressão do efeito<sup>(20)</sup>. Os mecanismos que causariam a redução e aumento estariam relacionados à mistura interfacial e criação de defeitos no material antiferromagnético, respectivamente<sup>(21, 22)</sup>. A irradiação com íons mais pesados também é investigada em outros sistemas e provoca efeitos diversos daquelas realizadas com íons leves, atribuídos à diferença de dissipação de energias dos íons no material<sup>(23, 24)</sup>. Além disso, consegue-se com a irradiação iônica em sistemas de duas camadas ferromagnéticas acopladas a uma antiferromagnética, modificar diferentemente as propriedades de cada camada<sup>(25)</sup>.

Neste trabalho estudamos primeiramente a influência da irradiação iônica de íons leves no sistema IrMn/Cu/Co, que apresenta exchange bias. É analisada a relação das modificações provocadas com a fluência e também com a corrente usada durante a irradiação (parâmetro não analisado até então na literatura). Com base nesta série de experimentos, são investigados os fatores que poderiam estar causando as modificações observadas. Com auxílio de simulações numéricas de interação de íons com a matéria e dados de irradiações feitas com outros íons, são investigados como os fenômenos físicos que ocorrem durante a irradiação afetam as proprieda-

des magnéticas do sistema estudado.

Esta dissertação é organizada em dois capítulos iniciais discorrendo sobre os mecanismos físicos básicos da anisotropia magnética e irradiação iônica, respectivamente, seguido do procedimento experimental adotado neste trabalho. A seguir são mostrados e discutidos os resultados obtidos e no final são apresentadas as conclusões e perspectivas de continuidade.

# ***1 Anisotropia Magnética e Exchange Bias***

A anisotropia magnética é uma propriedade de certos materiais que induz determinadas direções preferenciais para a magnetização espontânea. Deste fenômeno decorre a existência de direções de fácil e difícil magnetização, que são chamadas respectivamente de direções, ou eixos, "fáceis" e "duros".

Da anisotropia decorrem comportamentos diversos que levam a desafios do ponto de vista básico e novas aplicações do ponto de vista tecnológico. A origem deste fenômeno vem de diversos fatores como forma do material, estrutura cristalina, efeitos de superfície, agentes físicos externos (stress, tratamentos térmicos, irradiação iônica), entre outros.

Neste trabalho, estudamos os efeitos gerados na anisotropia do sistema IrMn/Co pela irradiação com íons e pelo tratamento térmico. Nas próximas seções discorreremos brevemente sobre algumas formas de anisotropia magnética, as quais serão relevantes nas discussões pertinentes ao sistema estudado.

## **1.1 Anisotropia de forma**

A anisotropia de forma surge em materiais que apresentam uma de suas dimensões maior em relação às outras. Esta assimetria dá origem ao que chamamos de anisotropia por campo desmagnetizante  $H_d$  que pode ser entendido se idealizarmos um material magnetizado, como mostra a figura 1.1. Nesta última podemos ver que é formada uma configuração de pólos na superfície, que geram um campo magnético na direção oposta à da magnetização, chamado de campo desmagnetizante, que é dado por:

$$\vec{H}_d = N_d \vec{M}, \quad (1.1)$$

onde  $N_d$  é o fator desmagnetizante que depende da direção em que o material é magnetizado.

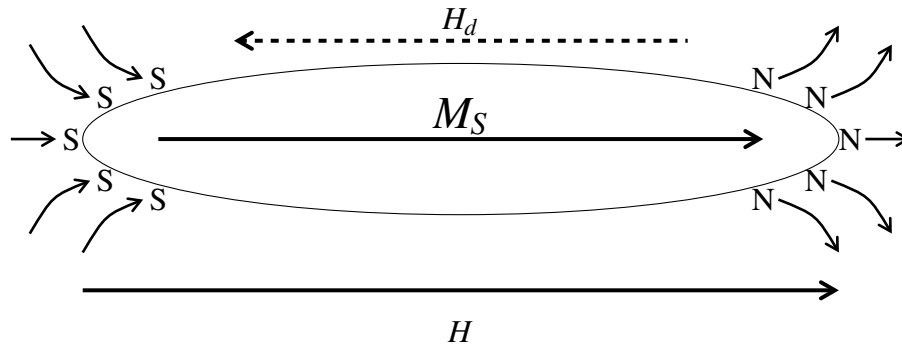


Figura 1.1: Figura esquemática mostrando o campo desmagnetizante  $\vec{H}_d$  na direção oposta à magnetização de saturação  $\vec{M}_S$  devido à aplicação do campo externo  $\vec{H}$ .

Se o campo aplicado for na direção perpendicular à mostrada na figura 1.1, teremos uma maior densidade de pólos na superfície. Assim, o campo desmagnetizante será maior, e portanto será mais difícil magnetizar o material naquela direção. Analogamente, no caso de filmes finos, a magnetização se dá mais facilmente no plano do filme. Na figura 1.2 podemos ver o efeito do campo desmagnetizante em uma curva de histerese.

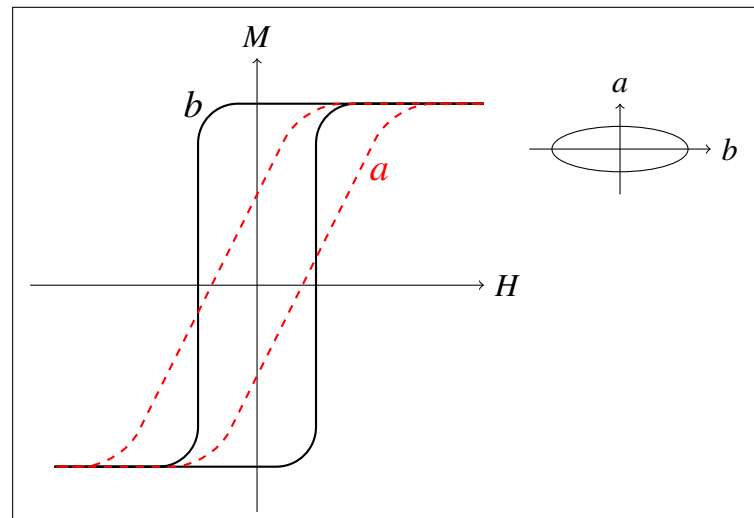


Figura 1.2: Manifestação do campo desmagnetizante. A curva de histerese tracejada é obtida com o campo magnético aplicado na direção  $a$ , e a curva contínua, para o campo aplicado na direção  $b$ .

No nosso trabalho, estudamos filmes ultrafinos (com espessuras de alguns nanômetros) onde uma das dimensões (espessura) pode ser desprezada comparada às outras. Para este tipo de sistema a energia de anisotropia de forma pode ser escrita como:

$$E_d = \frac{1}{2} H_d M_s \cos^2 \delta, \quad (1.2)$$

onde  $H_d$  é o módulo do campo desmagnetizante,  $M_S$  o módulo da magnetização de saturação do material e  $\delta$  é o ângulo entre a magnetização  $\vec{M}_S$  e a normal ao filme.

## 1.2 Anisotropia Magnetocristalina

A anisotropia magnetocristalina é uma propriedade intrínseca do material, devida principalmente ao acoplamento spin-órbita e que está relacionada com as simetrias da rede cristalina do material.

Quando temos um material na forma de um cristal, sabemos que a órbita eletrônica nos átomos, ou íons, que constituem esta rede é fortemente acoplada ao campo cristalino do material<sup>(26, 27)</sup>. Quando um campo magnético é aplicado no mesmo, o momento magnético atômico tende a se alinhar na direção do campo aplicado. Porém, este último está acoplado ao momento angular orbital (acoplamento spin-órbita), que por sua vez está acoplado ao campo cristalino. Assim, dependendo da estrutura cristalina do material, a magnetização se dará mais facilmente em algumas direções que outras.

Consideremos primeiramente materiais com estrutura cristalina hexagonal como, por exemplo, cobalto e ferrita de bário. Para cristais hexagonais é comum expressar a energia de anisotropia em termos de uma série de senos quadrados:

$$E_h = K_1^h \sin^2(\phi_M) + K_2^h \sin^4(\phi_M) + \dots, \quad (1.3)$$

onde  $\phi_M$  é o ângulo entre  $M_s$  e  $c$ , e  $K_1^h$  e  $K_2^h$  são as constantes de anisotropia de primeira e segunda ordem, respectivamente, e  $c$  é o eixo de simetria axial de um cristal hexagonal (ilustrado na figura 1.3). Como geralmente  $K_2^h$  é muito menor que  $K_1^h$ , o primeiro termo acaba sendo suficiente para expressar a energia do sistema. Quando isto não acontece, podemos ter definidos diferentes situações de eixos de fácil magnetização.

Quando  $K_1^h$  e  $K_2^h$  são ambas positivas, a energia é mínima para  $\phi_M = 0^\circ$  e portanto temos definida uma direção de magnetização fácil ao longo do eixo  $c$ . Este tipo de cristal chamamos de *uniaxial*.

Quando  $K_1^h$  e  $K_2^h$  são ambas negativas, a energia é mínima para  $\phi_M = 90^\circ$  e portanto temos definido um *plano* de fácil magnetização, que é o plano basal do material hexagonal.

Quando  $K_1^h$  é positiva e  $K_2^h$  é negativa, o mínimo de energia do sistema fica em um ângulo entre  $0^\circ$  e  $90^\circ$  e neste caso temos um *cone* fácil, onde a magnetização se dá mais facilmente.

A figura 1.3 mostra curvas de magnetização para um monocristal de cobalto em temperatura ambiente. A direção de fácil magnetização é a direção  $c$  e todas as outras direções no plano basal são de difícil magnetização. Para Co hcp a temperatura ambiente  $K_1^h = 4,5 \times 10^5 \text{ J/m}^3$  ( $4,5 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ ) e  $K_2^h = 1,5 \times 10^5 \text{ J/m}^3$  ( $1,5 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ )<sup>(27)</sup>.

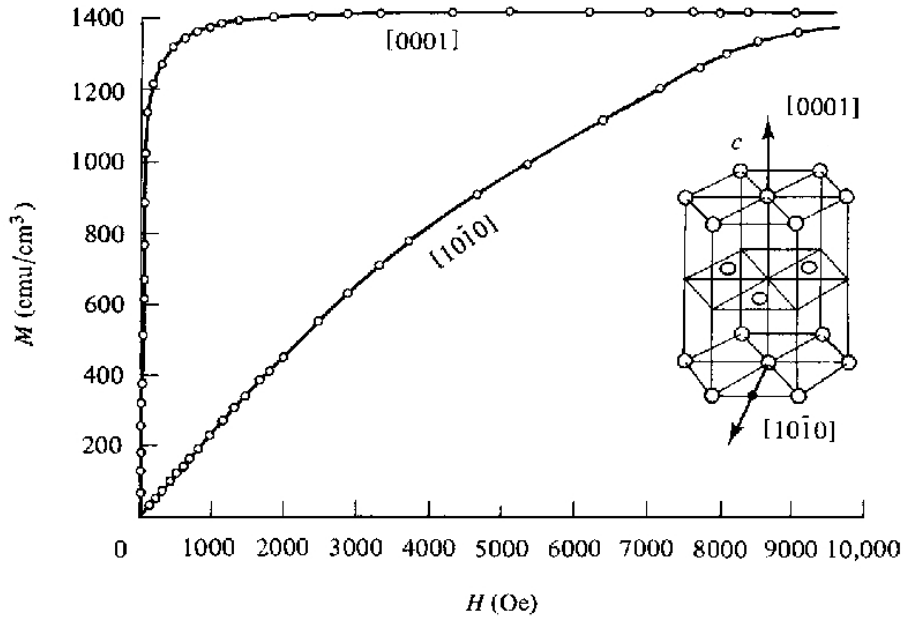


Figura 1.3: Curvas de magnetização para um monocristal de Co medida ao longo dos eixos fácil e duro<sup>(26)</sup> -  $[0001]$  e  $[10\bar{1}0]$ , respectivamente.

Outra forma de anisotropia magnetocristalina relevante é a cúbica, que pode ser observada em cristais de ferro e níquel, por exemplo. Neste caso a energia de anisotropia é expressa em termos de série de potências dos cossenos diretores de  $M_S$  com relação aos eixos cristalinos como mostra a figura 1.4:

$$E_c = K_1^c (\alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2 + \alpha_3^2 \alpha_1^2) + K_2^c (\alpha_1^2 \alpha_2^2 \alpha_3^2) + \dots, \quad (1.4)$$

onde  $\alpha_1 = \sin \vartheta_M \cos \varphi_M$ ,  $\alpha_2 = \sin \vartheta_M \sin \varphi_M$  e  $\alpha_3 = \cos \vartheta_M$ .

Analisando a expressão 1.4 podemos verificar quais são as direções fáceis e difíceis. Nos casos em que as constantes de primeira e segunda ordem são importantes, a energia de anisotropia dependerá dos valores assumidos por estas constantes. Se considerarmos por simplicidade  $K_2^c$  desprezível (o que é factível em muitos casos), a energia de anisotropia dependerá somente de  $K_1^c$ . Neste caso, para  $K_1^c$  positivo, pode-se verificar que  $E_{100} > E_{110} > E_{111}$  e portanto as direções  $\langle 100 \rangle$  são de fácil e  $\langle 111 \rangle$  de difícil magnetização. No caso  $K_1$  menor que zero,  $\langle 111 \rangle$

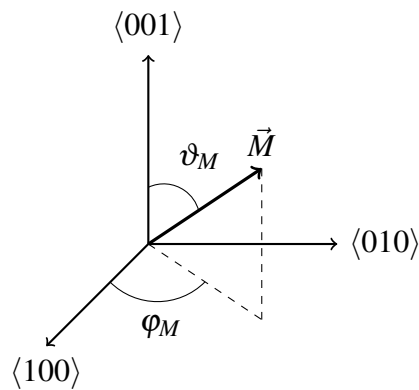


Figura 1.4: Ângulos da magnetização em relação aos eixos cristalinamente de um sistema cúbico.

são as direções fácil e  $\langle 100 \rangle$  difícil magnetização.

### 1.3 *Exchange Bias (polarização por intercâmbio)*

Outro tipo de anisotropia cuja discussão é fundamental para este trabalho é a anisotropia de *exchange* (polarização por intercâmbio) (EB) também chamada de *unisentidal*<sup>1</sup>. Este tipo de anisotropia foi observado primeiramente em 1956 por Meiklejohn e Bean,<sup>(2)</sup> que estudavam partículas de cobalto recobertas por óxido de cobalto. Desde então sistemas que apresentam este tipo de anisotropia são objetos de estudo devido aos potenciais tecnológicos que decorrem e dos desafios teóricos encontrados até os dias de hoje.

Uma das principais manifestações do fenômeno de *exchange bias* é o deslocamento em campo no ciclo de histerese do material que é chamado campo de *exchange bias* (mostrado na figura 1.5). A explicação para este fenômeno é a interação de troca entre interfaces de materiais ferromagnético (FM) e antiferromagnético (AF) em contato atômico. Quando o material AF tem anisotropia suficientemente forte, os momentos AF na interface FM-AF agem como uma espécie de campo interno. A energia de anisotropia magnética neste caso é expressa da seguinte forma:

$$E_{ex} = J_{ex} \cos \beta, \quad (1.5)$$

onde  $J_{ex}$  é a constante de interação de troca e  $\beta$  é o ângulo entre os momentos FM e AF na interface.

<sup>1</sup>Na literatura a anisotropia de *exchange bias* é usualmente chamada de *unidirecional*, mas formalmente o mais correto é chamá-la de *unisentidal*, pois não se tem somente uma direção definida para o campo de anisotropia, mas sim um único sentido definido para este último.

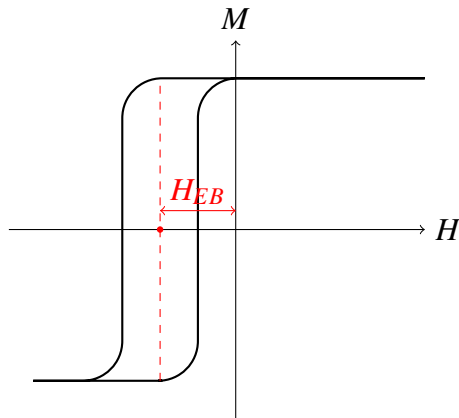


Figura 1.5: Curva de histerese mostrando o campo de *exchange bias*,  $H_{EB}$

Podemos ver mais claramente como ocorre o deslocamento em campo no ciclo de histerese de um material, considerando um modelo intuitivo como já discutido por Nogués e Schuller<sup>(28)</sup> e colaboradores, baseado em trabalhos anteriores<sup>(29, 30, 31)</sup>. A figura 1.6 ilustra este modelo intuitivo.

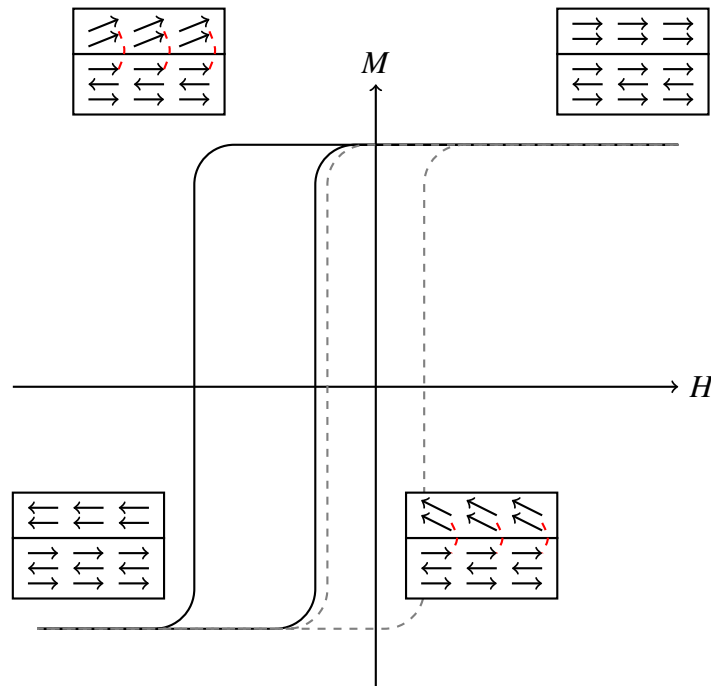


Figura 1.6: Figura esquemática de um ciclo de histerese de um material que apresenta o fenômeno de *exchange bias* (linha contínua em preto) comparada a uma amostra que não apresenta (linha tracejada em cinza).

Na figura 1.6(a) temos a magnetização saturada na mesma direção dos momentos AF na interface FM-AF. A seguir o campo  $H$  começa a reduzir em magnitude até reverter sua direção. Apesar disso, a magnetização ainda não reverte devido ao acoplamento dos momentos AF com



o material FM (por simplicidade, assumido como isotrópico) que "seguram" a magnetização na direção oposta como é ilustrado em 1.6(b). Assim que o campo magnético se torna suficiente para vencer a interação FM-AF os momentos FM giram na direção do campo do campo magnético aplicado até a saturação conforme 1.6(c). Uma vez que a magnetização atinge seu valor de saturação, reduzindo-se o campo magnético em intensidade, porém como é mostrado em 1.6(d) antes mesmo de  $H$  reverter sua direção, os momentos AF "puxam" os momentos FM na direção oposta. O campo é então revertido até a magnetização atingir seu valor de saturação.

Aqui vemos claramente a principal manifestação do EB, que é o deslocamento da curva de histerese em campo. Porém, também são observadas outras modificações nas propriedades magnéticas como aumento da coercividade<sup>(32, 33, 34)</sup> (se comparado com um sistema sem a interação entre interfaces), efeito de treinamento que é a dependência de  $H_{EB}$  com o número de medidas feitas,  $n$ . O que se observa é uma redução de  $H_{EB}$  com o aumento de  $n$ , que pode ser devido a equilíbrio metaestável na interface<sup>(35, 36)</sup>. Outra característica de sistemas que apresentam *exchange bias* é a existência de uma temperatura de bloqueio ( $T_B$ ) acima da qual o fenômeno desaparece. Em alguns sistemas, esta temperatura é muito próxima à temperatura de Néel do material AF ( $T_N$ ) mas em outros pode ser consideravelmente menor<sup>(28, 37, 38)</sup>.

Alguns sistemas apresentam EB naturalmente sem qualquer procedimento adicional. Em muitos casos, para aumentar o EB, é feito um tratamento térmico, como ilustrado na figura 1.7. Consiste em aquecer o sistema acima da  $T_N$  do material AF mas abaixo da temperatura de Curie do material FM ( $T_C$ ). Aplica-se um campo magnético em uma determinada direção e vai se resfriando o sistema. Assim os momentos FM orientam os momentos AF na interface quando chega-se em  $T_N$ .

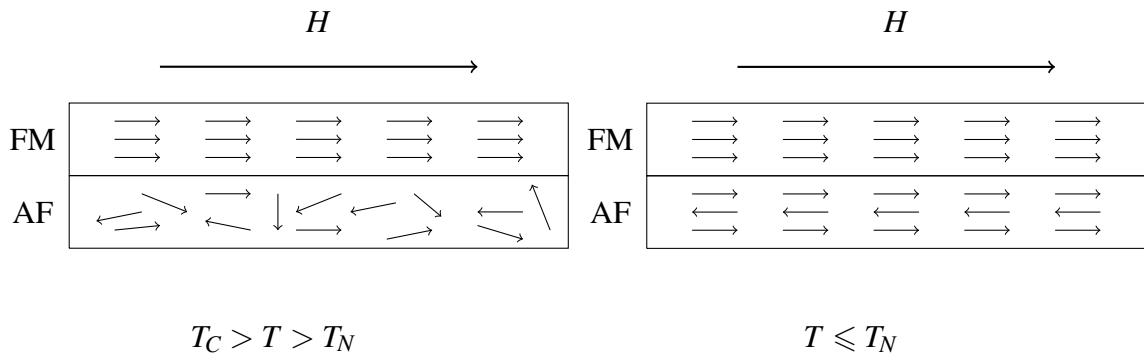


Figura 1.7: Ilustração do procedimento de tratamento térmico.

Nas figuras acima, representamos interfaces perfeitamente planas. Na realidade a estrutura da interface deve ser um fator essencial para entender o fenômenos de EB. Quanto ao alinhamento dos momentos na interface, podemos ter basicamente dois tipos de interfaces:

compensada e não-compensada. A interface não-compensada se aproxima de uma interface ideal, onde todos os momentos AF estão alinhados na mesma direção, ao passo que na do tipo compensada, os momentos AF estão orientados em direções opostas na interface como mostra a figura 1.8, gerando uma contribuição nula para a magnetização na interface. Ainda podem haver interfaces não-colineares com outras possíveis orientações dos momentos.

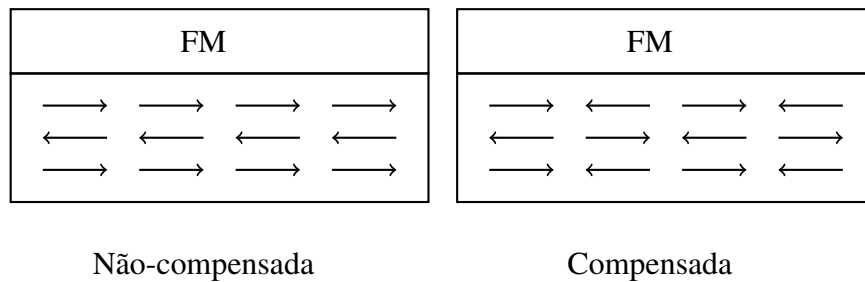


Figura 1.8: Diagrama esquemático de interfaces compensada e não-compensada.

A estrutura morfológica da interface também é fundamental. Filmes crescidos epitaxialmente devem apresentar uma interface quase plana, ao passo que filmes policristalinos e nanopartículas apresentam interfaces não-planas, com rugosidades que podem levar à desordem estrutural e magnética.

No caso de filmes finos que apresentam *exchange bias*, a energia do sistema pode ser descrita considerando diversas configurações de interfaces e materiais FM e AF (que serão discutidas na próxima secção), mas podemos escrever uma expressão fenomenológica para a energia do sistema da forma:

$$E = -J_{ex} \cos(\theta_{AF} - \phi_{FM}) - K_{FM} t_{FM} \cos^2(\phi_{FM}) - H M_{FM} t_{FM} \cos(\phi_H - \phi_{FM}), \quad (1.6)$$

onde  $\theta_{AF}$  é o ângulo dos momentos interfaciais AF com o campo magnético externo  $H$ ,  $\phi_{FM}$  é o ângulo dos momentos FM com  $H$ ,  $t_{FM}$  é a espessura do material FM,  $\phi_H$  é o ângulo entre o campo externo e o eixo de fácil magnetização,  $K_{FM}$  é a constante de anisotropia do material FM,  $J_{ex}$  é a constante de troca entre os materiais FM e AF e  $M_{FM}$  é a magnetização da camada FM. Na equação 1.6, o primeiro termo corresponde à interação de troca na interface, o segundo termo corresponde à anisotropia da camada FM e o terceiro termo a interação do material FM com o campo externo.

Dependendo de cada sistema, outros termos podem ser considerados no hamiltoniano do sistema. Podem-se considerar por exemplo, termos correspondentes à formação de paredes

de domínio, de anisotropia de forma, etc. A próxima secção discorrerá brevemente sobre alguns modelos propostos para explicar o comportamento de diversos sistemas que apresentam *exchange bias*.

### 1.3.1 Modelos teóricos

Desde a descoberta do fenômeno de EB vários modelos teóricos foram propostos visando explicar o que era observado experimentalmente. Alguns trabalhos apontam alguns dos principais modelos propostos<sup>(39, 40, 38)</sup>. Estes dão algumas observações experimentais para sistemas específicos, indicando ainda a falta de um modelo que explique todas as características observadas e em uma ampla faixa de sistemas distintos que apresentam EB.

O primeiro modelo visando explicar o fenômeno de EB foi proposto por Meiklejohn e Bean<sup>(2, 29, 30)</sup> em 1957. Assumiu-se rotação coerente da magnetização e o caso com grande anisotropia AF (comparada à FM). O valor de  $H_{EB}$  seria determinado pela competição da energia *Zeeman* e a energia interfacial de EB, que depende da espessura do material FM. Os valores de EB previstos com este modelo levam a valores cerca de duas ordens de grandeza maiores que os observados experimentalmente.

O segundo modelo para explicar o EB foi proposto por Néel<sup>(41)</sup>. Considerou-se uma interface não-compensada sujeita a deformações e mudanças irreversíveis durante a reversão da camada FM. Estas mudanças afetariam o  $H_{EB}$  e o  $H_C$  (juntamente com uma componente intrínseca do próprio material FM). Para rugosidades realísticas, Néel considerou sub-redes AF causando uma compensação parcial na interface. Assim, para filmes policristalinos, a distribuição de momentos AF na interface estaria estatisticamente distribuída. O modelo de Néel é válido para filmes espessos e falha para prever valores razoáveis de EB.

Em 1972 Fulcomer e Charap<sup>(42, 36)</sup> observaram dependência do EB com o tamanho e número de grãos do material AF enquanto estudavam filmes de *permalloy* corroídos por ataque ácido revelando os grãos AF. Os autores consideraram um modelo granular *Stoner-Wohlfarth* e as simulações numéricas tiveram boa concordância com o experimento. Neste modelo as anisotropias e energia de acoplamento foram amplamente varridas devido à variedade de formas e tamanhos de grãos considerados. A dependência de  $H_{EB}$  e  $H_C$  com a temperatura também foi predita com boa concordância com os experimentos considerando mudanças termicamente.

Mauri e colaboradores<sup>(43)</sup> propuseram um modelo para explicar o EB considerando paredes de domínio. Os autores sugeriram formação de paredes de domínio paralela à interface no material AF minimizando a energia interfacial já que é imposto um limite superior para energia

de troca pela formação da parede de domínio. Neste modelo são considerados materiais com uma camada FM muito fina e uma camada AF infinitamente espessa (assim a parede de domínio forma-se somente no material AF). As subredes de momentos AF e os momentos FM ficam paralelos a uma interface perfeitamente plana. Este modelo prevê valores razoáveis para  $H_{EB}$  e  $H_C$  em alguns sistemas, mas falha em explicar outros que possuem uma camada AF muito fina.

Malozemoff <sup>(44)</sup> introduziu uma rugosidade interfacial randômica entre o FM e o AF cuja natureza dá origem a regiões compensadas e não-compensadas. Estas regiões resultam na formação de paredes de domínio perpendiculares à interface. Considerando uma rede cúbica simples, chega-se em valores de  $H_{EB}$  compatíveis com os experimentos. Porém este modelo foi proposto para monocristais não explicitando como pode ser aplicado para materiais policristalinos. Além disso, como o modelo se baseia na rugosidade interfacial, não explica o comportamento de sistemas com interfaces perfeitamente compensadas.

Um modelo para EB de sistemas com interfaces compensadas, veio com Koon <sup>(45)</sup> em 1997. Seu principal resultado foi estabelecer que, para interfaces perfeitamente compensadas, a configuração do estado fundamental corresponde à orientação perpendicular dos momentos FM relativos à direção de eixo fácil da camada AF (o que é chamado de acoplamento *spin-flop*). Neste modelo, os valores de  $H_{EB}$  previstos para interfaces compensadas e não-compensadas são similares, mas não suficientes para descrever os resultados experimentais.

Em 1998 Schulthess e Butler <sup>(46)</sup> resolveram a equação de Landau-Lifshitz-Gilbert com objetivo de estudar o acoplamento de troca na interface FM-AF. Com este modelo e considerando interfaces perfeitamente planas, os autores mostraram que o acoplamento *spin-flop* não leva a EB, ou melhor, valores de  $H_{EB}$ , mas explica o aumento da coercividade típico de sistemas que apresentam EB. Considerando defeitos e rugosidade na interface <sup>(47)</sup> chega-se a valores razoáveis para o  $H_{EB}$  e  $H_C$ . Porém, este modelo se aplica a situações idealizadas onde os materiais são monocristalinos e monodomínios.

Stiles e McMichael propuseram em 1999 um modelo <sup>(48)</sup> para descrever o comportamento de bicamadas FM-AF policristalinas. Dentre as suposições do modelo está a de que os grãos AF não interagem entre si. O acoplamento entre os grãos AF e a camada FM se dá de duas maneiras: os momentos líquidos das interfaces dos grãos interagem diretamente com a camada FM e também por acoplamento *spin-flop*. As propriedades do material FM são independentes da temperatura neste modelo (assume-se  $T_C \gg T_N$ ) e a dependência do  $H_{EB}$  com a temperatura vem de instabilidades térmicas no estado dos grãos AF <sup>(49)</sup>. Este modelo também explica o comportamento da coercividade <sup>(50)</sup>.

Mais recentemente, um modelo considerando um material AF diluído com impurezas foi

proposto por Nowak e colaboradores em 2002 <sup>(51)</sup>. As diluições foram introduzidas no sistema sob a forma de átomos não-magnéticos e tal camada está acoplada à camada FM. Neste modelo EB é devido a um estado de domínios formado no AF durante o resfriamento em campo carregando uma magnetização irreversível. Os átomos não magnéticos (diluições) favorecem a formação deste estado de domínios, pois as paredes de domínio passam preferencialmente pelos defeitos, diminuindo a energia para sua formação. Foram feitas simulações de Monte Carlo, considerando grande constante de anisotropia AF e algumas monocamadas. Este modelo é aplicado a monocristais, dificilmente podendo ser aplicado a filmes policristalinos com grãos desacoplados. Prevê bem valores de  $H_{EB}$ , dependência com a espessura AF e até dependência com a temperatura (considerando uma teoria de campo médio) <sup>(52)</sup>.

Outros dois modelos para sistemas granulares foram propostos por Saha e Victora <sup>(53)</sup> e Choo e colaboradores <sup>(54)</sup>. Saha e Victora resolveram a equação de Landau-Lifshitz-Gilbert considerando grãos AF não-interagentes entre si. Cada grão FM está acoplado a um AF que gira uniformemente sob o efeito de flutuações térmicas. O acoplamento entre o FM e o AF vem da rugosidade na superfície dos grão AF. O modelo prevê dependência do  $H_{EB}$  e  $H_C$  com a temperatura e espessura da camada AF.

O modelo granular de Choo e colaboradores <sup>(54)</sup> consideram grão formados no material FM fortemente acoplados e grãos AF desacoplados com grande anisotropia. Aqui o processo de magnetização envolve estados de magnetização não uniforme. O estado magnético de cada grão AF é controlado por processos termicamente ativados. As camadas FM e AF são acopladas por interações magnetostáticas e de troca. Observou-se que instabilidades térmicas levam a um pico na coercividade próximo à temperatura de bloqueio.

Mais recentemente, O'Grady e e colaboradores publicaram um apanhado geral de seus trabalhos sobre exchange bias em filmes policristalinos <sup>(38)</sup>. Os autores, através de experimentos minuciosamente controlados, investigam vários fatores como temperatura de bloqueio, constante de anisotropia AF, dependência com a espessura e tamanho dos grãos, dentre outros.

Um dos pontos fortes neste modelo é a consideração de três tipos de grãos de acordo com sua contribuição para o EB em filmes policristalinos: o primeiro tipo são grãos muito pequenos, a ponto de serem termicamente instáveis (não podem ser orientados na interface) e não contribuir para o EB. O segundo tipo são os grãos que têm tamanho suficiente para que não ocorra instabilidade térmica, e então contribuem para que ocorra EB. O terceiro tipo, são grãos grandes a ponto de não poderem ser orientados devido a alta anisotropia. Em amostras feitas pelos autores, foi verificado que a distribuição de grãos é bem descrita por uma função lognormal, como mostra a figura 1.9. O  $H_{EB}$  neste contexto seria proporcional a integral desta distribuição

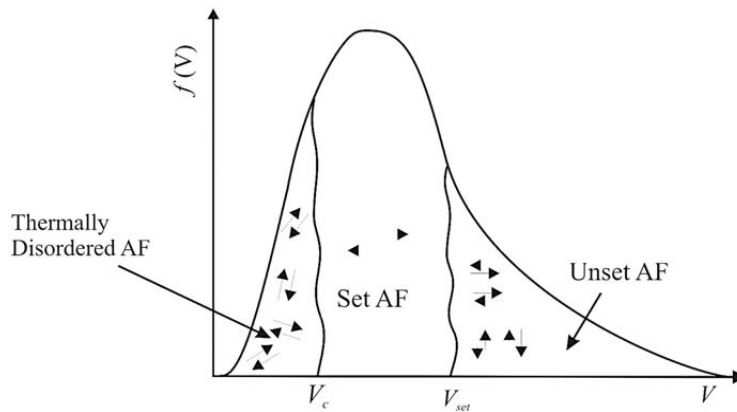


Figura 1.9: Distribuição de volume dos grãos AF em um material policristalino <sup>(38)</sup>.

de grãos que se encontram na faixa de volume capaz de contribuir para o EB:

$$H_{EB} \propto \int_{V_c}^{V_{set}} f(v) dv, \quad (1.7)$$

onde  $v_c$  e  $v_{set}$  são mostrados na figura 1.9 e  $f(v)$  é uma função que descreve a distribuição de tamanho dos grãos.

A proporcionalidade na expressão 1.7 seria transformada em uma igualdade multiplicando a expressão por uma constante dependendo da temperatura e do campo de orientação da interface e também por um valor intrínseco de campo de *exchange bias*, que seria obtido em condições ideais.

Os autores mostraram um excelente ajuste da expressão 1.7 com os dados experimentais obtidos através da caracterização magnética.

## 2 Irradiação Iônica

A irradiação de íons na matéria é uma ferramenta que leva a inúmeras modificações nas propriedades dos materiais, sendo fundamental em aplicações tecnológicas atualmente. A irradiação iônica em materiais magnéticos é uma área recente, que vem possibilitando a descoberta e entendimento de novos sistemas.

Nas próximas seções levantaremos alguns aspectos fundamentais sobre como ocorre a interação de partículas aceleradas com um alvo material, de modo a compreender melhor alguns dos processos físicos responsáveis pelas modificações provocadas nos materiais.

### 2.1 Processos de perda de energia na matéria

Quando um íon é acelerado na direção de um alvo, perde energia para este basicamente por dois tipos de processos: colisões com os de elétrons e com os núcleos dos átomos que constituem este alvo. Geralmente considera-se estes processos não-correlacionados. Supondo que um feixe de íons com energia inicial  $E_0$  vai perdendo energia para o alvo de uma quantidade  $\Delta E$ , em uma distância  $\Delta x$ , definimos o *poder de freamento* ou perda de energia por unidade de comprimento, para um feixe de energia  $E$  como:

$$\lim_{\Delta x \rightarrow 0} \frac{\Delta E}{\Delta x} \equiv \frac{dE}{dx}(E), \quad (2.1)$$

Como foi dito, esta perda de energia ocorre em duas formas, portanto escrevemos:

$$\frac{dE}{dx} = \left( \frac{dE}{dx} \right)_N + \left( \frac{dE}{dx} \right)_E, \quad (2.2)$$

onde  $\left( \frac{dE}{dx} \right)_N$  é chamado *poder de freamento nuclear* e  $\left( \frac{dE}{dx} \right)_E$  é chamado de *poder de freamento eletrônico*.

Estas duas formas de perda de energia acontecem preferencialmente em diferentes faixas

de energia do íon incidente. A figura 2.1 mostra o poder de freamento como função da energia obtido através de simulações numéricas<sup>(55)</sup>. Vemos que para baixas energias, a perda de energia se dá principalmente para os núcleos, ou seja, o poder de freamento nuclear é mais importante. Já para energias mais elevadas, há predominância do poder de freamento eletrônico no processo de perda de energia do íon no alvo.

Também é comum expressar a perda de energia em termos da *secção de choque de freamento*,  $S$ . O poder de freamento relaciona-se com  $S$  por:

$$\frac{dE}{dx} = \eta S, \quad (2.3)$$

onde  $\eta$  é a densidade atômica do alvo.

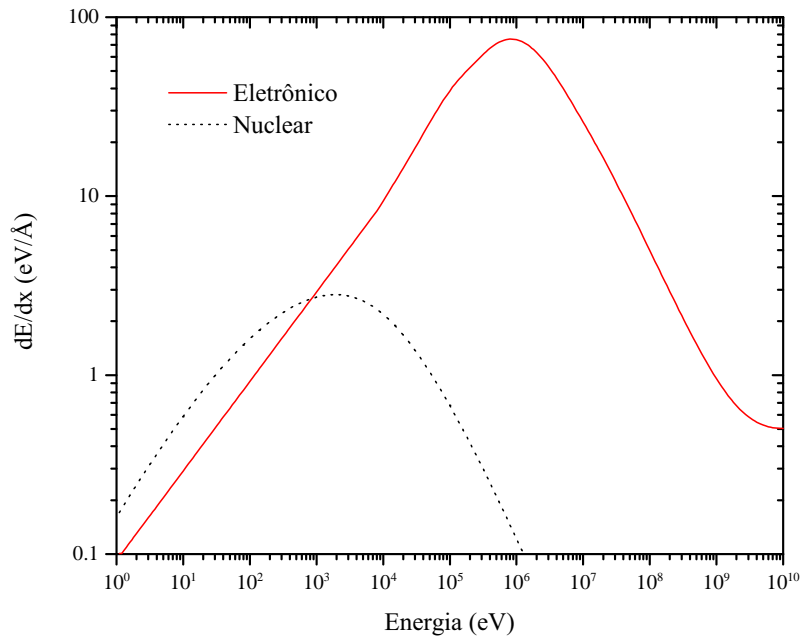


Figura 2.1: Poder de freamento eletrônico e nuclear de íons de hélio em um alvo de cobalto obtido através do código SRIM<sup>(55)</sup>. A linha contínua representa o poder de freamento eletrônico e a linha tracejada representa o poder de freamento nuclear.

Assim, podemos escrever a expressão 2.2 como:

$$\frac{dE}{dx} = \eta [S_N + S_E], \quad (2.4)$$

onde  $S_N$  é a *secção de choque de freamento nuclear* e  $S_E$  é a *secção de choque de frea-*



*mento eletrônico.* Trabalharemos com estas quantidades para não carregarmos a densidade nos cálculos.

O comportamento observado na figura 2.1 pode ser entendido com base nas secções de choque de freamento dos íons no alvo, cujos cálculos serão discutidos nas próximas secções. Para baixas energias a secção de choque de freamento nuclear predomina, tendendo a aumentar com a energia até o momento em que a secção de choque de freamento eletrônico se torna mais importante. A queda observada no poder de freamento eletrônico para altas energias deve-se ao tempo de interação dos íons com o alvo.

### 2.1.1 Poder de freamento nuclear

Vamos agora discutir os processos físicos por trás da perda de energia dos íons. Primeiramente trataremos do poder de freamento nuclear, considerando o espalhamento elástico não-relativístico de duas partículas. Imaginemos um projétil *A* de número atômico  $Z_1$  de massa  $m_1$  com velocidade  $v_0$  dirigindo-se na direção de uma partícula *B* de número atômico  $Z_2$ , em repouso, de massa  $m_2$  sendo que após o espalhamento a partícula *A* tem velocidade  $v_1$  e a partícula *B* velocidade  $v_2$ . Considerando o problema no sistema de coordenadas do centro de massa (figura 2.2) e usando as relações de conservação de energia e momentum, chegamos em uma relação para a energia transferida do projétil para o alvo ( $T$ ):

$$T = \frac{4 m_1 m_2}{(m_1 + m_2)^2} E_0 \sin^2 \frac{\Theta}{2}, \quad (2.5)$$

onde  $E_0$  é a energia inicial do sistema e  $\Theta$  é o ângulo de espalhamento do projétil nas coordenadas de centro de massa, relacionadas ao sistema do laboratório por:

$$\vartheta = \tan^{-1} \left[ \frac{m_2 \sin \Theta}{m_2 \cos \Theta + m_1} \right], \quad (2.6)$$

onde  $\vartheta$  é o ângulo de espalhamento no referencial do laboratório.

Da conservação de energia e do momentum angular, chega-se em uma expressão para o ângulo de espalhamento  $\Theta$ :

$$\Theta = \pi - 2 \int_{r_{min}}^{\infty} \frac{p}{r^2 \left[ 1 - \frac{V(r)}{E_C} - \frac{p^2}{r^2} \right]^{\frac{1}{2}}} dr, \quad (2.7)$$

onde  $E_C$  é a energia inicial do centro de massa,  $V(r)$  o potencial interatômico e  $p$  o parâmetro

de impacto, definido na figura 2.2.

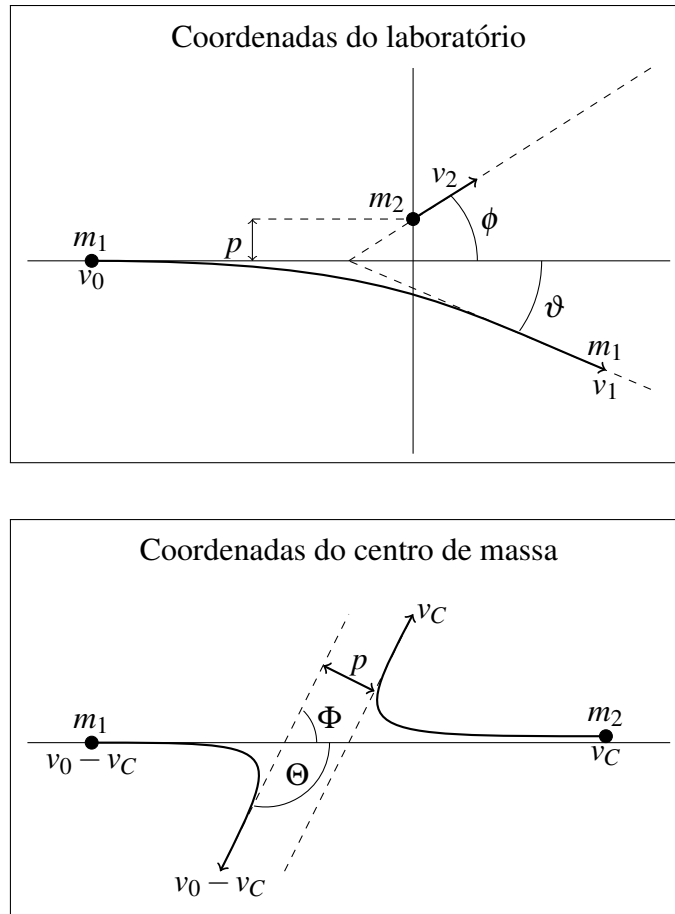


Figura 2.2: Sistemas de coordenadas do laboratório e centro de massa.

O poder de freamento nuclear é a energia média transferida no processo de colisão quando somada sob todos os parâmetros de impacto possíveis. Assim escrevemos:

$$S_N(E) = \int_0^{\infty} T(E, p) dp . \quad (2.8)$$

Usando 2.5, podemos escrever:

$$S_N(E) = \int_0^{\infty} T(E, p) 2\pi p dp = 2\pi E_0 \gamma \int_0^{p_{max}} \sin^2 \frac{\Theta}{2} p dp , \quad (2.9)$$

onde  $\gamma$  é definido como  $\frac{4 m_1 m_2}{(m_1 + m_2)^2}$ .

O cálculo da secção de choque de freamento nuclear pode ser feito através do programa SR, do pacote de simulação SRIM<sup>(55)</sup>.

### 2.1.2 Poder de freamento eletrônico

Os primeiros modelos para a perda de energia eletrônica foram feitos por Thomson <sup>(56)</sup> e Darwin <sup>(57)</sup>. A perda de energia foi tratada como a energia transferida por uma carga em movimento a um elétron livre.

Outro modelo clássico foi proposto posteriormente por Bohr <sup>(58)</sup>, que baseou o estudo de da secção de choque de freamento eletrônico,  $S_E$  em um modelo considerando o alvo como uma coleção de osciladores harmônicos (elétrons ligados harmonicamente aos núcleos). Bohr mostrou que, dependendo do tempo de colisão, há um corte na secção de choque de perda de energia eletrônica (que de acordo com a teorias anteriores deveria ser infinita). Segundo esta teoria, a secção de choque de freamento eletrônico é dada por:

$$S_E = \frac{4\pi Z_1^2 e^2}{m_e v_1^2} B \quad \text{com} \quad B = Z_2 \ln \left( \frac{1,123 m_e v_1^3}{Z_1 e^2 \omega} \right), \quad (2.10)$$

onde  $m_e$  e  $e$  são a massa e a carga do elétron, respectivamente,  $\omega$  é uma frequência média (definida com base nas frequências características, determinadas através dados de absorção ótica) e  $B$  uma função dependendo das características do alvo e projétil. Todos os modelos até então, eram baseados na mecânica clássica.

O primeiro tratamento totalmente quântico para o problema foi proposto por Bethe <sup>(59)</sup>, usando a primeira aproximação de Born. A natureza atômica de vários elementos do alvo é concentrada em um único parâmetro representando a excitação média dos átomos. A secção de choque de freamento eletrônico, neste contexto, é a mesma da equação 2.10 porém o fator B é dado por:

$$B = Z_2 \ln \left( \frac{2m_e v_1^2}{\langle I \rangle} \right) \quad (2.11)$$

onde  $\langle I \rangle$  é característica do alvo, a *energia média de excitação*.

Outros modelos consideram o alvo como uma coleção de elétrons interagentes (um plasma) e levam em conta efeitos como polarização dinâmica<sup>(60)</sup> e a energia perdida para plásmons. Dentre os trabalhos considerando os elétrons como um plasma pode-se citar os de Fermi <sup>(61)</sup> e Fermi e Teller <sup>(62)</sup>. Aqui são consideradas energias de blindagem, amortecimento e dispersão dos osciladores. Posteriormente estes modelos foram aprimorados a fim de incluir a estrutura eletrônica completa de um alvo sólido através da função dielétrica<sup>(63)</sup>, porém somente dentro da teoria da resposta linear.

Para sistemas atômicos, a perda de energia eletrônica pode ser diretamente calculada através de modelos mais avançados, dentre eles o *método do canal acoplado* (*coupled-channel method*). Este último, se baseia na solução da equação de Schrödinger dependente do tempo, através da expansão da função de onda eletrônica, em termos dos orbitais atômicos<sup>(64, 65, 66)</sup> e provê valores mais precisos para a perda de energia eletrônica dependente do parâmetro de impacto da colisão. No entanto, este método requer muito tempo de computação, assim outros modelos baseados na aproximação unitária por convolução<sup>(67)</sup> (UCA), realizada pelo programa CasP<sup>(68)</sup> ou pelo método de aproximação binária de P. Sigmund<sup>(69)</sup>, podem ser utilizados.

### 2.1.3 Efeitos provocados na matéria

Já vimos anteriormente, que o um íon, acelerado em direção a um alvo, sofre colisões tanto com os elétrons quanto com os núcleos dos átomos que constituem o alvo. Este processo pode levar à produção de vários efeitos no alvo como desbastamento da superfície (*sputtering*), ionização, excitação, criação de defeitos na rede, fônons, etc.

A perda de energia eletrônica é basicamente responsável pelos efeitos de excitação, ionização, ao passo que os outros efeitos são provocados principalmente pela perda de energia para os núcleos. Discutiremos a seguir os efeitos provocados neste último caso.

Quando um átomo do alvo sofre recuo devido à interação com o projétil, pode ter energia suficiente para gerar novas colisões, que por sua vez podem dar origem a mais colisões e assim sucessivamente. Este efeito é chamado de *cascata de colisões* que é usualmente dividida em colisões de deslocamento, produção de vacâncias, colisões de reposição e átomos intersticiais. Cascatas de colisões de íons pesados são mais "densas" que de íons leves, pois ocorrem mais colisões secundárias e sucessivas como é ilustrado na simulação da figura 2.3.

Considere que um átomo incidente  $A$  tem número atômico  $Z_1$  e energia  $E$ . Este sofre uma colisão dentro do alvo com um átomo  $B$  de número atômico  $Z_2$ . Depois da colisão o íon incidente tem energia  $E_1$  e o átomo que colidiu, energia  $E_2$ . À medida que o íon  $A$  penetra no alvo, vai perdendo energia para o mar de elétrons do material  $B$  podendo somente algumas camadas atômicas depois sofrer uma colisão com um átomo deslocando-o da sua posição original.

Neste contexto definimos a *energia de deslocamento* ( $E_d$ ) como a energia necessária para que um átomo do alvo seja deslocado a uma distância suficiente para não voltar imediatamente à sua posição original. Essas energias são da ordem de 10 – 25 eV. Também definiremos aqui  $E_b$ , energia de ligação do átomo à rede, e  $E_f$  a energia final de um átomo se movendo, abaixo da qual é considerado parado.

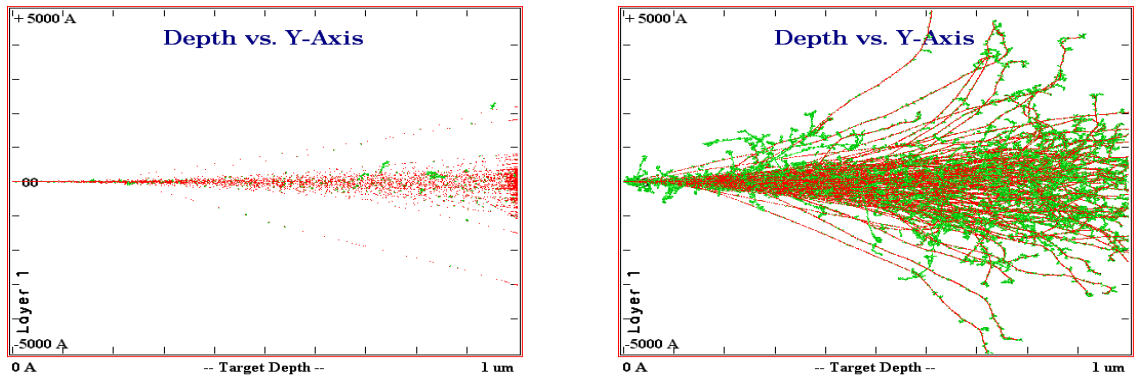


Figura 2.3: Simulações feitas para íons de  $\text{He}^+$  (esquerda) e  $\text{Ne}^+$  (direita) <sup>(55)</sup> com energia de aceleração de 500 keV incidindo sobre alvo de silício para 100 íons. Os pontos vermelhos indicam as trajetórias dos íons incidentes e os pontos verdes os átomos do alvo que foram deslocados de suas posições originais devido às colisões com o projétil.

Um *deslocamento* ocorre se  $E_2 > E_d$ , isto é, o átomo recebe energia suficiente para deixar seu sítio. Uma *vacância* ocorre se ambas,  $E_1 > E_d$  e  $E_2 > E_d$ , ou seja, os dois átomos têm energia suficiente para deixar o sítio e se tornam átomos em movimento na cascata. A energia  $E_2$  do átomo  $B$  é reduzida por  $E_b$  antes que ele tenha outra colisão. Se  $E_2 < E_d$ , então o átomo que sofreu a colisão no alvo não tem energia suficiente para abandonar sua posição na rede e irá vibrar em torno de seu sítio original, liberando  $E_2$  como *fônons*<sup>1</sup>.

Se  $E_1 < E_d$ ,  $E_2 > E_d$  e  $Z_1 = Z_2$ , então o átomo projétil irá permanecer no sítio anteriormente ocupado pelo alvo e a colisão é chamada de *colisão de reposição* com  $E_1$  liberada como fônons. Este tipo de colisão é comum em alvos de um único elemento com grandes cascatas de recuo. Se  $E_1 < E_d$ ,  $E_2 > E_d$  e  $Z_1 \neq Z_2$ , então  $A$  se torna um átomo *intersticial* parado. As colisões de reposição reduzem o número de vacâncias, podendo reduzir o número total em mais de 30%.

Finalmente, se  $E_1 < E_d$  e se  $E_2 < E_d$ , então  $A$  torna-se um *intersticial* e  $E_1 + E_2$  é liberado como fônons. Se o seu alvo tem vários elementos diferentes nele, e cada um com diferente energia de deslocamento, então  $E_d$  irá mudar para cada átomo da cascata atingindo diferentes átomos do alvo.

No caso da cascata de colisões chegar à superfície, temos o fenômeno chamado de *Sputtering*, que é a remoção de átomos próximos à superfície do alvo e acontece quando a energia transferida pelo alvo é maior que a *energia de ligação de superfície* daquele alvo. Assim, o átomo pode ser liberado e a superfície desbastada.

<sup>1</sup>Estas vibrações dos átomos na rede são quantizadas, e rigorosamente, um *fônon* é um quantum de energia de vibração.

Um parâmetro comumente usado para quantificar os defeitos estruturais causados pela passagem do íon pelo alvo é o dpa (*displacement per atom*). Este último está relacionado ao número de colisões com energia transferida maior que  $E_d$ , ou seja, capaz de deslocar um átomo do alvo de sua posição original de modo que não volte mais a esta. Um dpa de 0,2 quer dizer que 20% dos átomos do alvo em um certo volume foram deslocados devido a colisões com o projétil.

Uma das saídas do programa SRIM<sup>(55)</sup> é o *displacements per ion per atom* (deslocamentos por íon por átomo), que é o dpa que cada íon irradiado/implantado provoca. Este dpa é dado de acordo com a profundidade do alvo, e não unidade de volume. Logo, para obter uma quantificação do dano total causado, deve-se multiplicar esta saída pela fluência.

### 3 *Procedimento Experimental*

O objetivo deste trabalho é estudar como a irradiação de íons afeta sistema magnético que apresenta EB. Para alcançar tal objetivo, executamos os procedimentos experimentais a seguir:

- irradiações iônicas e tratamentos térmicos;
- caracterização magnética.

Amostras com interface FM-AF foram feitas na Unité Mixte de Physique CNRS/Thales, Université Paris-Sud, Orsay, França por C. Deranlot e F. Petroff. As irradiações iônicas foram feitas no Laboratório de Implantação Iônica (LII) da Universidade Federal do Rio Grande do Sul (UFRGS) e os tratamentos térmicos e a caracterização magnética, foram feitos no Laboratório de Magnetismo (LAM) da UFRGS.

#### 3.1 Amostras

As amostras estudadas neste trabalho são filmes ultrafinos constituídos de IrMn/Cu/Co (que manifesta exchange bias), onde o IrMn é um material AF, o Co um material FM e o Cu é um espaçador não-magnético. Este sistema foi estudado por Sabrina Nicolodi de Oliveira Viegas na sua dissertação de mestrado<sup>(70)</sup>, onde foram discutidas as modificações da anisotropia magnética com função da espessura de um espaçador não-magnético de cobre e tratamentos térmicos.

O sistema IrMn/Co possui propriedades adequadas para este estudo: apresenta EB significativo e temperatura de bloqueio elevada (da ordem de 417 °C); o IrMn possui baixa espessura crítica (com poucas camadas atômicas de IrMn já é observado EB). Outra característica notável é o grande valor da constante de troca comparada a outros materiais AF<sup>(71, 72, 73, 74, 75)</sup>. As temperaturas de Curie do Co e de Néel do IrMn são respectivamente,  $T_C = 1388 \text{ K}$ <sup>(76)</sup> e  $T_N = 690 \text{ K}$ <sup>(28)</sup>.

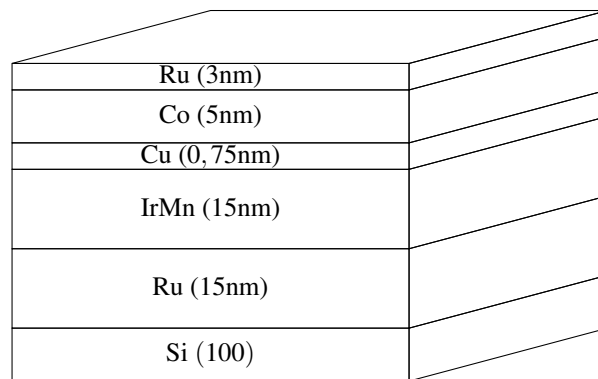


Figura 3.1: Ilustração das amostras estudadas no trabalho (não está em escala).

### 3.1.1 Confeção das amostras

As deposições das amostras foram feitas via *magnetron sputtering* à temperatura ambiente, sobre um substrato de Si de estrutura cristalina (100). Inicialmente, uma camada semente (*buffer*) de Ru de 15nm foi crescida. Esta tem influência na rugosidade, aderência e cristalinidade do filme, fatores importantes para a manifestação do EB<sup>(77, 78, 79)</sup>. Após a camada semente foi depositado o IrMn com espessura de 15 nm. Posteriormente é crescida o Co, com espessura de 50 nm, e, para evitar a oxidação, foi depositada sobre o Co uma camada de 3 nm de Ru. Uma segunda série foi fabricada acrescentando uma camada de 0,75 nm de Cu entre o IrMn e o Co. As amostras estão ilustradas na figura 3.1.

### 3.1.2 Preparação das amostras para irradiações, tratamentos térmicos e caracterização magnética

Para o procedimento experimental posterior, as amostras das duas séries foram cortadas em pedaços de aproximadamente 3mm×3mm, pois é o tamanho adequado para caracterização magnética no magnetômetro de força de gradiente alternado (*Alternating Gradient Force Magnetometer* - AGFM).

De modo a ter um ponto de referência para fazer os procedimentos posteriores (tratamentos térmicos, irradiações iônicas e caracterização magnética), foi feita uma marca física na face do substrato, um pequeno risco com cortador diamantado.



## 3.2 Irradiação de íons

As amostras deste trabalho foram irradiadas com íons de hidrogênio, hélio e neônio no acelerador linear de 500 kV HVEE (High Voltage Engineering Europe) do LII da UFRGS. As energias dos íons irradiados foram escolhidas de acordo com as perdas de energia e alcance dos íons acima mencionados, através do programa SRIM<sup>(55)</sup>.

Neste contexto, fluência é o número total de íons incidentes por unidade de área e a densidade de corrente, a carga que chega no alvo por intervalo de tempo. No presente trabalho, a fluência será dada em íons/cm<sup>2</sup> e a corrente<sup>1</sup> em nA/cm<sup>2</sup>.

Durante as irradiações foi aplicado campo magnético no plano das amostras, a 120 graus do eixo de anisotropia. O objetivo é o mesmo do tratamento térmico tradicional: orientar os momentos na interface FM-AF. Uma amostra foi irradiada na ausência de campo, para verificar seu efeito.

### 3.2.1 Aparato experimental

O implantador do LII possui excelente estabilidade da fonte de alta tensão e baixa divergência do feixe de íons. Nele, os íons são gerados a partir dos gases que são injetados na câmara de implantação. O separador de massas, um analisador magnético, cumpre o papel de selecionar apenas os íons desejados. Este último é um eletroímã que deflexiona o feixe, permitindo selecionar apenas as partículas com relação carga/massa desejadas. Na maioria dos casos pode-se separar isótopos de um mesmo elemento.

Uma vez selecionados os íons desejados, estes são acelerados através de um sistema de eletrodos cilíndricos coaxiais, que permitem produzir feixes de íons com energias entre 10 e 450 keV. A focalização é feita por um sistema de quadropolos magnéticos, os quais permitem tornar o diâmetro do feixe da ordem de milímetros e a varredura, é feita através de campos eletrostáticos.

Na câmara de implantação, copos de Faraday medem a corrente gerada pelos íons, a qual é integrada fornecendo um valor preciso da fluência implantada. As densidades de corrente obtidas variam entre 10 nA/cm<sup>2</sup> e 1  $\mu$ A/cm<sup>2</sup>, dependendo do íon utilizado.

Todo o sistema acima descrito encontra-se em vácuo da ordem de 10<sup>-6</sup> a 10<sup>-7</sup> Torr e temperatura ambiente.

---

<sup>1</sup>Nos referiremos neste trabalho à densidade de corrente simplesmente como corrente.

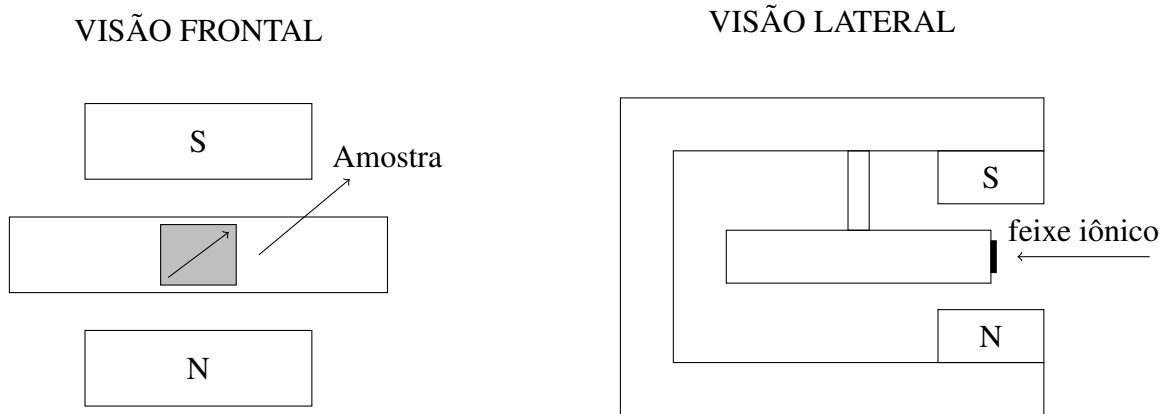


Figura 3.2: Diagrama esquemático da câmara de implantação usada nas irradiações deste trabalho. A seta desenhada na amostra indica o eixo de anisotropia da mesma.

Ímãs permanentes, compostos de uma liga de Nd-B-Fe de alta remanência e estabilidade, estão acoplados à câmara de implantação, gerando na posição onde são fixadas as amostras, um campo magnético ( $H_{irr}$ ) da ordem de 5,5 kOe. A força de Lorentz que o feixe de íons sofre devido à presença do campo, provoca um leve desvio no feixe (menor que 1 milímetro), que está dentro do erro do ângulo de incidência do feixe neste aparato.

A fixação das amostras na câmara é feita com fitas de carbono, evitando a contaminação por elementos reativos. As amostras foram posicionadas na câmara tal que o eixo de anisotropia ficasse a 120 graus do campo aplicado. A figura 3.2 mostra um esquema da câmara de implantação.

### 3.2.2 Simulações

Para escolher as energias e fluências dos íons para as irradiações, previamente fizemos algumas simulações numéricas com dois códigos: SRIM<sup>(55)</sup> (versão 2008 e 2009) e TRIM Cascade<sup>(80)</sup>. Estes dois calculam as interações íon-alvo baseados em método de Monte Carlo, e provêem dados como alcance e distribuição dos íons no alvo, deslocamentos dos átomos do alvo, número de ionizações, fônons, produção de átomos intersticiais, etc.

Feixe iônico	Alcance projetado (Å)
H <sup>+</sup> 40 keV	3470
He <sup>+</sup> 40 keV	3000
Ne <sup>+</sup> 200 keV	3400

Tabela 3.1: Valores aproximados de alcances projetados dos íons usados nas irradiações deste trabalho, obtidos do código SRIM-2009<sup>(55)</sup>.

As energias dos íons foram escolhidas elevadas o suficiente para atravessar a amostra (com espessura total de 380 Å), pois se o íon ficasse implantado, teríamos um fator a mais para levar em conta na análise dos resultados. Foram utilizados três feixes iônicos com diferentes energias: de hélio a 40 keV, de próton a 40 keV e de neônio a 200 keV. A tabela 3.1 mostra os alcances projetados nas amostras estudadas, obtidos através da simulação numérica SRIM-2009.

Os trabalhos já feitos na literatura até então<sup>(18, 21)</sup> investigaram somente o efeito da fluência dos íons irradiados e/ou implantados. Contudo, nenhum destes trabalhos, havia investigado os efeitos relacionados à corrente com a qual uma certa fluência é irradiada. No presente trabalho estudamos a influência dos dois efeitos separadamente, fazendo duas séries de irradiações para cada amostra: uma com corrente constante e fluência variando, e vice-versa. Estas últimas foram realizadas com íons de hélio à energia de 40 keV com os parâmetros ilustrados na figura 3.3.

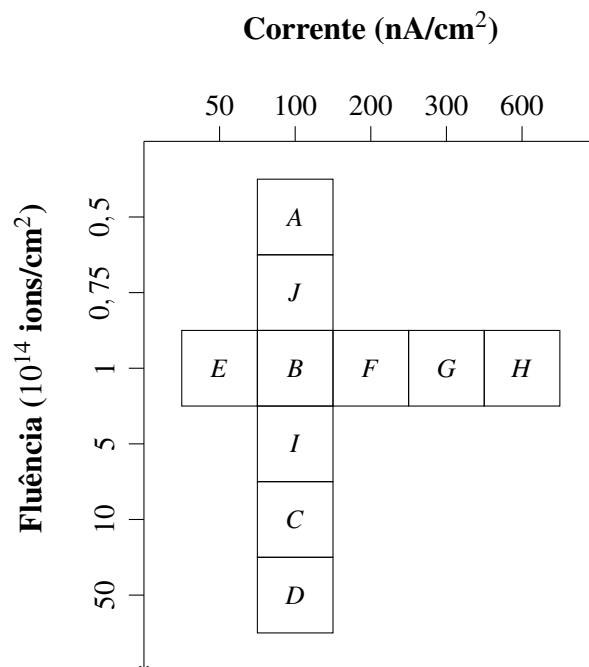


Figura 3.3: Diagrama esquemático das fluências e correntes usadas para a irradiação das amostras.

Após a caracterização magnética e análise dos resultados desta primeira etapa, foram feitas irradiações com outras correntes e fluências (amostras H, I e J da figura 3.3), com intuito de obter uma melhor compreensão dos fenômenos observados.

Posteriormente também comparamos os efeitos provocados por diferentes íons. Nestas irradiações, fixamos outros parâmetros: produção de átomos intersticiais, excitação/ionização e fônons (valores obtidos dos programas citados anteriormente).

Para as grandezas fônons e átomos intersticiais, usamos o código TRIM Cascade<sup>(80)</sup>. As

EFEITOS GERADOS				
Amostra	Defeitos	Excitação	Fônons	Intersticiais
He <sup>+</sup> 5 × 10 <sup>13</sup>	0,01	0,005	0,01	0,01
H <sup>+</sup> 1,1 × 10 <sup>15</sup>	0,02	0,1	0,045	0,015
He <sup>+</sup> 7,5 × 10 <sup>13</sup>	0,015	0,008	0,015	0,016
Ne <sup>+</sup> 4,7 × 10 <sup>12</sup>	0,02	0,0014	0,003	0,016
He <sup>+</sup> 1 × 10 <sup>14</sup>	0,02	0,01	5,8	0,02
H <sup>+</sup> 4,8 × 10 <sup>15</sup>	0,08	0,44	0,02	0,07
Ne <sup>+</sup> 4 × 10 <sup>13</sup>	0,17	0,012	0,02	0,14
He <sup>+</sup> 5 × 10 <sup>15</sup>	1	1099	1	1
He <sup>+</sup> 1 × 10 <sup>15</sup>	0,2	0,53	0,2	0,2
H <sup>+</sup> 1,1 × 10 <sup>16</sup>	0,2	1	0,45	0,15

Tabela 3.2: Tabela mostrando os efeitos provocados por irradiações com íons e fluências diversas.

simulações foram feitas para 10 milhões de íons incidentes e as saídas eram normalizadas por este número. Assim, para obtermos a quantificação do efeito gerado, multiplicamos a saída normalizada deste pela fluência escolhida. Estas últimas irradiações foram feitas com próton e Ne<sup>+</sup>, a energias de 40 e 200 keV, respectivamente.

As grandezas defeitos e excitação eletrônica foram definidas multiplicando o respectivo poder de freamento pela fluência (equações 3.1 e 3.2). Os poderes de freamento foram obtidos do código SRIM<sup>(55)</sup>,

$$\text{Defeitos} \equiv \left( \frac{dE}{dx} \right)_N \times \text{Fluência} , \quad (3.1)$$

$$\text{Excitação} \equiv \left( \frac{dE}{dx} \right)_E \times \text{Fluência} . \quad (3.2)$$

As quantidades mantidas constantes para cada amostra são mostradas na tabela 4.1.

### 3.3 Tratamentos térmicos

Os tratamentos térmicos foram feitos em um forno resistivo à temperatura de 210°C, durante 15 minutos a uma pressão média de  $3 \times 10^{-5}$  Torr. No decorrer do procedimento, foi aplicado um campo magnético de intensidade próxima de 1,6 kOe, na direção do plano das

amostras, a 0 e 120 graus do eixo de anisotropia das mesmas<sup>1</sup>.

### 3.4 Caracterização magnética

A caracterização magnética foi feita em um magnetômetro de força de gradiente alternado (AGFM). Este equipamento basicamente mede a força magnética, gerada em uma dada direção ( $F_{m,z}$ ), que uma amostra magnetizada sofre em um gradiente de campo magnético ( $dH/dz$ ). Sabe-se que tal força é dada por:

$$F_{m,z} = M \frac{dH}{dz} \quad (3.3)$$

onde  $M$  é a magnetização da amostra em uma dada direção  $z$ . Assim, se  $dH/dz$  é mantido constante, a força magnética é proporcional à magnetização. A figura 3.4 mostra um diagrama esquemático do AGFM.

Neste equipamento, a amostra é primeiramente fixada em uma haste não-magnética (no nosso caso de vidro) e então posicionada entre os pólos de um eletroímã. Este último gera um campo magnético estático  $H_{0,z}$  que magnetiza a amostra. Um arranjo de bobinas, localizado paralelamente ao eletroímã, gera o gradiente de campo  $dH/dz$  e assim a amostra sofre uma força magnética, que provoca a sucessiva deflexão da haste. A oscilação mecânica é transformada em um sinal elétrico alternado devido à presença de uma cerâmica piezoelétrica. O sinal de saída do AGFM é amplificado (por um amplificador *lock-in*) e um sinal de referência é obtido de um gerador de funções. Com estes dois obtém-se um sinal que é proporcional à magnetização (portanto, não podemos obter no AGFM, informações referentes ao valor absoluto de  $\vec{M}$ ).

Para otimizar a razão sinal/ruído, devemos obter o máximo sinal proveniente da oscilação mecânica. Isto é feito de duas maneiras: (1) ajustando a posição das bobinas de gradiente ou (2) variando a frequência de operação. No primeiro caso, deve-se ter um arranjo espacial tal que  $dH/dz$  seja máximo, pois assim maximiza-se a força e também o sinal elétrico obtido. Pode-se obter tal configuração em um arranjo do tipo par de Maxwell (duas bobinas enroladas em série e em oposição). No segundo caso, o que fazemos é operar na frequência de ressonância do sistema mecânico: assim, antes de caracterizar magneticamente cada amostra, fazemos uma varredura do sinal obtido, variando a frequência da corrente nas bobinas de gradiente.

O AGFM possui alta sensibilidade, da ordem de  $10^{-8}$  emu, possibilitando a medida de

---

<sup>1</sup>Os dados dos tratamentos térmicos na direção do eixo de anisotropia foram cedidos por Sabrina Nicolodi de Oliveira Viegas, da sua Dissertação de Mestrado, onde estudou amostras idênticas.

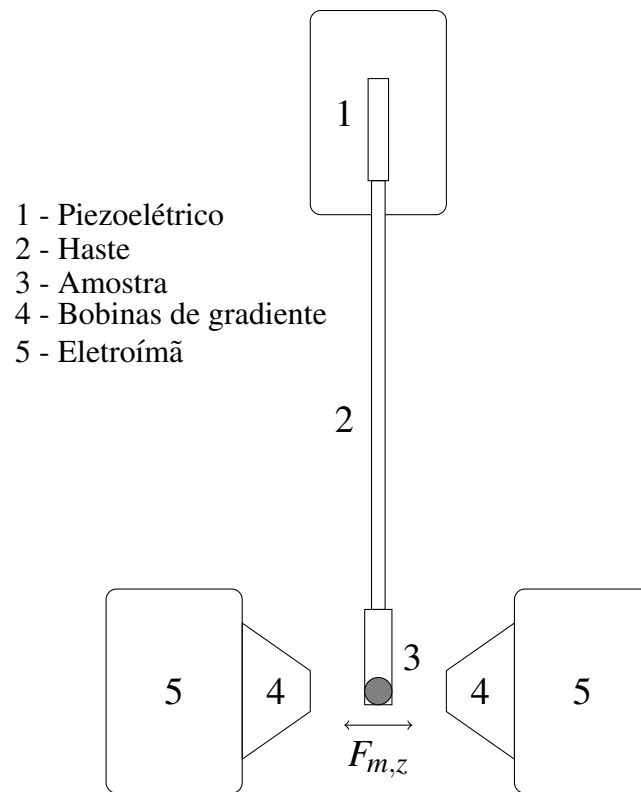


Figura 3.4: Diagrama esquemático do AGFM.

filmes finos de poucos nm de material magnético depositado, mas por outro lado sendo muito sensível aos ruídos ambientes. Por isso o sistema deve estar mecanicamente isolado. Uma limitação deste equipamento é obtenção de medidas variando a temperatura, pois nestas condições, variam tanto a elasticidade do sistema quanto a resposta da cerâmica piezoelétrica.

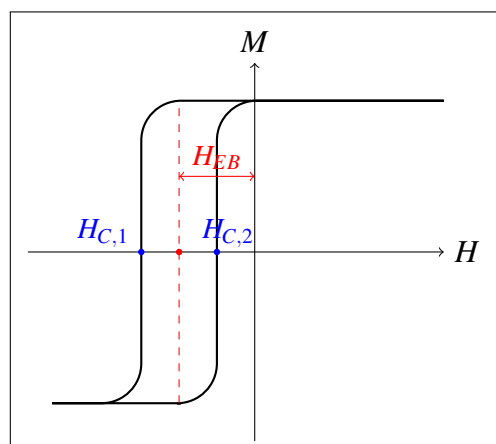


Figura 3.5: Curva de histerese típica obtida no AGFM para um sistema que apresenta *exchange bias*.

A figura 3.5 mostra uma curva e histerese obtida no AGFM, típica de um sistema que apresenta *Exchange Bias*. Neste contexto, são definidos o campo de *exchange bias* ( $H_{EB}$ ) e o campo coercivo ( $H_C$ ) como:

$$H_{EB} = \frac{H_{C,1} + H_{C,2}}{2} \quad \text{e} \quad H_C = -\frac{H_{C,1} - H_{C,2}}{2}. \quad (3.4)$$

As amostras deste trabalho foram fixadas na haste do AGFM com uma cola não-magnética (graxa de silicone) de modo a não interferir nas medidas, que foram feitas com o campo magnético aplicado no plano das amostras<sup>1</sup>. A direção do campo aplicado nas medidas foi variada de 10 em 10 graus, uma vez que queremos obter informações sobre a variação da anisotropia dos filmes no plano. O ângulo entre o campo magnético aplicado no AGFM e a direção arbitrária marcada na amostra anteriormente (ver secção 3.1) chamamos de  $\theta$ .

Primeiramente, as amostras como-feitas foram medidas de modo a conhecer as direções dos eixos de anisotropia. Isto é feito porque posteriormente são realizados tratamentos térmicos e irradiações iônicas na presença de campo magnético: podemos então escolher direções relativas à anisotropia da amostra.

Para cada amostra, algumas medidas foram repetidas de modo a verificar a existência de efeito de treinamento, o que não foi observado. Todas as medidas foram feitas em temperatura ambiente.

---

<sup>1</sup>Medidas com campo magnético aplicado perpendicularmente ao plano das amostras foram feitas, mas não atingiu-se a saturação da magnetização (com campos aplicados de intensidade de até 4500 Oe - máxima que se pode obter no AGFM).

## 4 *Resultados*

Neste capítulo apresentaremos os resultados obtidos da caracterização magnética. Primeiramente foram analisadas as amostras como-feitas, a fim de verificar as suas direções de anisotropia. Após cada procedimento (tratamento térmico, irradiação iônica), as outras amostras foram caracterizadas magneticamente.

Os resultados, vistos de um modo geral, mostram que as amostras como-feitas, com e sem espaçador, já manifestam exchange bias sem tratamento térmico ou irradiação. O tratamento térmico aumenta o EB somente da amostra sem espaçador <sup>(74)</sup> e a irradiação altera o EB de acordo com a fluência dos íons. A intensidade aumenta com a fluência até um ponto de saturação e depois reduz suavemente.

Para entender como a irradiação produz as modificações no EB vistas nos resultados preliminares, estudamos os efeitos físicos que ocorrem durante este processo, dentre eles hiperaquecimento local, fônons e defeitos, que foram fixados nas irradiações com outros íons. Estes resultados são mostrados na última secção.

### 4.1 **Caracterização magnética**

A seguir são mostrados os resultados da caracterização magnética feita no AGFM (descrito na secção 3.4). Estes últimos estão organizados separadamente para as amostras com e sem espaçador. Na secção dos resultados da amostra com espaçador são mostrados resultados das amostras como-feita, tratada termicamente e irradiada com íons de hélio. Na secção da amostra sem espaçador são mostrados resultados para os mesmos procedimentos, mais os das amostras irradiadas com outros íons.

#### 4.1.1 **Caracterização magnética da amostra com espaçador de cobre**

Mostraremos primeiramente as curvas de histerese da amostra como-feita com espaçador de cobre de 0,75 nm com o campo aplicado em duas direções: na de maior  $H_{EB}$  ( $\phi_H = 0^\circ$ ) e de



$H_{EB}$  zero ( $\phi_H = 90^\circ$ )<sup>1</sup>.

No gráfico da figura 4.1, vemos que a curva da amostra como-feita tem um formato irregular, que é característico de um sistema FM-AF cuja interface apresenta regiões orientadas em direções opostas, causado pela interação FM-AF na interface durante a deposição <sup>(81, 82)</sup>.

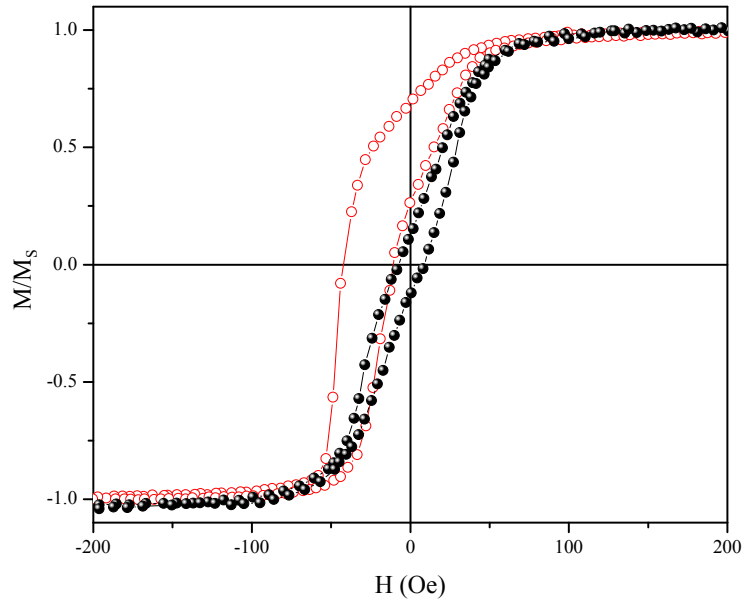


Figura 4.1: Curvas de magnetização para a amostra como-feita com espessura de cobre de 0,75 nm. O símbolo vazado indica  $\phi_H = 0^\circ$  e o símbolo cheio indica  $\phi_H = 90^\circ$ .

Além disso, a amostra como-feita já apresenta EB e isto pode ser explicado pela ação do campo do *magnetron* durante a deposição dos filmes, que já seria suficiente para orientar alguns domínios magnéticos na interface. Ajustes deste tipo de sistema são obtidos através de modelos que consideram distribuições de eixos na interface <sup>(74, 75)</sup>.

A figura 4.2 mostra curvas de histerese no eixo fácil das amostras como-feita e tratada termicamente. Percebemos redução na coercividade e que o  $H_{EB}$  permanece inalterado após o tratamento térmico <sup>(70)</sup>, o que pode ser explicado por uniformização da interface devido à imiscibilidade do Cu no Co e IrMn.

Uma vez conhecidos os resultados das amostras como-feita e tratada termicamente, mostraremos os dados das amostras irradiadas com íons (no apêndice deste trabalho se encontram figuras mostrando as curvas de histerese obtidas para tais amostras). Nestas últimas, primeiramente investigamos a influência da corrente com a qual a irradiação foi feita. A figura 4.3 mostra a variação angular do EB para cada amostra desta série, ou seja, o valor de  $H_{EB}$  extraído

<sup>1</sup>O ângulo  $\phi_H$  é definido como o ângulo do campo aplicado no AGFM com a direção de maior  $H_{EB}$

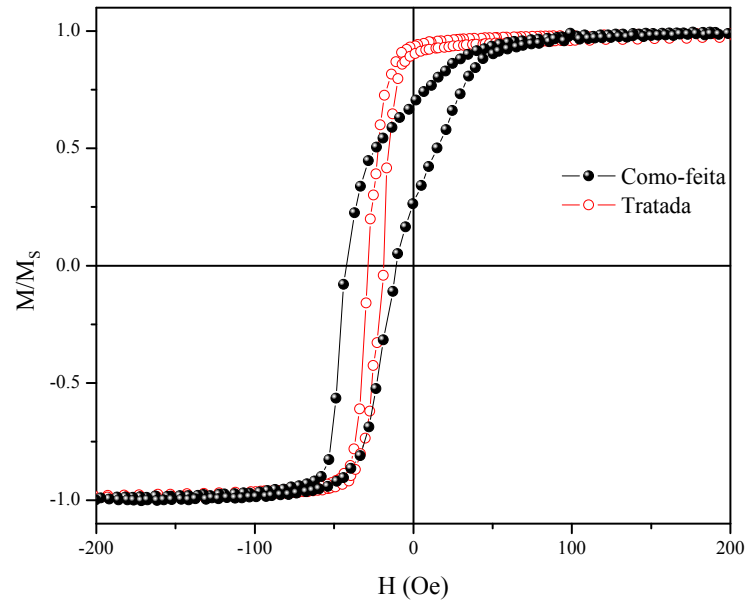


Figura 4.2: Curvas de histerese medidas no eixo fácil ( $\phi_H = 0^\circ$ ) das amostras como-feita e tratada termicamente com espaçador de cobre de 0,75 nm.

de cada curva de histerese, para cada ângulo de medida no AGFM de cada amostra.

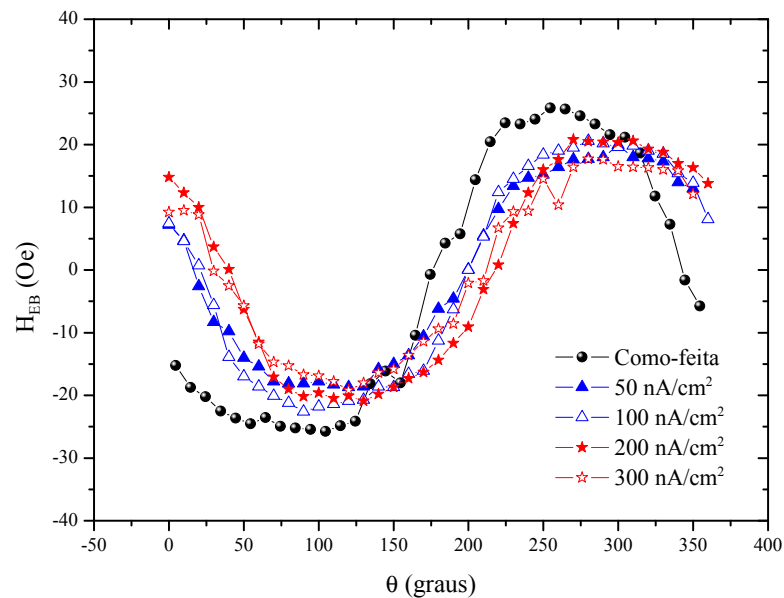


Figura 4.3: Variação angular do EB para as amostras irradiadas com fluência de  $1 \times 10^{14}$  íons/cm<sup>2</sup> e correntes variando entre 50 e 100 nA/cm<sup>2</sup>.

Os gráficos da figura 4.3 mostram que a irradiação à fluência de  $1 \times 10^{14}$  íons/cm<sup>2</sup> já

provoca uma pequena redução no EB, acompanhada de um leve deslocamento de fase de tais curvas, que indica uma reorientação do momentos interfaciais. Porém, uma vez que os íons são irradiados (uma vez que uma fluência de íons incide na amostra), a corrente não provoca efeitos substanciais (pelo menos no intervalo estudado). Assim, conclui-se que os efeitos de aquecimento macroscópico ou superposição das cascatas nucleares geradas pelos íons no tempo podem ser desprezadas ou, são mínimos.

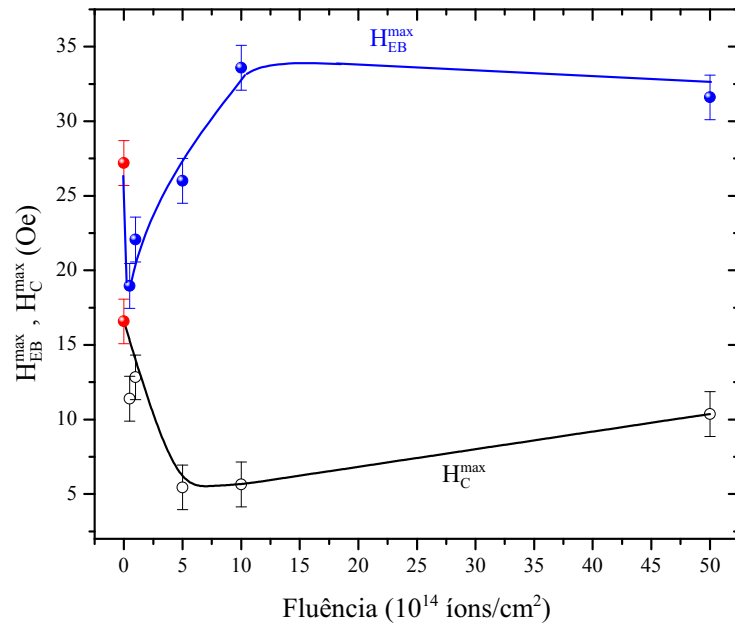


Figura 4.4: Valores máximo de  $H_{EB}$  (símbolo cheio em azul) e  $H_C$  (símbolo vazado em preto) como função da fluência dos íons irradiados. Os pontos em vermelho indicam os valores obtidos para a amostra como-feita.

A variação angular do  $H_{EB}$  para as amostras em que se manteve a corrente constante e a fluência variando é mostrada no apêndice deste trabalho. Podemos observar como o valor máximo do  $H_{EB}$  varia com a fluência na figura 4.4. Aqui vemos que para a fluência mais baixa ( $5 \times 10^{13}$  íons/cm<sup>2</sup>) há uma leve redução do  $H_{EB}$  e à medida que o valor da fluência cresce, este vai aumentando até chegar a um valor de saturação. A partir da fluência de  $1 \times 10^{15}$  íons/cm<sup>2</sup> o  $H_{EB}$  começa a reduzir com o aumento da fluência. Por outro lado, também vemos que o campo coercivo reduz à medida que a fluência aumenta.

O deslocamento da direção do EB pode ser visto na figura 4.5 (isto é medido pela figura da variação angular mostrada no apêndice). Nota-se neste gráfico que a direção do EB vai gradualmente mudando com a fluência, até 120 graus, ou seja, se reorienta na direção do campo aplicado durante a irradiação ( $H_{irr}$ ). A curva em vermelho mostra que a direção não se altera com a corrente, mantendo-se fluência constante.

Uma consequência direta deste experimento é que conseguimos obter com a irradiação iônica efeitos inacessíveis através do tratamento térmico (que vem sendo tradicionalmente usado para aumentar o EB ou iniciá-lo em sistemas que não apresentam naturalmente). No sistema IrMn/Cu/Co, o tratamento térmico não provocou nenhuma alteração no EB ao passo que a irradiação, com campo magnético aplicado, provocou um aumento de aproximadamente 30% com relação à amostra como-feita. Na amostra irradiada sem campo aplicado durante a irradiação houve apenas redução no  $H_{EB}$  da ordem de 8%.

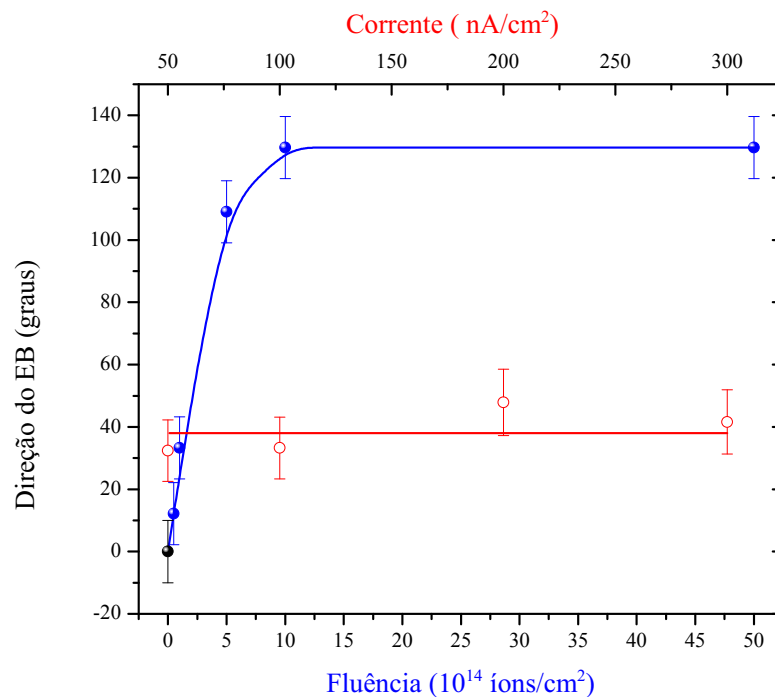


Figura 4.5: Direção do EB como função da fluência e da corrente dos íons irradiados. O símbolo vazio vermelho indica corrente e o símbolo cheio azul indica fluência. O ponto preto indica o valor obtido para a amostra como-feita.

Consideramos primeiramente quatro fatores como sendo os responsáveis pelas modificações magnéticas provocadas pela irradiação iônica. Três destes fatores contribuem para o aumento do  $H_{EB}$  e um para a diminuição. O fator que causa a diminuição do  $H_{EB}$  é a mistura e criação de defeitos na interface FM-AF, devido ao poder de freamento nuclear dos íons na amostra<sup>(20)</sup>. Este mecanismo se torna mais importante em fluências elevadas, o que explicaria o decréscimo gradual do EB para fluências a partir de  $1 \times 10^{15}$  íons/cm<sup>2</sup>. Este fator independe do  $H_{irr}$ , que explicaria também o decréscimo do  $H_{EB}$  para a amostra irradiada sem campo magnético aplicado.

Os três fatores que contribuem para o aumento do  $H_{EB}$  são: hiperaquecimento local, diluição

da camada AF por átomos não-magnéticos, e defeitos criados no volume do material AF. O hiperaquecimento local<sup>(83)</sup> teria um efeito análogo ao que se consegue com o tratamento térmico: a perda de energia dos íons durante a irradiação cede energia ao sistema, levando-o a um estado tal que seja capaz de vencer a barreira de energia AF, orientando seus momentos graças a presença do campo externo. Após a irradiação, a direção dos momentos AF na interface poderia desviar da direção do campo, no máximo, até a de um dos eixos cúbicos mais próximo do material AF.

O segundo fator levando ao aumento do  $H_{EB}$ , proposto por Miltényi e colaboradores<sup>(22)</sup>, seria a diluição no volume da camada AF por defeitos não magnéticos. Segundo os autores, esta diluição na presença de  $H_{irr}$  favoreceria a formação e estabilidade de paredes de domínio, devido à redução da barreira de energia para formação destas. Assim, as paredes de domínios passariam preferencialmente pelas regiões onde há defeitos não-magnéticos, levando a um aumento no  $H_{EB}$ . No nosso caso, átomos de cobre, inseridos no Ir/Mn via implantação por recuo, seriam os defeitos causados pela irradiação iônica.

Finalmente, o terceiro fator levando ao aumento do  $H_{EB}$  seria a criação de defeitos no material AF causada pelos íons. Ehresmann e colaboradores<sup>(84)</sup>, propuseram um modelo para explicar as modificações provocadas no EB pela irradiação iônica, baseados em trabalhos anteriores<sup>(42, 36)</sup>. Neste modelo, o  $H_{EB}$  depende de dois fatores: a anisotropia dos grãos AF (que dependem do volume magneticamente efetivo) e a área de contato efetiva na interface FM-AF. Segundo os autores, três regimes poderiam ser distinguidos: 1) um com grãos AF de forte anisotropia, que não mudariam sua direção devido à interação com o material FM, contribuindo para o EB; 2) grãos AF menores (com anisotropia menos forte), que poderiam mudar sua direção de anisotropia, devido ao acoplamento com a camada FM; 3) grãos pequenos o suficiente para que a desordem térmica seja importante. Assim os regimes 2) e 3) não contribuiriam para o EB. Neste contexto, a irradiação iônica poderia diminuir o volume magneticamente efetivo dos grãos AF e/ou reduzir sua anisotropia. Assim, após a irradiação, alguns momentos AF poderiam mudar termicamente suas direções, contribuindo para o aumento gradual do EB com o passar do tempo.

Ehresmann e colaboradores verificaram o efeito temporal medindo suas amostras novamente 20, 21 e 22 dias após as irradiações, e foi observado um aumento suave no  $H_{EB}$ . As amostras deste trabalho foram medidas novamente 3-6 meses após as irradiações e não foi observado aumento no  $H_{EB}$ , o que nos leva a acreditar que, no nosso sistema, o aumento no  $H_{EB}$  para fluências até  $1 \times 10^{15}$  íons/cm<sup>2</sup> não é atribuído a este fator.

### 4.1.2 Caracterização magnética da amostra sem espaçador

Com o objetivo de compreender melhor como a irradiação com íons afeta as propriedades magnéticas do nosso sistema, fizemos o mesmo procedimento anteriormente descrito, porém desta vez, sem o espaçador de Cu, a fim de investigar os possíveis efeitos provocados pela presença deste último. Se o efeito de diluição da camada AF for importante, a irradiação na amostra sem espaçador deve apresentar um aumento menor no EB que a amostra com espaçador.

Analogamente à secção anterior, mostraremos inicialmente as curvas de histerese da amostra como-feita sem espaçador para  $\phi_H = 0^\circ$  e  $\phi_H = 90^\circ$ , ilustradas na figura 4.6.

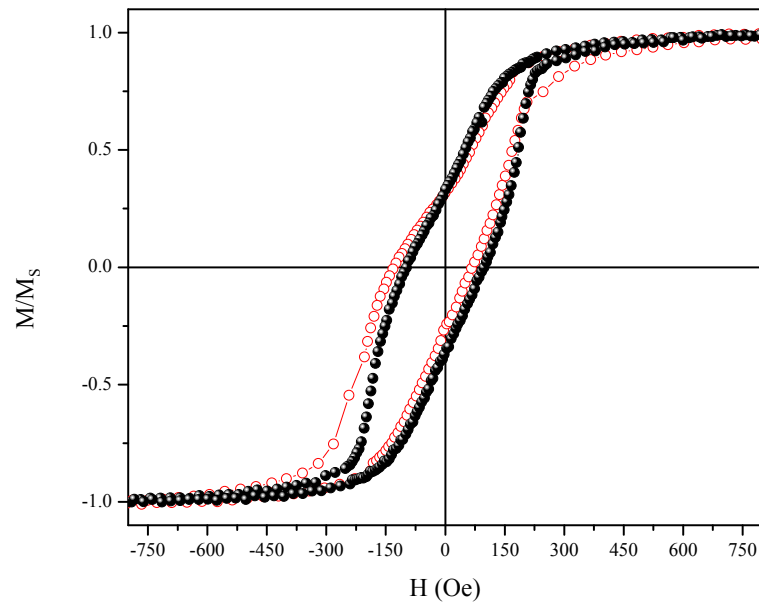


Figura 4.6: Curvas de histerese da amostra como-feita sem espaçador de cobre. O símbolo vazado indica  $\phi_H = 0^\circ$  e o símbolo cheio indica  $\phi_H = 90^\circ$ .

Assim como a amostra com espaçador de Cu, esta apresenta uma curva de histerese de forma irregular, característica de um sistema FM-AF cuja interface apresenta regiões orientadas em direções opostas<sup>(81, 82)</sup> (que pode ser modelada considerando distribuições de eixos na interface<sup>(74, 75)</sup>). A diferença que vemos é que esta curva apresenta um valor mais elevado de  $H_{EB}$  (da ordem de 30%) comparada à amostra com espaçador, o que é esperado, uma vez que sem o espaçador, os momentos FM orientam mais momentos na interface AF durante a deposição.

A amostra tratada termicamente teve um aumento de aproximadamente 4,5 vezes no  $H_{EB}$ , se comparada com a amostra como-feita. A figura 4.7 mostra curvas de histerese para  $\phi_H = 0^\circ$  destas duas amostras. Lembremos que este aumento não aconteceu para a amostra com

espaçador, devido à imiscibilidade do cobre na interface. Uma vez que aqui não temos o espaçador, obtemos o efeito esperado do tratamento térmico (ilustrado na figura 1.7).

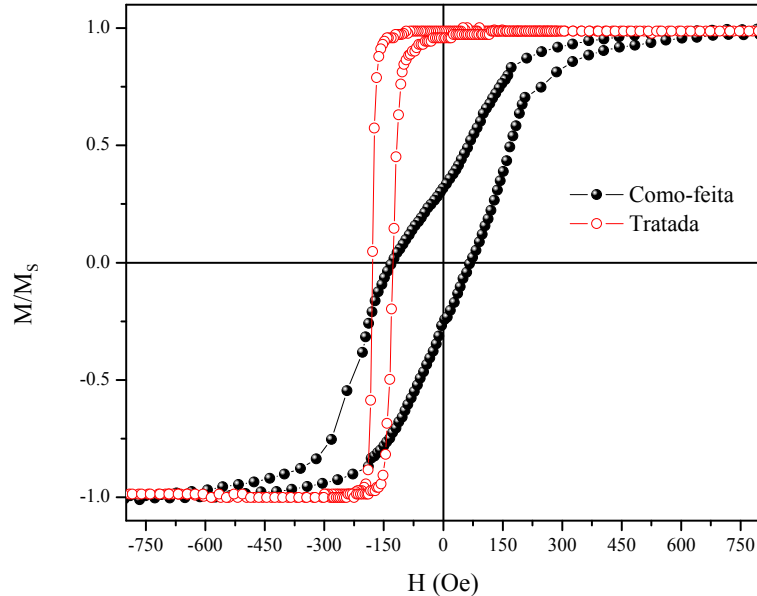


Figura 4.7: Amostras como-feita e tratada sem espaçador de cobre em  $\phi_H = 0^\circ$ . Os valores de  $H_{EB}$  são de  $\approx 150$  Oe para a amostra tratada termicamente comparado à  $\approx 33$  Oe da como-feita.

A figura 4.8 mostra os resultados de  $H_{EB}^{max}$  como função da corrente (obtidos da variação angular do  $H_{EB}$  para a série de amostras irradiadas com fluência constante e correntes variando, mostrado no apêndice deste trabalho). Observamos, que diferentemente das amostras com espaçador de cobre, estas aparentemente possuem um efeito resultante da corrente em  $300 \text{ nA/cm}^2$ , e para visualizarmos melhor este efeito, irradiamos mais uma amostra com corrente de  $600 \text{ nA/cm}^2$  (o que não havíamos feito para a série de amostras com espaçador de cobre). Assim, vemos que esse efeito de aumento do  $H_{EB}$  tende a desaparecer para correntes mais elevadas. Também observamos que já há uma completa reorientação do eixo de anisotropia da amostra na direção de  $H_{irr}$  para a fluência de  $1 \times 10^{14} \text{ íons/cm}^2$ , que para a amostra sem cobre, ocorre para fluências a partir de  $1 \times 10^{15} \text{ íons/cm}^2$ .

Os valores máximos de  $H_{EB}$  em função da fluência são mostrados na figura 4.9 (no apêndice encontra-se a figura que mostra a variação angular do  $H_{EB}$  como função da fluência dos íons irradiados). Aqui percebemos um comportamento análogo ao da amostra com espaçador de cobre (inclusive o valor máximo ocorre para a mesma fluência de  $1 \times 10^{15} \text{ íons/cm}^2$ ), porém a subida é mais rápida. Vemos também um comportamento análogo para o valor máximo do campo coercivo, que reduz gradualmente com o aumento da fluência.

A irradiação com fluência de  $7,5 \times 10^{13} \text{ íons/cm}^2$  foi feita para averiguar uma possível

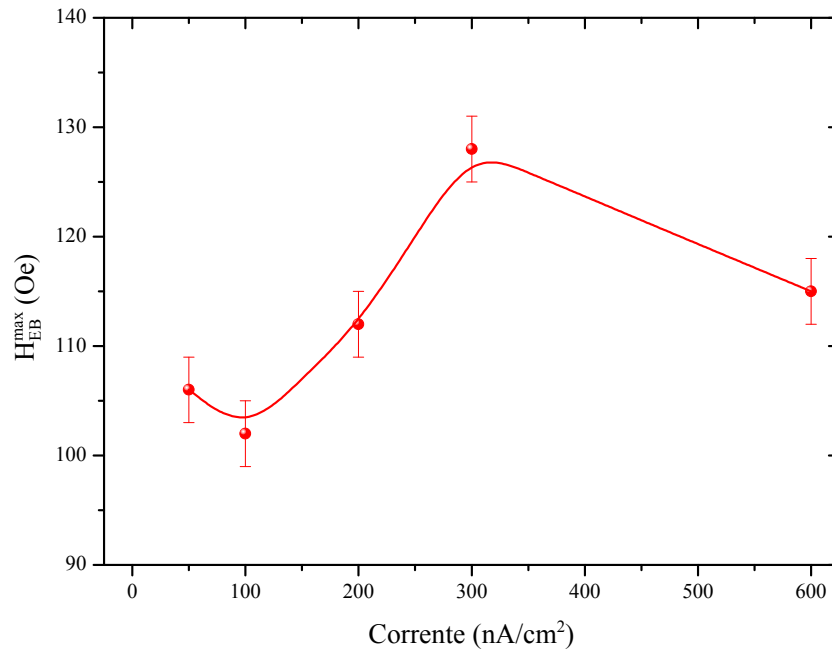


Figura 4.8: Valor máximo de  $H_{EB}$  como função da corrente dos íons irradiados.

transição de fase (que poderia estar ocorrendo entre as fluências de  $5 \times 10^{13}$  e  $1 \times 10^{14}$  íons/cm<sup>2</sup>), e o que vemos é uma subida rápida no  $H_{EB}^{max}$ , porém não abrupta.

A seguir, na figura 4.10, mostra-se a direção do EB em função da fluência e da corrente, e observamos novamente um comportamento análogo à amostra com espaçador de cobre: independência da direção com a corrente usada na irradiação e uma reorientação completa na direção de  $H_{irr}$ . Esta reorientação ocorre para fluências mais baixas que para a amostra com espaçador ( $7,5 \times 10^{13}$  íons/cm<sup>2</sup> contra  $1 \times 10^{15}$ ). Uma vez que se atinge uma excitação mínima para orientar os momentos AF na interface, na amostra sem espaçador, os momentos se orientam instantaneamente na direção do campo. Porém, na amostra com cobre, há pontos na interface em que o cobre impede o contato entre as camadas, impossibilitando a reorientação de todos.

Em resumo, nas irradiações da amostra sem espaçador, observamos um comportamento análogo à amostra com cobre, porém as modificações acontecem à fluências menores, ou são mais sensíveis a estas. Observamos nesta série de amostras um aumento do  $H_{EB}$  da ordem de 6,5 vezes para a amostra irradiada com fluência de  $1 \times 10^{15}$  íons/cm<sup>2</sup> contra 4,5 vezes da amostra tratada termicamente. Isto significa um aumento de quase 50% e reitera o fato de que conseguimos, através da irradiação, chegar a estados inacessíveis pelo tratamento térmico convencional.



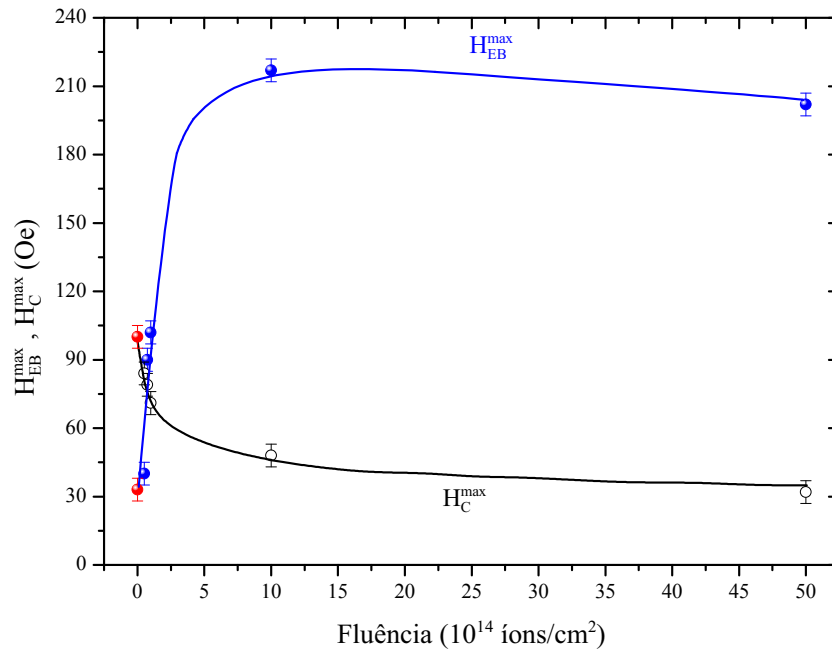


Figura 4.9: Valores máximos de  $H_{EB}$  (símbolo cheio em azul) e  $H_C$  (símbolo vazado em preto) como função da fluência dos íons irradiados. Os pontos vermelhos indicam os valores obtidos para a amostra como-feita.

O objetivo primordial desta série de irradiações era verificar o efeito do espaçador de cobre. Lembremos que havíamos obtido com a irradiação, na amostra sem espaçador, um aumento de 30% no  $H_{EB}$  e que se o efeito de diluição da camada AF fosse importante, a amostra sem espaçador deveria ter um aumento menor comparada com a primeira. Como observamos um aumento de mais de 600% na amostra sem espaçador, chegamos à conclusão que este efeito não é importante no nosso sistema.

Os outros possíveis processos físicos que levariam à modificação do EB neste trabalho, citados no final da secção anterior, ainda permanecem a ser investigados. Lembrando que são: hiperaquecimento local, criação de defeitos e modificações no material AF.

Cabe ressaltar aqui, que apesar de anteriormente atribuirmos a diminuição do EB aos defeitos, podemos observar um fenômeno interessante olhando para as figuras 4.8 e 4.10. Para fluência de  $7,5 \times 10^{13}$  íons/cm<sup>2</sup>, a amostra já obteve completa reorientação na direção de  $H_{irr}$  mas apesar de todos os momentos estarem orientados na interface, o  $H_{EB}$  não chega a um valor de saturação e continua aumentando com a fluência. Isto poderia ser explicado se pensarmos que os defeitos teriam dois regimes de modificação: um de aumento do EB devido à indução de rugosidade na interface ou criação de defeitos no AF, e outro de redução do EB, que ocorreria para fluências elevadas causando a destruição da interface e do material AF.

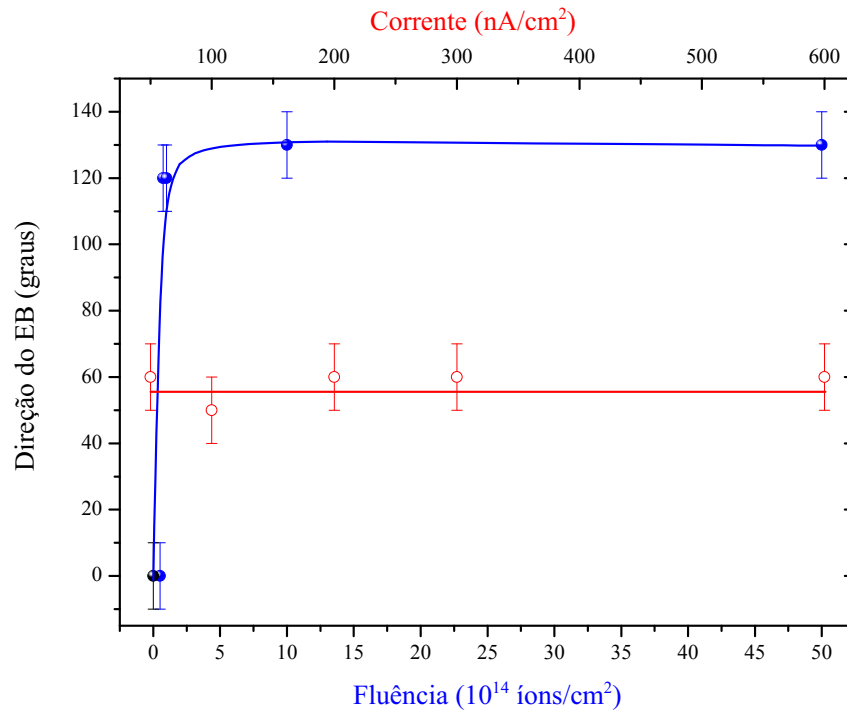


Figura 4.10: Direção do EB como função da corrente e da fluência dos íons irradiados: o símbolo cheio em azul indica a dependência com a fluência e o símbolo vazado em vermelho com a corrente. O ponto preto indica o valor obtido para a amostra como-feita.

Na próxima secção, através da irradiação com outros íons, tentaremos entender melhor como e quais dos processos físicos que ocorrem durante o procedimento, são responsáveis pelos fenômenos observados até então.

### Irradiações com outros íons

Com o objetivo de entender melhor como os efeitos observados nas irradiações anteriores estariam afetando o EB, as amostras sem cobre foram irradiadas com outros íons. Foram escolhidas as amostras sem espaçador para eliminar os possíveis efeitos provocados por este último (já descartando a diluição), uma vez que este impede o contato entre o material FM e o AF na interface.

Estas irradiações foram feitas conforme já descrito na secção 3.2. As simulações nos deram valores de: fônons gerados, átomos intersticiais, excitação eletrônica e defeitos. A tabela 4.1 mostra as irradiações feitas e os parâmetros obtidos das simulações, normalizados.

EFEITOS GERADOS					
Amostra	Defeitos	Excitação	Fônons	Intersticiais	$H_{EB}$
$\text{He}^+ 5 \times 10^{13}$	0,01	0,005	0,01	0,01	44
$\text{H}^+ 1,1 \times 10^{15}$	0,02	0,1	0,045	0,0148	80
$\text{He}^+ 7,5 \times 10^{13}$	0,015	0,008	0,015	0,015	90
$\text{Ne}^+ 4,7 \times 10^{12}$	0,02	0,0027	0,003	0,016	92
$\text{He}^+ 1 \times 10^{14}$	0,02	0,01	0,02	0,02	98
$\text{H}^+ 4,8 \times 10^{15}$	0,08	0,44	0,02	0,07	153
$\text{Ne}^+ 4 \times 10^{13}$	0,17	0,012	0,023	0,14	172
$\text{He}^+ 5 \times 10^{15}$	1	0,53	1	1	195
$\text{He}^+ 1 \times 10^{15}$	0,2	0,1	0,2	0,2	217
$\text{H}^+ 1,1 \times 10^{16}$	0,2	1	0,45	0,148	217

Tabela 4.1: Tabela mostrando os efeitos provocados por irradiações com íons e fluências diversas.

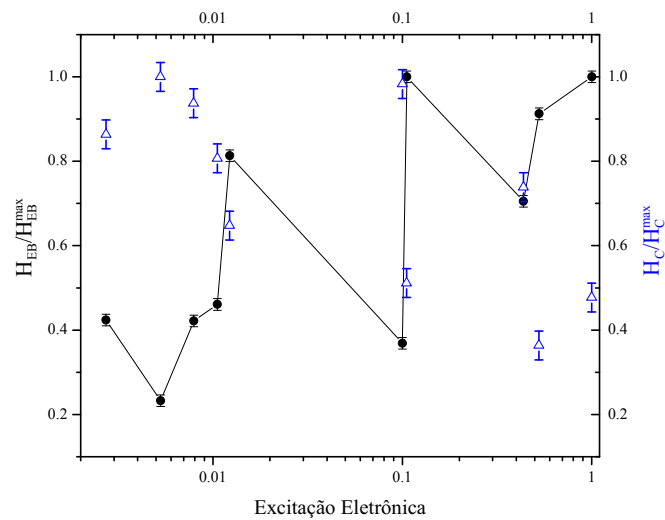


Figura 4.11:  $H_{EB}$  (símbolo cheio em preto) e  $H_C$  (símbolo vazado em azul) em função da excitação eletrônica provocada pelos íons. Todas as grandezas estão normalizadas pelos respectivos valores máximos.

Após estas irradiações, as amostras foram medidas no AGFM da mesma maneira que as amostras anteriores: com campo aplicado magnético aplicado no plano, variando a direção de 10 em 10 graus. Daí obtemos uma curva da variação angular do  $H_{EB}$  e  $H_C$ , e finalmente os valores máximos de cada grandeza.

A figura 4.11 mostra a excitação eletrônica normalizada com relação ao valor máximo. Vemos que aparentemente não há um comportamento monótono com relação a este efeito, os

valores de  $H_{EB}$  e  $H_C$  variam bastante com o aumento da excitação. Portanto não tiramos nenhuma conclusão reveladora deste gráfico.

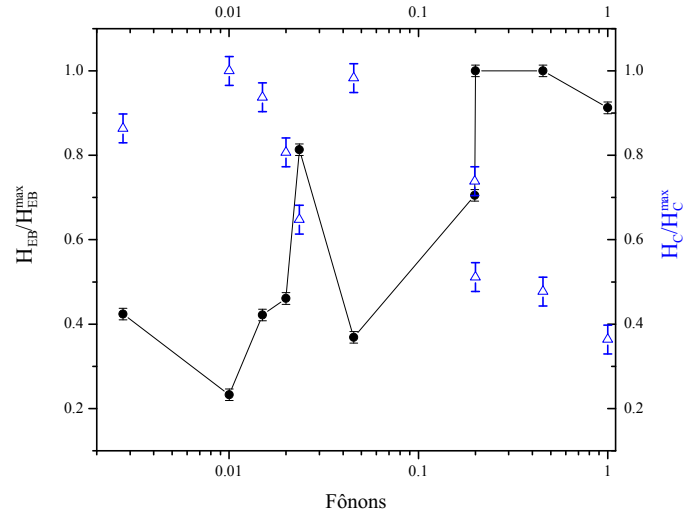


Figura 4.12:  $H_{EB}$  (símbolo cheio em preto) e  $H_C$  (símbolo vazado em azul) em função dos fônons gerados pelos íons. Todos as grandezas estão normalizadas pelos respectivos valores máximos.

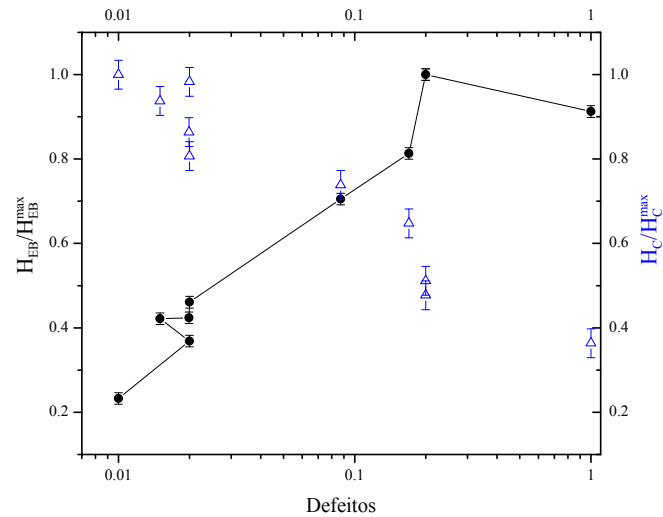


Figura 4.13:  $H_{EB}$  (símbolo cheio em preto) e  $H_C$  (símbolo vazado em azul) em função dos defeitos provocados pelos íons. Todos as grandezas estão normalizadas pelos respectivos valores máximos.

Os efeitos dos fônons gerados podem ser vistos na figura 4.12. Observamos que os valores de  $H_{EB}$  e  $H_C$  ainda variam muito com esta grandeza não permitindo obter conclusões claras.

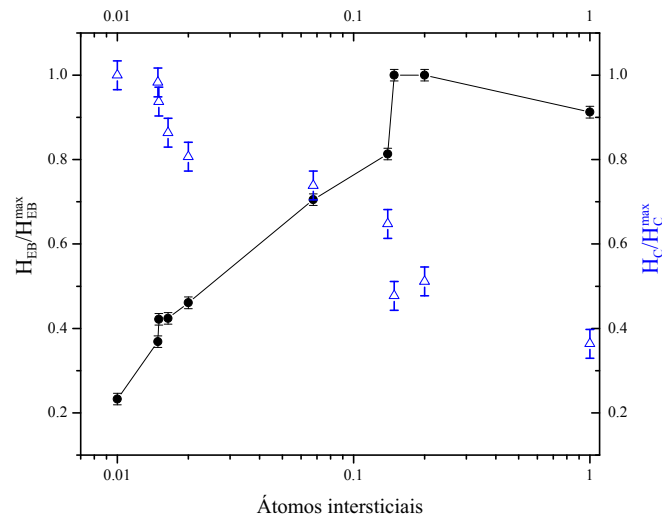


Figura 4.14:  $H_{EB}$  (símbolo cheio em preto) e  $H_C$  (símbolo vazado em azul) em função dos átomos intersticiais gerados pelos íons. Todas as grandezas estão normalizadas pelos respectivos valores máximos.

Por outro lado, se olharmos para os gráficos das figuras 4.13 e 4.14, vemos um comportamento razoavelmente monótono: a medida que os defeitos e átomos intersticiais aumentam, o  $H_{EB}$  aumenta, chegando a um valor de saturação e então começa a reduzir. Este comportamento é mais claro no gráfico dos intersticiais, uma vez que o poder de freamento nuclear não provoca somente defeitos, mas também fônons. Assim chegamos a uma conclusão preliminar de que o hiperaquecimento local não é o fator importante mas sim defeitos (que podem ser tanto no material AF quanto na interface).

Partindo deste resultado, poderíamos explicar o efeito de corrente que apareceu na amostra sem espaçador: durante a irradiação basicamente temos dois efeitos que competem: a produção de defeitos e o recozimento destes (*dynamical annealing*). Os defeitos levariam a um aumento do EB e o recozimento levaria à relaxação do sistema (que causaria diminuição do EB se defeitos fossem o fator relevante). À medida que a corrente aumenta, este recozimento se torna mais importante, causando então a redução do  $H_{EB}$  para correntes acima de 300 nA/cm<sup>2</sup>.

### 4.1.3 Discussões

Os resultados deste trabalho mostraram primeiramente que com a irradiação iônica conseguimos efeitos inacessíveis através do tratamento térmico: a saber, obtivemos um aumento do  $H_{EB}$  de 30% para a amostra com espaçador de cobre e de 650% para a amostra sem espaçador, o que representa relativamente ao tratamento térmico um aumento de 30% e 50%, respecti-

vamente. Junto a isto, houve também uma completa reorientação do eixo de anisotropia das amostras na direção do campo magnético aplicado durante a irradiação.

Constatamos que o efeito da diluição da camada AF por defeitos não magnéticos não é importante no nosso sistema, uma vez que a irradiação da amostra sem espaçador teve um maior aumento do  $H_{EB}$  comparada à amostra com espaçador. Este efeito pode não ter sido importante porque, segundo o modelo de Miltényi e colaboradores, os defeitos não magnéticos devem estar longe da interface, dentro da camada AF, e as irradiações que fizemos conseguem apenas deslocar os átomos de cobre muito próximos da interface. De acordo com dados de simulações numéricas<sup>(55)</sup>, os deslocamentos de átomos de cobre na interface ocorrem a uma distância máxima de três a quatro diâmetros atômicos.

Os dados das amostras da série sem espaçador irradiadas com hélio mostraram um rápido crescimento do  $H_{EB}$  com a fluência e que mesmo com a direção dos momentos na interface estar saturada, o valor continua crescendo. Com objetivo de verificar os fatores que poderiam causar as modificações observadas até então, fizemos irradiações com outros íons onde analisamos o comportamento do  $H_{EB}$  em função de alguns efeitos gerados durante o processo de irradiação iônica: fônons, excitação eletrônica, defeitos e átomos intersticiais.

Com base nas irradiações feitas com outros íons percebemos que não há uma relação clara das modificações no  $H_{EB}$  observadas com a excitação eletrônica e fônons, ao contrário do que se vê em relação aos defeitos e átomos intersticiais. Partindo do ponto que os defeitos gerados são os principais responsáveis pelas modificações no  $H_{EB}$ , conseguimos explicar o comportamento observado na série de amostras irradiadas com a corrente variando: à medida que a corrente aumenta, o efeito de recozimento também aumenta, o que diminui o número de defeitos criados. E se estes últimos contribuem para o aumento do  $H_{EB}$ , uma redução nos defeitos gerados causaria a queda observada para correntes acima de 300 nA/cm<sup>2</sup>.

Para explicar a relação dos defeitos criados com as modificações no EB observadas, nos inspiramos no modelo de O'Grady e colaboradores<sup>(38)</sup>. Neste modelo, os autores atribuem o exchange bias à interação entre momentos dos grãos AF na interface (supostos não interagentes entre si) e os FM. Porém, dependendo do tamanho do grão AF, sua contribuição para o EB pode ou não existir: grãos grandes, tipo 1, (com um volume  $V > V_{set}$ ) teriam anisotropia muito forte para serem orientados durante um procedimento de resfriamento em campo; grãos muito pequenos, tipo 3 (com um volume  $V < V_c$ ), seriam termicamente instáveis, não contribuindo para o EB. Assim haveria um tamanho intermediário de grão, tipo 2, que seria capaz de contribuir para que a interação ocorra.

As amostras deste trabalho são depositadas por magnetron sputtering, e é sabido que neste

tipo de procedimento formam-se filmes granulares. Assim, a irradiação iônica poderia estar "quebrando" estes grãos em outros menores. A figura 4.15 mostra uma representação deste efeito.

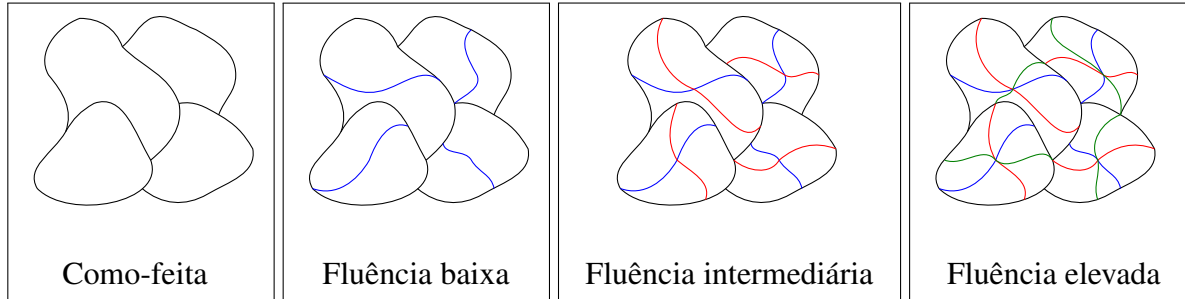


Figura 4.15: Ilustração do efeito da irradiação sobre os grãos do material antiferromagnético.

Para fluências baixas, alguns grãos do tipo 1 poderiam quebrar-se em grãos do tipo 2, o que explicaria o aumento do  $H_{EB}$  com a fluência. Porém, para fluências elevadas, a distribuição de grãos tenderia mais para tipo 3, grãos termicamente instáveis, o que explicaria a queda do  $H_{EB}$  para fluências acima de  $1 \times 10^{15}$  íons/cm<sup>2</sup>.

Além disso, dois mecanismos de reversão da magnetização estariam competindo para tamanhos de grãos distintos: para os grandes, predominaria a rotação de paredes de domínio, e para os menores, rotação coerente. Assim teríamos ainda uma subclassificação nos grãos do tipo 2 (que contribuem para o EB): grãos intermediários, mas grandes o suficiente para que se forme paredes de domínio, e outros menores que podem apenas sofrer rotação coerente. A energia requerida para a formação da parede de domínio impõe um limite superior para a energia de troca, resultando em valores de  $H_{EB}$  menores que aqueles em que se assume rotação coerente dos momentos na interface.

Este modelo intuitivo nos permite entender com mais clareza os resultados observados e também explicar as diferenças entre o tratamento térmico e a irradiação iônica. Enquanto o primeiro basicamente orienta a interface, o segundo faz o mesmo porém também tem a capacidade de alterar a estrutura de grãos.

Cabe ressaltar que, de acordo com este modelo, as modificações provocadas pela irradiação são bastante dependentes da distribuição de tamanho de grãos original do material AF. Se esta última camada não for muito espessa, constituída principalmente de grãos do tipo 2, espera-se uma redução do EB com a irradiação (o que é relatado também literatura).

As modificações no campo coercivo são mostradas neste trabalho, e vemos sempre uma redução no valor de  $H_C$  perante a irradiação iônica. A explicação para este efeito é mais com-

plexa, pois o  $H_C$  depende tanto da estrutura do material FM quanto do EB. Assim, é fundamental entender claramente as modificações no EB, para então tentar explicar as do campo coercivo.

Dentre as perspectivas futuras deste trabalho está a determinação experimental da distribuição de tamanhos de grãos no material AF, a fim de ajustar estes dados experimentais com um modelo análogo ao de O'Grady e colaboradores. Após isto, também pode-se estudar as modificações na estrutura do material FM a fim de explicar as modificações observadas no campo coercivo.



## 5 *Conclusões*

Nesta dissertação de mestrado foi apresentado e discutido o estudo da irradiação iônica e tratamentos térmicos sobre o exchange bias de filmes de IrMn/Cu/Co. Foram analisados primeiramente a influência da corrente e fluência utilizadas nas irradiações e posteriormente a influência do espaçador não-magnético. Os efeitos provocados durante o procedimento de irradiação iônica foram verificados através da irradiação com outros íons.

Obtivemos através da irradiação iônica aumento do  $H_{EB}$  de acordo com a fluência nas amostras com e sem espaçador de cobre, sendo que o aumento é mais rápido com a fluência, na segunda série de amostras. Explica-se isto pelo número de pontos de contato direto na interface ser menor na amostra com espaçador. Juntamente ao aumento do  $H_{EB}$ , observou-se reorientação da direção do eixo de anisotropia das amostras na direção do campo magnético aplicado durante as irradiações, que novamente ocorreu mais rapidamente para a amostra sem espaçador.

Com base nas irradiações com outros íons e dados de simulações de interação de íons com a matéria, obtivemos uma análise das modificações do  $H_{EB}$  como função dos efeitos gerados durante a irradiação. Observamos que há uma relação direta das modificações observadas com o dano estrutural causado pelos íons. Este último modificaria a estrutura de grãos no material AF, levando a uma maior contribuição para o EB. A queda no  $H_{EB}$  para fluências elevadas é explicada pela formação de grãos AF muito pequenos, de modo a serem termicamente instáveis e não contribuírem para o EB.

O comportamento observado do  $H_{EB}$  como função da corrente utilizada nas irradiações, mostra que há um máximo, em  $300 \text{ nA/cm}^2$  para a amostra sem espaçador (não é observada modificação com a corrente na série com espaçador). Baseados na teoria de que os defeitos são responsáveis pelo aumento do  $H_{EB}$ , explicamos este fenômeno tendo em mente que dois efeitos competem dinamicamente: a criação de defeitos e o recozimento. Uma vez que este último cresce à medida que a corrente aumenta, acaba diminuindo o número de defeitos formados, explicando a queda no  $H_{EB}$  para correntes maiores que  $300 \text{ nA/cm}^2$ .

A irradiação mostrou ser capaz de obter estados inacessíveis através do tratamento térmico.

Observamos um aumento no  $H_{EB}$  das amostras irradiadas: 30% maior que a tratada termicamente e 30% em relação à amostra como-feita, para a amostra com espaçador de cobre; 50% maior que a tratada termicamente e 650% em relação à amostra como-feita, para a amostra sem espaçador de cobre.

Observamos em todas as amostras redução do campo coercivo. Este último depende tanto das modificações no EB quanto na própria estrutura do material FM. Portanto, para explicar as modificações no  $H_C$ , devemos ter primeiramente uma explicação completa para as modificações no EB, que é uma das perspectivas futuras deste trabalho.

Como consequência deste trabalho foi publicado um artigo em periódico arbitrado:

- Schafer, D.; Geshev J.; Nicolodi S.; Pereira, L. G.; Schmidt, J. E.; Grande, P. L. *Controlled rotation of exchange-bias direction in IrMn/Cu/Co via ion irradiation* **Applied Physics Letters**, v. 93, p. 042501 (2008)

## *Referências Bibliográficas*

- 1 BAIBICH, M. N. et al. Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnetic superlattices. **Physical Review Letters**, v. 61, n. 21, p. 2472, 1988.
- 2 MEIKLEJOHN, W. H.; BEAN, C. P. New magnetic anisotropy. **Phys. Rev.**, v. 102, n. 5, p. 1413, 1956.
- 3 CHAPPERT, C. et al. Planar patterned magnetic media obtained by ion irradiation. **Science**, v. 280, n. 5371, p. 1919, 1998.
- 4 FASSBENDER, J. et al. Structural and magnetic modifications of Cr-implanted permalloy. **Physical Review B**, v. 73, n. 18, p. 184410, 2006.
- 5 FA, T.; XIANG, Q. P.; YAO, S. D. Fabrication of Co/CoO exchange bias system by ion implantation and its magnetic properties. **Chinese Physics Letters**, v. 26, p. 126101, 2009.
- 6 DEMETER, J. et al. Exchange bias by implantation of O ions into Co thin films. **Applied Physics Letters**, v. 96, n. 13, p. 132503, 2010.
- 7 RAVELOSONA, D. et al. Chemical order induced by ion irradiation in FePt (001) films. **Applied Physics Letters**, v. 76, n. 2, p. 236, 2000.
- 8 BERNAS, H. et al. Ordering intermetallic alloys by ion irradiation: A way to tailor magnetic media. **Physical Review Letters**, v. 91, n. 7, p. 077203, 2003.
- 9 LAI, C.-H.; YANG, C.-H.; CHIANG, C. C. Ion-irradiation-induced direct ordering of L1<sub>0</sub> FePt phase. **Applied Physics Letters**, v. 83, n. 22, p. 4550, 2003.
- 10 YANG, C.-H.; LAI, C.-H.; CHIANG, C. Low-ordering-temperature fabrication of FePt by ion irradiation. **IEEE Transactions on Magnetism**, v. 40, n. 4, p. 2519, 2004.
- 11 HELLOWIG, O. et al. Magnetic patterning of chemically-ordered CrPt<sub>3</sub> films. **Applied Physics Letters**, v. 79, n. 8, p. 1151, 2001.
- 12 FASSBENDER, J. et al. Mixing and subsequent amorphization of ultrathin Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>/Ta bilayers by 30keV Ni implantation. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B**, v. 248, n. 2, p. 343, 2006.
- 13 CHANG, G. S. et al. Realization of a large magnetic moment in the ferromagnetic CoPt bulk phase. **Physical Review Letters**, v. 87, n. 6, p. 067208, 2001.
- 14 DEMOKRITOV, S. O. et al. Control of interlayer exchange coupling in Fe/Cr/Fe trilayers by ion beam irradiation. **Physical Review Letters**, v. 90, n. 9, p. 097201, 2003.
- 15 FASSBENDER, J. et al. Ion irradiation of exchange bias systems for magnetic sensor applications. **Applied Physics A**, v. 77, n. 1, p. 51, 2003.

- 16 ENGEL, D. et al. Soft X-ray resonant magnetic reflection investigations of FeMn/Co/Cu/Co spin valves modified by He-ion bombardment. **Physica B**, v. 345, n. 1-4, p. 185, 2004.
- 17 ENGEL, D. et al. Alteration of exchange anisotropy and magnetoresistance in Co/Cu/Co/FeMn spin valves by ion bombardment. **Journal of Applied Physics**, v. 94, n. 9, p. 5925, 2003.
- 18 POPE, S.; FASSBENDER, J.; HILLEBRANDS, B. On the mechanism of ion irradiation-enhanced exchange bias. **Europhysics Letters**, v. 2, 2003.
- 19 ENGEL, D. et al. Exchange anisotropy modification in NiO/NiFe bilayers by ion bombardment. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 263, n. 3, p. 275, 2003.
- 20 MEWES, T. et al. Suppression of exchange bias by ion irradiation. **Applied Physics Letters**, v. 76, n. 8, p. 1057, 2000.
- 21 MOUGIN, A. et al. Modification of the exchange bias effect by He ion irradiation. **IEEE Transactions on Magnetics**, v. 36, n. 5, p. 2647, 2000.
- 22 MILTÉNYI, P. et al. Diluted antiferromagnets in exchange bias: Proof of the domain state model. **Physical Review Letters**, v. 84, n. 18, p. 4224, 2000.
- 23 LAI, C.-H. et al. Effects of structure and ion irradiation on the exchange field of NiFe/NiMn. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 239, n. 1-3, p. 390 – 395, 2002.
- 24 YANG, C. H.; LAI, C.-H.; MAO, S. Reversing exchange fields in CoFe/PtMn and CoFe/IrMn bilayers by carbon field irradiation. **Journal of Applied Physics**, v. 93, n. 10, p. 6596, 2003.
- 25 CICHELERO, R. et al. Engineering double-shifted hysteresis loops in Co/IrMn/Cu/Co films. **Applied Physics Letters**, v. 95, n. 11, p. 112501, 2009.
- 26 CULLITY, B. D. **Introduction to Magnetic Materials**. Massachusetts: Addison Wesley, 1972.
- 27 CHIKAZUMI, S. **Physics of Magnetism**. New York: Robert E. Krieger, 1978.
- 28 NOGUÉS, J.; SCHULLER, I. K. Exchange bias. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 192, n. 2, p. 203 – 232, 1999.
- 29 MEIKLEJOHN, W. H.; BEAN, C. P. New magnetic anisotropy. **Physical Review**, v. 105, n. 3, p. 904, 1957.
- 30 MEIKLEJOHN, W. H. Exchange anisotropy – a review. **Journal of Applied Physics**, v. 33, n. 3, p. 1328, 1962.
- 31 NEUGEBAUER, C. A.; NEWKIRK, J. B.; VERMILYEA, D. A. E. **Structure and Properties of Thin Films**. New York: John Wiley & Sons, 1959.
- 32 LEIGHTON, C. et al. Coercivity enhancement in exchange biased systems driven by interfacial magnetic frustration. **Physical Review Letters**, v. 84, n. 15, p. 3466–3469, 2000.

- 33 HOU, C.; FUJIWARA, H.; ZHANG, K. Structural origin of coercivity enhancement and exchange-bias field in double antiferromagnet/ferromagnet bilayers. **Applied Physics Letters**, v. 76, p. 3974, 2000.
- 34 TSANG, C.; LEE, K. Training effect of exchange-bias bilayers within the domain state model. **Journal of Applied Physics**, v. 53, p. 2605, 1982.
- 35 BITERNAS, A. G.; NOWAK, U.; CHANTRELL, R. W. Training effect of exchange-bias bilayers within the domain state model. **Physical Review B**, v. 80, n. 13, p. 134419, 2009.
- 36 FULCOMER, E.; CHARAP, S. H. Temperature and frequency dependence of exchange anisotropy effects in oxidized NiFe films. **Journal of Applied Physics**, v. 43, p. 4184, 1972.
- 37 MORAN, T. J.; GALLEGO, J. M.; SCHULLER, I. K. Increased exchange anisotropy due to disorder at permalloy/CoO interfaces. **Journal of Applied Physics**, v. 78, p. 1887, 1995.
- 38 GRADY, K. O.; FERNADEZ-OUTON, L. E.; VALLEJO-FERNANDEZ, G. A new paradigm for exchange bias in polycrystalline films. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 322, p. 883, 2010.
- 39 KIWI, M. Exchange bias theory. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 234, n. 3, p. 584 – 595, 2001.
- 40 BERKOWITZ, A. E.; TAKANO, K. Exchange anisotropy – a review. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 200, n. 1-3, p. 552 – 570, 1999.
- 41 NÉEL, L. Ferro-antiferromagnetic coupling in thin layers. **Annals of physics**, v. 2, p. 61, 1967.
- 42 FULCOMER, E.; CHARAP, S. H. Thermal fluctuation aftereffect model for some systems with ferromagnetic-antiferromagnetic coupling. **Journal of Applied Physics**, v. 43, p. 4190, 1972.
- 43 MAURI, D. et al. Simple model for thin ferromagnetic films exchange coupled to an antiferromagnetic substrate. **Journal of Applied Physics**, v. 62, p. 3047, 1987.
- 44 MALOZEMOFF, A. P. Random field model of exchange anisotropy at rough ferromagnetic-antiferromagnetic. **Physical Review B**, v. 35, p. 3679, 1987.
- 45 KOON, N. C. Calculations of exchange bias in thin films with ferromagnetic/antiferromagnetic interfaces. **Physical Review Letters**, v. 78, p. 4865, 1997.
- 46 SCHULTHESS, T. C.; BUTLER, W. H. Consequences of spin-flop coupling in exchange biased films. **Physical Review Letters**, v. 81, p. 4516, 1998.
- 47 SCHULTHESS, T. C.; BUTLER, W. H. Coupling mechanisms in exchange bias films (invited). **Journal of Applied Physics**, v. 85, p. 5510, 1999.
- 48 STILES, M. D.; MCMICHAEL, R. D. Model for exchange bias in polycrystalline ferromagnet-antiferromagnet bilayers. **Physical Review B**, v. 59, p. 3722, 1999.
- 49 STILES, M. D.; MCMICHAEL, R. D. Temperature dependence of exchange bias in polycrystalline ferromagnet-antiferromagnet bilayers. **Physical Review B**, v. 60, p. 12950, 1999.

- 50 STILES, M. D.; MCMICHAEL, R. D. Coercivity in exchange-bias bilayers. **Physical Review B**, v. 63, p. 064405, 2001.
- 51 NOWAK, U. et al. Domain state model for exchange bias I: Theory. **Physical Review B**, v. 64, n. 6, p. 014430, 2002.
- 52 SCHOLTEN, G.; USADEL, K. D.; NOWAK, U. Coercivity and exchange bias of ferromagnetic/antiferromagnetic multilayers. **Physical Review B**, v. 71, n. 6, p. 064413, 2005.
- 53 SAHA, J.; VICTORA, R. H. Large scale micromagnetic simulation for the exchange interaction between a polycrystalline antiferromagnet and a ferromagnet. **Physical Review B**, v. 73, n. 10, p. 104433, 2006.
- 54 CHOO, D. et al. A model of the magnetic properties of coupled ferromagnetic/antiferromagnetic bilayers. **Journal of Applied Physics**, v. 101, p. 09E521, 2007.
- 55 ZIEGLER, J. F.; BIERSACK, J. P.; ZIEGLER, M. D. **SRIM - The Stopping and Range of Ions in Matter**. Software. Disponível em: <[www.srim.org](http://www.srim.org)>.
- 56 THOMSON, J. J. Ionization by moving electrified particles. **Philosophical Magazine Series 6**, v. 23, p. 449, 1912.
- 57 DARWIN, C. G. A theory of the absorption and scattering of the  $\alpha$  rays. **Philosophical Magazine Series 6**, v. 23, p. 901, 1912.
- 58 BOHR, N. On the theory of the decrease of velocity of moving electrified particles on passing through matter. **Philosophical Magazine Series 6**, v. 25, p. 10, 1913.
- 59 BETHE, H. A. Theory of the passage of fast corpuscular rays through matter. **Annals Physik**, v. 5, p. 325, 1930.
- 60 ARISTA, N. Energy loss of ions in solids: Non-linear calculations for slow and swift ions. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B**, v. 195, p. 91, 2002.
- 61 FERMI, E. The ionization loss of energy in gases and in condensed materials. **Physical Review**, v. 57, n. 6, p. 485, 1940.
- 62 FERMI, E.; TELLER, E. The capture of negative mesotrons in matter. **Physical Review**, v. 72, n. 5, p. 399, 1947.
- 63 ABRIL, I. et al. Dielectric description of wakes and stopping powers in solids. **Physical Review A**, v. 58, p. 357, 1998.
- 64 SCHIWIEZ, G. Coupled-channel calculation of stopping powers for intermediate-energy light ions penetrating atomic H and He targets. **Physical Review A**, v. 42, n. 1, p. 296, 1990.
- 65 GRANDE, P. L.; SCHIWIEZ, G. Impact-parameter dependence of electronic energy loss and straggling of incident bare ions on H and He atoms by using the coupled-channel method. **Physical Review A**, v. 44, n. 5, p. 2984, 1991.
- 66 GRANDE, P. L.; SCHIWIEZ, G. Nonperturbative stopping-power calculation for bare and neutral hydrogen incident on he. **Physical Review A**, v. 47, n. 2, p. 1119, 1993.

- 67 GRANDE, P.; SCHIWIEZ, G. The unitary convolution approximation for heavy ions. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B**, v. 195, p. 55, 2002.
- 68 SCHIWIEZ, G.; GRANDE, P. **CasP - Convolution Approximation for Swift Particles**. Software. Disponível em: <<http://www.hmi.de/people/schiwietz/casp%-.html>>.
- 69 SIGMUND, P.; SCHINNER, A. Binary stopping theory for swift heavy ions. **The European Physical Journal D - Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics**, v. 12, n. 3, p. 425, 2000.
- 70 OLIVEIRA, S. N. de. **Exchange Bias em filmes de IrMn/Cu/Co**. Dissertação (Mestrado) — Universidade Federal do Rio Grande do Sul, 2007.
- 71 FUKU, H. N. et al. Spin-valve giant magnetoresistive films with antiferromagnetic Ir-Mn layers. **Journal of Applied Physics**, v. 81, n. 8, p. 4004, 1997.
- 72 ALI, M. et al. Antiferromagnetic layer thickness dependence of the IrMn/Co exchange-bias system. **Physical Review B**, v. 68, p. 214420, 2003.
- 73 SEU, K. A. et al. Co layer thickness dependence of exchange biasing for IrMn/Co and FeMn/Co. **Journal of Applied Physics**, v. 93, n. 10, p. 6611, 2003.
- 74 NICOLODI, S. et al. Copper spacer thickness dependence of the exchange bias in Ir/Mn/Co ultrathin films. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 316, p. e97, 2007.
- 75 GESHEV, J. et al. Exchange bias through a Cu interlayer in an IrMn/Co system. **Physical Review B**, v. 75, p. 214402, 2007.
- 76 CRANGLE, J. The magnetic moments of cobalt-copper alloys. **Philosophical Magazine**, v. 46, p. 499, 1955.
- 77 COLIS, S. et al. Influence of the nature of the buffer on the coupling and the transport properties in Co/Ru/Co sandwiches. **Journal of Applied Physics**, v. 88, n. 3, p. 1552, 2000.
- 78 PLATT, C. L. et al. Structural and magnetic properties of CoCrPt perpendicular media grown on different buffer layers. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 247, p. 153, 2003.
- 79 LEE, I. S. et al. Role of a paramagnetic amorphous CoZr seed layer in CoCrPt/Ti perpendicular recording media. **Journal of Applied Physics**, v. 85, p. 6133, 1999.
- 80 BIERSACK, J. P. **TRIM Cascade**. Software - Comunicação privada.
- 81 BRÜCK, S. et al. Exploiting length scales of Exchange-Bias Systems to Fully Tailor Double-Shifted Hysteresis Loops. **Advanced Materials**, v. 17, p. 2978, 2005.
- 82 NOLTING, F. et al. Direct observation of the alignment of ferromagnetic spins by antiferromagnetic spins. **Nature**, v. 405, p. 767, 2000.
- 83 MOUGIN, A. et al. Local manipulation and reversal of exchange bias field by ion irradiation in FeNi/FeMn double layers. **Physical Review B**, v. 63, p. 060409(R), 2001.
- 84 EHRESMANN, A. et al. Fundamentals for magnetic patterning by ion bombardment of exchange bias layer systems. **Physica Status Solidi (b)**, v. 243, n. 1, p. 29–36, 2006.

## Apêndice

### Figuras adicionais - Variação do $H_{EB}$ com a corrente (amostra com Cu)

Amostra com espaçador - série com corrente variando

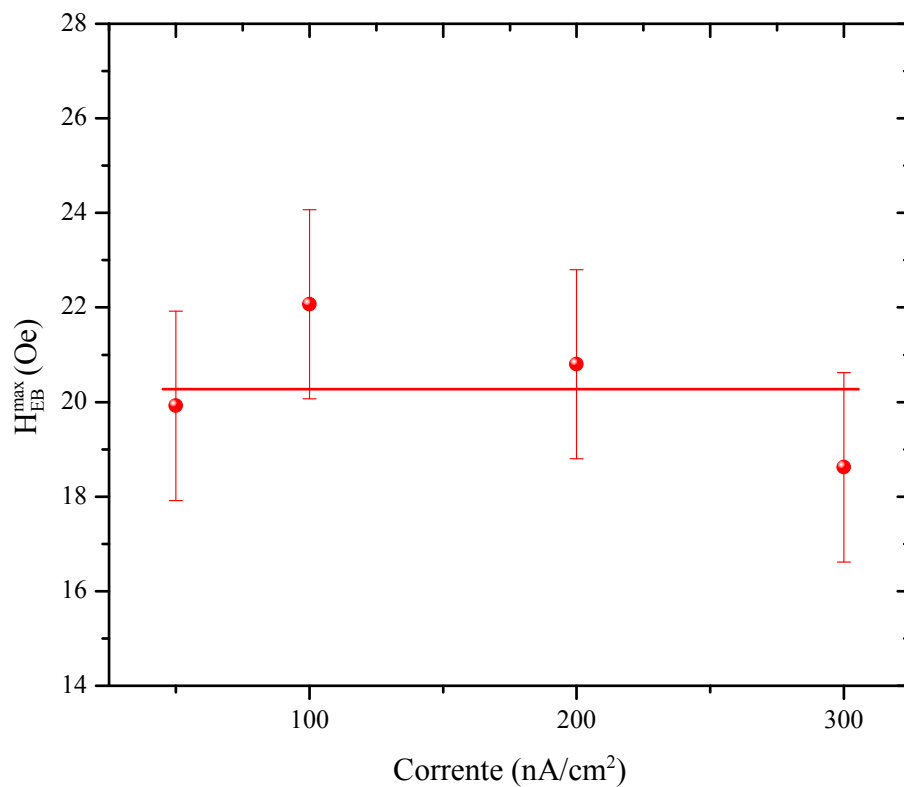


Figura 5.1:  $H_{EB}$  máximo como função da corrente para as amostras com espaçador de cobre, irradiadas com fluência de  $1 \times 10^{14}$  íons/cm<sup>2</sup> e correntes variando entre 1 e 300 nA/cm<sup>2</sup>.



## Figuras adicionais - Curvas de histerese

Amostra com espaçador - série com corrente variando

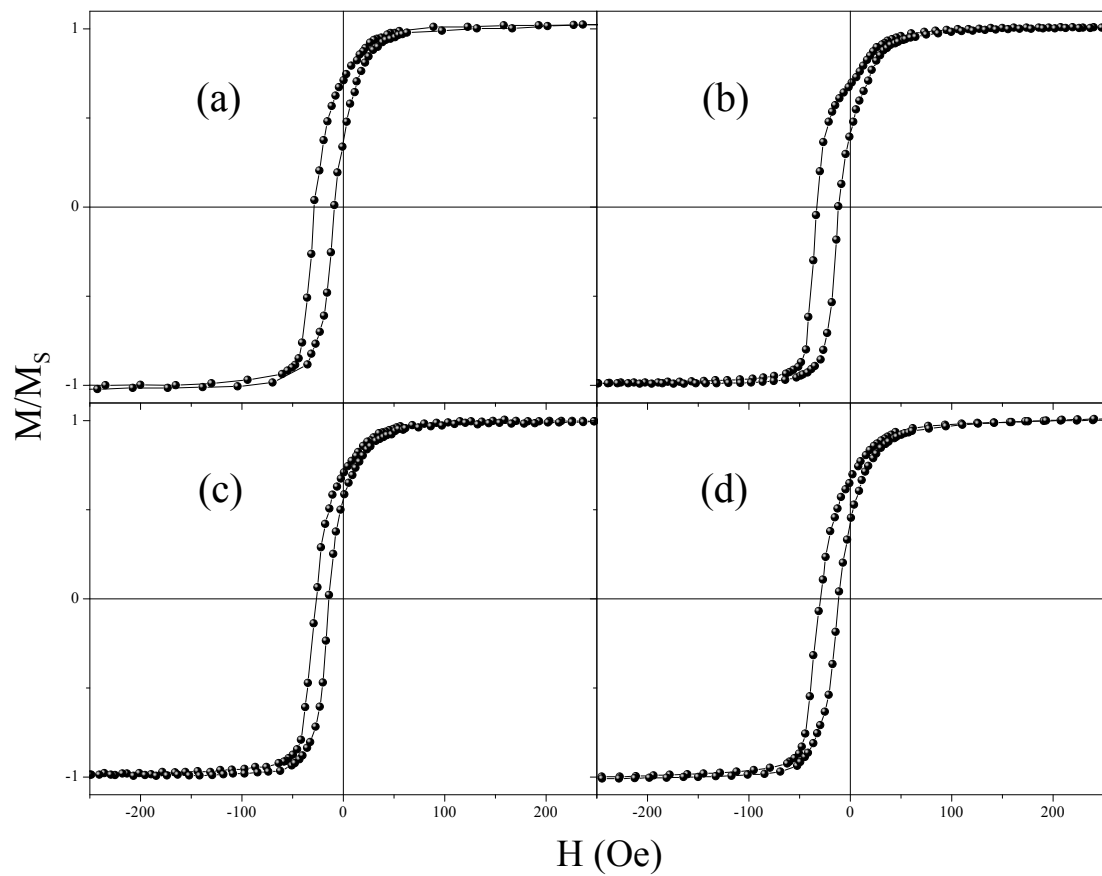


Figura 5.2: Curvas de histerese das amostras com espaçador de cobre, para  $\phi_H = 0^\circ$ , irradiadas com correntes de: (a) 50, (b) 100, (c) 200 e (d) 300 nA/cm<sup>2</sup>.

## Amostra com espaçador - série com fluência variando

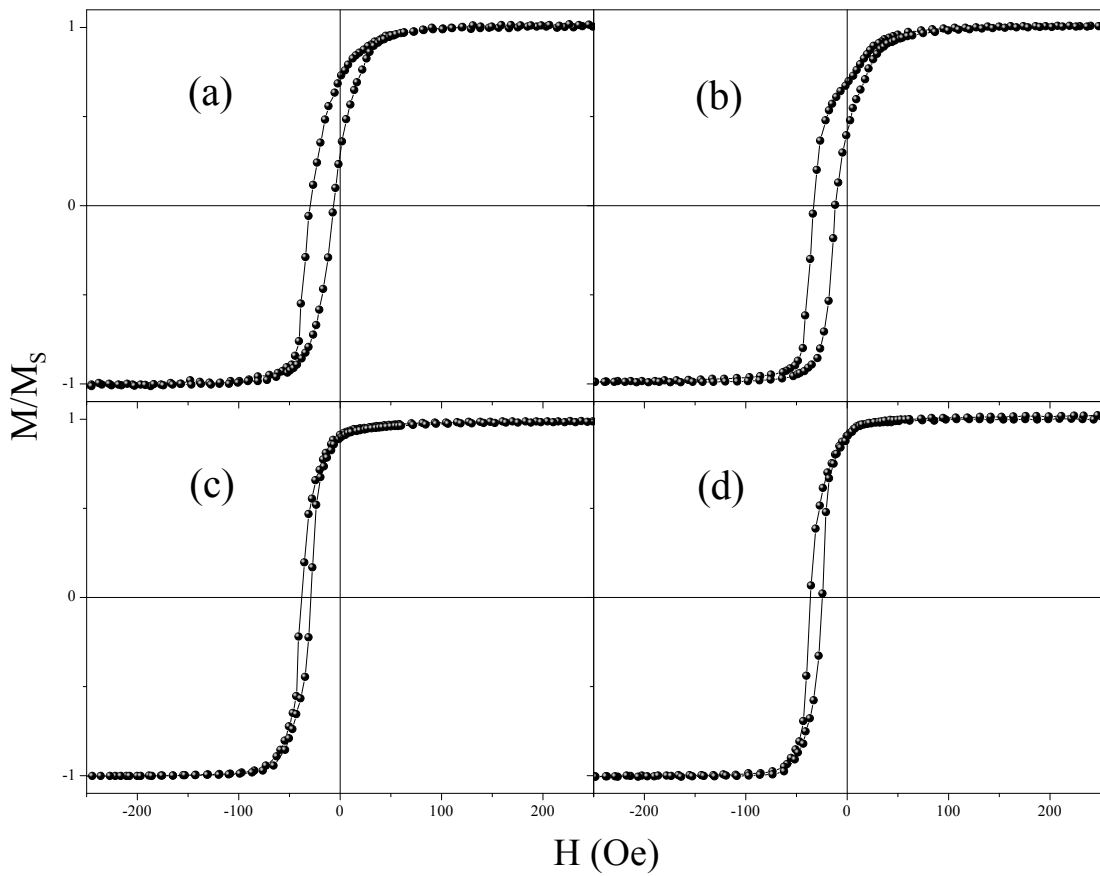


Figura 5.3: Curvas de histerese das amostras com espaçador de cobre, para  $\phi_H = 0^\circ$ , irradiadas com fluências de: (a)  $5 \times 10^{13}$ , (b)  $1 \times 10^{14}$ , (c)  $1 \times 10^{15}$  e (d)  $5 \times 10^{15}$  íons/cm<sup>2</sup>.

## Amostra sem espaçador - série com corrente variando

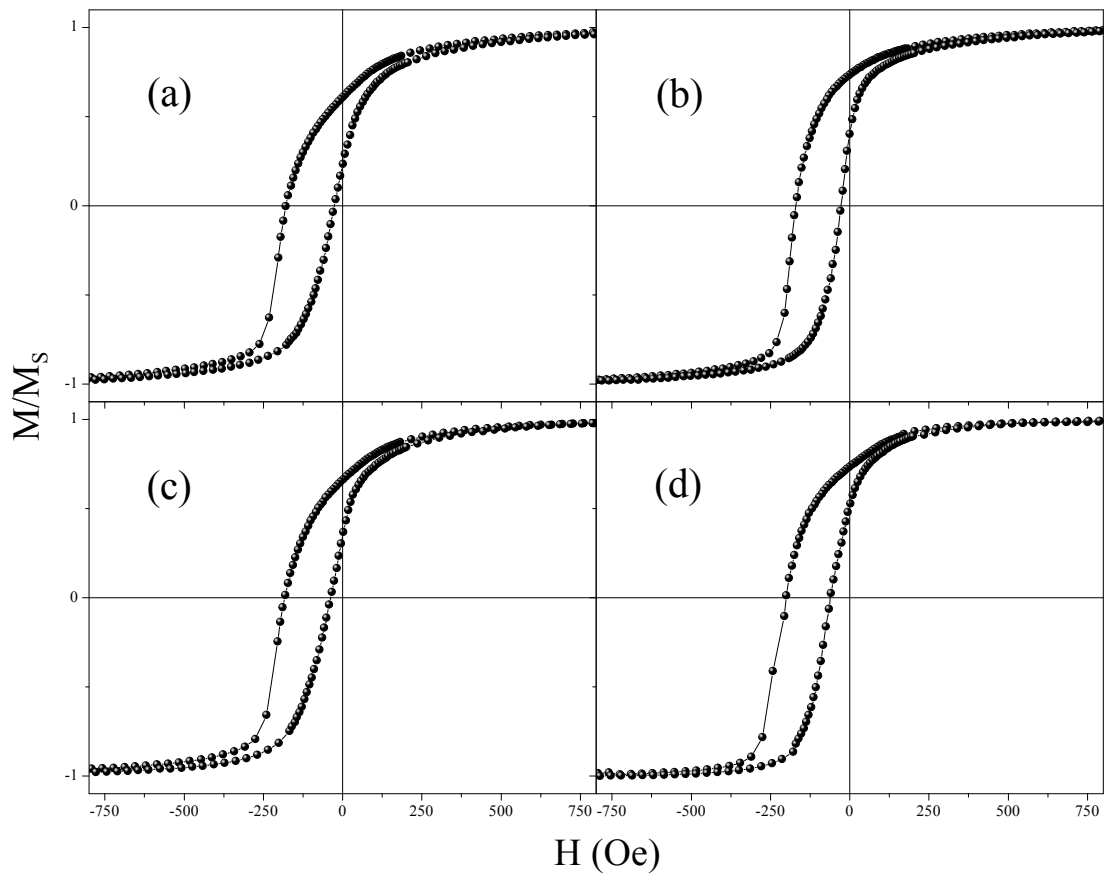


Figura 5.4: Curvas de histerese das amostras sem espaçador de cobre, para  $\phi_H = 0^\circ$ , irradiadas com correntes de: (a) 50, (b) 100, (c) 200 e (d) 300 nA/cm<sup>2</sup>.

Amostra sem espaçador - série com fluência variando

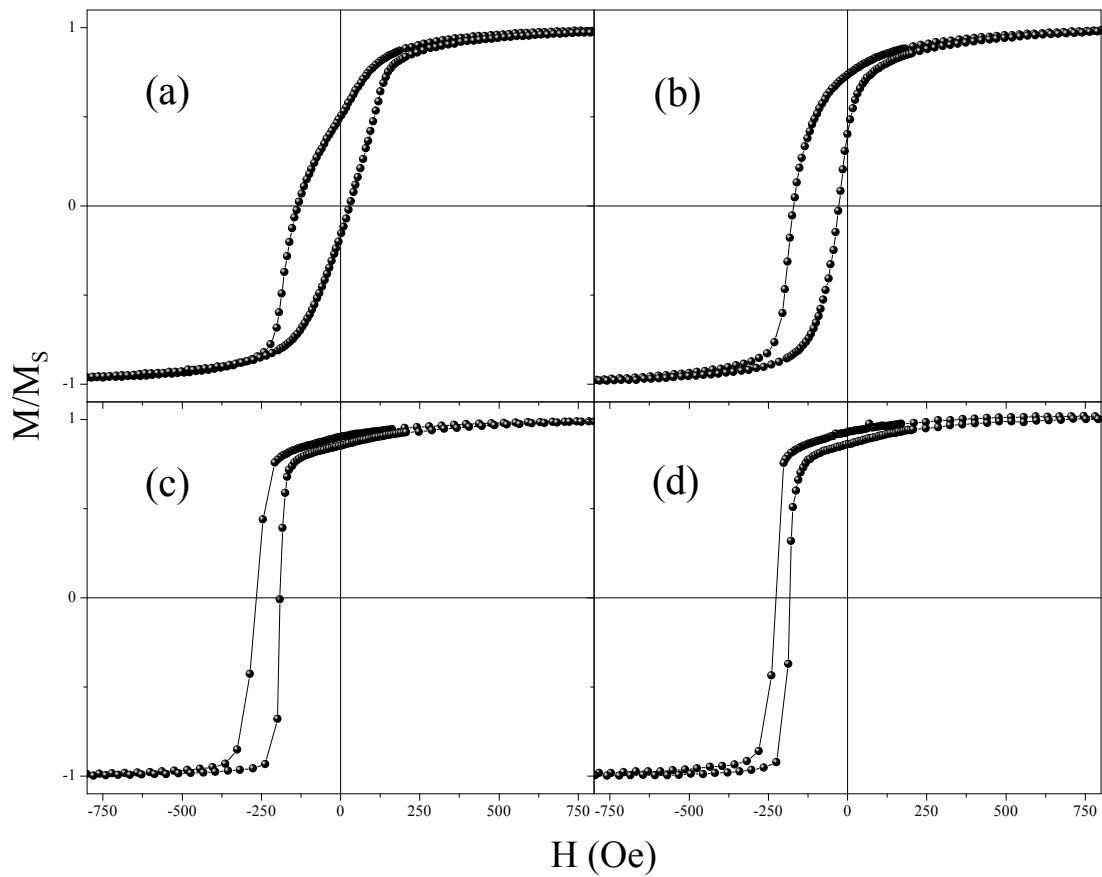


Figura 5.5: Curvas de histerese das amostras com espaçador de cobre, para  $\phi_H = 0^\circ$ , irradiadas com fluências de: (a)  $5 \times 10^{13}$ , (b)  $1 \times 10^{14}$ , (c)  $1 \times 10^{15}$  e (d)  $5 \times 10^{15}$  íons/cm<sup>2</sup>.

## Figuras adicionais - Variação angular $H_{EB}$

Amostra com espaçador - série com corrente variando

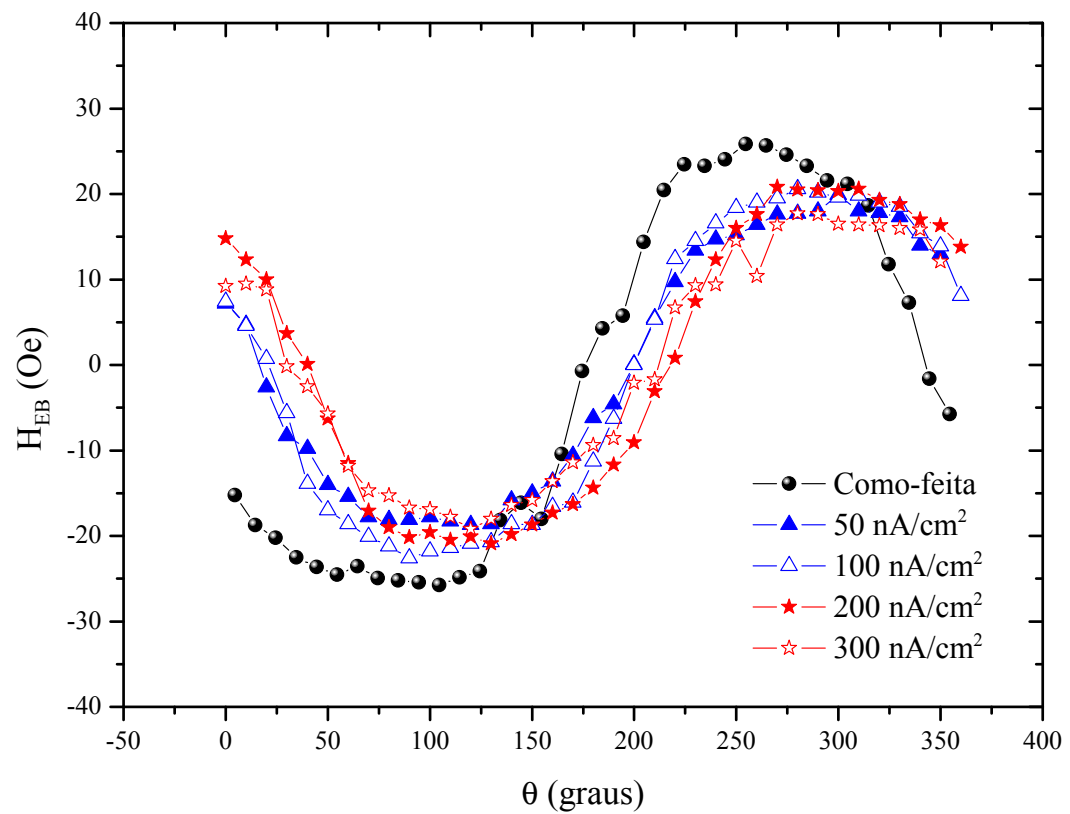


Figura 5.6: Variação angular do  $H_{EB}$  para as amostras com espaçador de cobre, irradiadas com fluência constante de  $1 \times 10^{14}$  íons/cm<sup>2</sup> e corrente variando.

### Amostra com espaçador - série com fluência variando

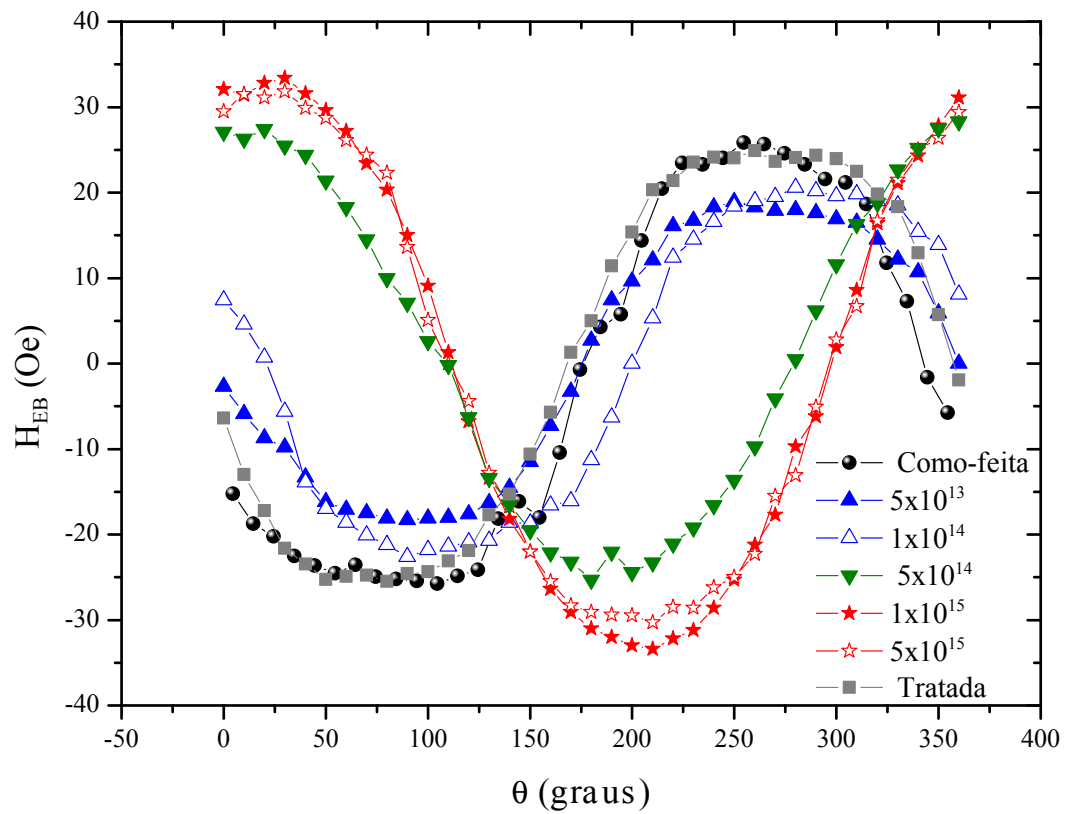


Figura 5.7: Variação angular do  $H_{EB}$  para as amostras com espaçador de cobre, irradiadas com corrente constante de  $100 \text{ nA/cm}^2$  e fluência variando.

## Amostra sem espaçador - série com corrente variando

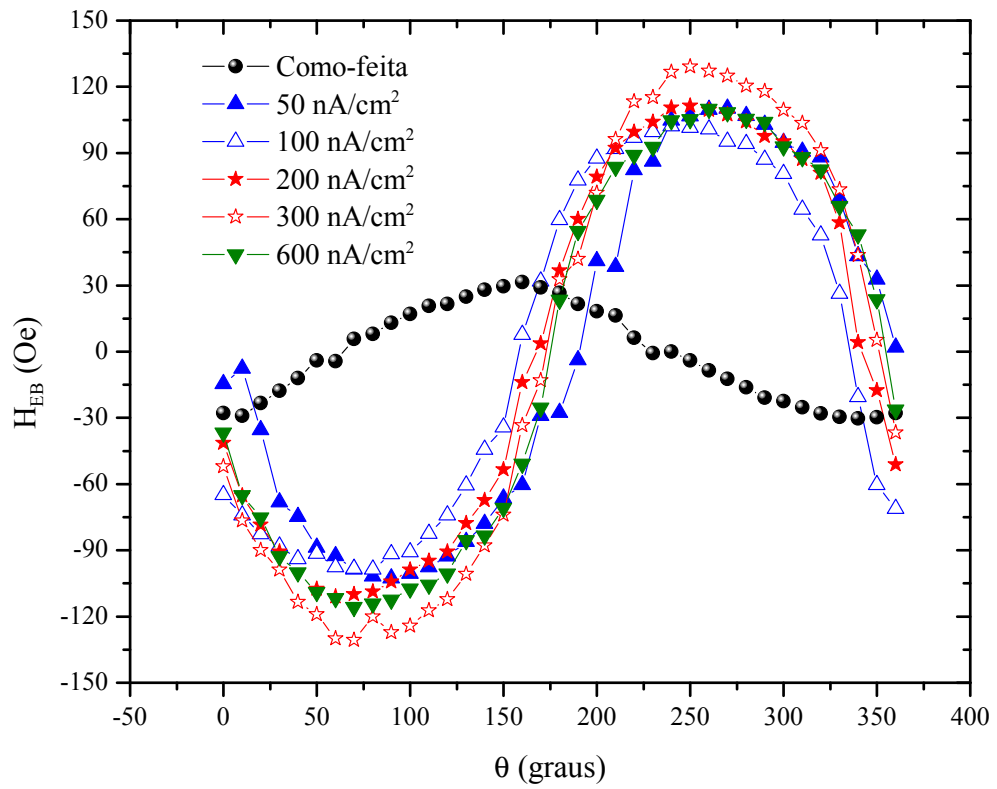


Figura 5.8: Variação angular do  $H_{EB}$  para as amostras sem espaçador de cobre, irradiadas com fluência constante de  $1 \times 10^{14}$  íons/cm<sup>2</sup> e corrente variando.

### Amostra sem espaçador - série com fluência variando

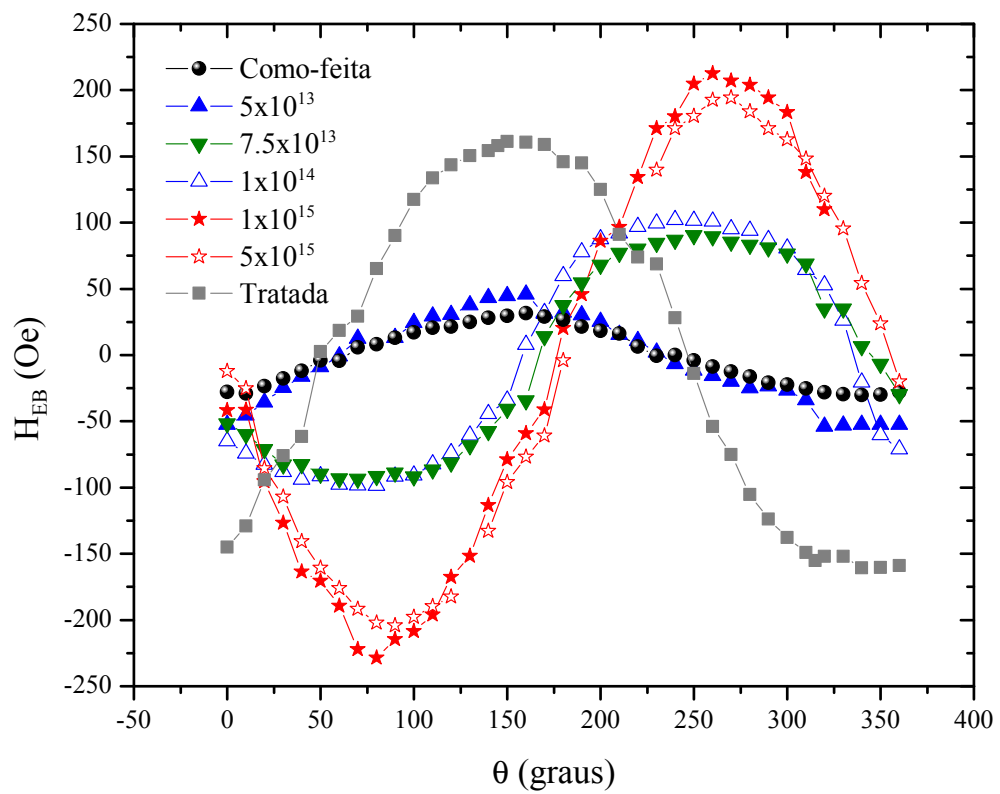


Figura 5.9: Variação angular do  $H_{EB}$  para as amostras sem espaçador de cobre, irradiadas com corrente constante de  $100 \text{ nA/cm}^2$  e fluência variando.