

UNIVERSIDADE FEDERAL DE SANTA MARIA
CENTRO DE CIÊNCIAS NATURAIS E EXATAS
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO DE EM FÍSICA

Junara Villanova de Siqueira

**Estudo do Desalinhamento Entre os Eixos de Anisotropia
Via Magnetoresistência Anisotrópica em Sistemas com
Exchange Bias**

Santa Maria, RS

2019

Junara Villanova de Siqueira

Estudo do Desalinhamento Entre os Eixos de Anisotropia Via Magnetorresistência Anisotrópica em Sistemas com Exchange Bias

Tese de Doutorado apresentada ao Programa de Pós-graduação de em Física, Área de Concentração em Física da Matéria Condensada, da Universidade Federal de Santa Maria (UFSM, RS), como requisito parcial para obtenção do grau de **Doutora em Física.**

ORIENTADOR: Prof. Marcos André Carara

COORIENTADOR: Prof. Josué Neroti Rigue

Santa Maria, RS
2019

de Siqueira, Junara Villanova
Estudo do Desalinhamento Entre os Eixos de
Anisotropia Via Magnetorresistência Anisotrópica em
Sistemas com Exchange Bias / Junara Villanova de
Siqueira.- 2019.
92 f.; 30 cm

Orientador: Marcos André Carara
Coorientador: Josué Neroti Rigue
Tese (doutorado) - Universidade Federal de Santa
Maria, Centro de Ciências Naturais e Exatas, Programa de
Pós-Graduação em Física, RS, 2019

1. Exchange Bias 2. Magnetorresistência Anisotrópica
3. Anisotropia 4. Desalinhamento I. Carara, Marcos André
II. Neroti Rigue, Josué III. Título.

Sistema de geração automática de ficha catalográfica da UFSM. Dados fornecidos pelo autor(a). Sob supervisão da Direção da Divisão de Processos Técnicos da Biblioteca Central. Bibliotecária responsável Paula Schoenfeldt Patta CRB 10/1728.

©2019

Todos os direitos autorais reservados a Junara Villanova de Siqueira. A reprodução de partes ou do todo deste trabalho só poderá ser feita mediante a citação da fonte.

Endereço: Rua Boa Vista do Norte, nº 170

End. Eletr.: junarasiqueira@yahoo.com.br

Junara Villanova de Siqueira

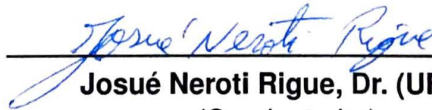
Estudo do Desalinhamento Entre os Eixos de Anisotropia Via Magnetorresistência Anisotrópica em Sistemas com Exchange Bias

Tese de Doutorado apresentada ao Programa de Pós-graduação de em Física, Área de Concentração em Física da Matéria Condensada, da Universidade Federal de Santa Maria (UFSM, RS), como requisito parcial para obtenção do grau de **Doutora em Física.**

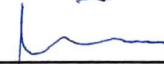
Aprovado em 28 de novembro de 2019:



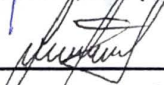
Marcos André Carara, Dr. (UFSM)
(Presidente/Orientador)



Josué Neroti Rigue, Dr. (UFSM)
(Coorientador)



André Gündel, Dr. (UNIPAMPA)



Antonio Marcos Helgueira de Andrade, Dr. (UFRGS)



Eleonir João Calegari, Dr. (UFSM)



Fábio Beck, Dr. (UFSM)

Santa Maria, RS

2019

AGRADECIMENTOS

Agradeço a todas aquelas pessoas que de uma forma ou outra contribuíram durante esse longo ciclo. Peço desculpas se alguém não for lembrado.

Começo agradecendo a Deus, por me dado forças e por não ter me deixado sozinha em nenhum momento.

Ao grande professor Marcos Carara pela orientação, confiança, ensinamentos acadêmicos, dedicação e, principalmente por sua paciência.

Aos demais professores do LMMM, Luiz F. Schelp, Lúcio S. Dorneles, Ricardo Barreto, Artur H. de Oliveira, por suas contribuições em minha formação.

Agradecimento mais que especial para a equipe de trabalho, Paula, Oreci e João, pelo auxílio na parte experimental e pelas longas discussões acadêmicas.

Aos colegas e amigos do LMMM, Angélica, Diego, Tássia.

Ao Josué N. Rigue pela contribuição e auxílio no trabalho realizado. E aos ex-integrantes do LMMM, Luciane, Callega, Julia e Dieivase pela amizade e companheirismo.

Ao PPGFIS da UFSM, especialmente à Saionara, por seu empenho e disponibilidade em ajudar.

As minhas amigas Deise, Franciele, Luciane, Margaret, por me fazerem companhia e estarem sempre me apoiando em todos os momentos.

Ao meu grande amigo Gustavo, por toda motivação e apoio.

A minha irmã (Gabriela) e ao meu cunhado (Lúcio), pelo apoio, cumplicidade, conversas regadas de muitas risadas.

A minha nona Vilda pelo apoio e suas grandes orações por mim.

Por fim, agradeço aos meus pais (Eroni e Miria), que sempre foram referência de caráter e fonte de estímulo em minha vida. Obrigada por sempre me incentivar a estudar e aproveitar todas as oportunidades.

"Vou precisar suportar duas ou três lagartas se quiser conhecer as borboletas."

(O Pequeno Príncipe)

RESUMO

Estudo do Desalinhamento Entre os Eixos de Anisotropia Via Magnetoresistência Anisotrópica em Sistemas com Exchange Bias

AUTORA: Junara Villanova de Siqueira

ORIENTADOR: Marcos André Carara

COORIENTADOR: Josué Neroti Rigue

O fenômeno de Exchange Bias (EB), geralmente está associado ao acoplamento interfacial entre uma camada ferromagnética (FM) e uma camada antiferromagnética (AFM). Uma das manifestações mais bem conhecidas desse fenômeno é o deslocamento em campo do ciclo de histerese, e a outra é o aumento da coercividade, quando comparada com a do material FM desacoplado. Neste trabalho, o estudo desse acoplamento interfacial entre as camadas ferromagnética (NiFe) e antiferromagnética (FeMn) em bicamadas vem sendo realizado através da caracterização estrutural, magnética e de transporte elétrico. Foram crescidos filmes de NiFe/FeMn variando a pressão de argônio (Ar) na deposição da camada FM e, na sequência variando essa pressão na deposição da bicamada. Isso a fim de obter uma melhora na textura (111) do NiFe e do FeMn, além de uma melhor qualidade da interface e, dessa forma, obter um sistema com anisotropia uniaxial e unidirecional melhor definidas. Foram usadas máscaras durante a deposição para definir a direção da corrente elétrica em relação à direção de anisotropia nas medidas de Magnetoresistência Anisotrópica (AMR). Após a análise do melhor valor da pressão de Ar na deposição (1,5 mTorr), foram produzidos dois conjuntos de amostras, um variando a espessura da camada FM e outro variando a espessura da camada AFM. As amostras com espessura da camada FM mais fina serviram também para tentar verificar se daria para observar a histerese rotacional (HR) por AMR. Esses filmes foram depositados em substratos de vidro por magnetrom sputtering. As medidas de transporte elétrico foram realizadas no sistema implantado no Laboratório de Magnetismo e Materiais Magnéticos (LMMM) para medidas de AMR em função do ângulo de aplicação do campo. Foi usado um modelo simples para calcular as curvas de AMR em função do ângulo do campo e, na comparação com as curvas experimentais obter os parâmetros magnéticos que descrevem o sistema.

Palavras-chave: Exchange Bias. Magnetoresistência Anisotrópica. Anisotropia. Desalinhamento

ABSTRACT

MISALIGNMENT BETWEEN THE ANISOTROPY AXES STUDIED BY ANISOTROPIC MAGNETORESISTENCE IN EXCHANGE BIAS SYSTEMS

AUTHOR: Junara Villanova de Siqueira
ADVISOR: Marcos André Carara
CO-ADVISOR: Josué Neroti Rigue

The Exchange Bias effect (EB) arises in systems with interfacial coupling, generally between a ferromagnetic (FM) and a antiferromagnetic (AFM) material. The well-known manifestations of this phenomenon are the field shift in the magnetization curves and the increase in the coercive field when compared to the uncoupled FM material. In this work, the study of this interfacial coupling between the FM (NiFe) and the AFM (FeMn) material has been performed through the structural, magnetic and electric transport characterization. NiFe/FeMn films were grown by varying the argon pressure during the deposition of the FM layer and, subsequently, NiFe/FeMn films were grown by varying the pressure of the both layers during the deposition. These were made in order to improve the (111) texture of NiFe and FeMn layers, as well as to improve interface quality and thus to obtain a system with a better defined uniaxial and unidirectional anisotropies. We have used masks during deposition in order to define the direction of the electric current with relation to the anisotropy direction in the anisotropic magnetoresistance measurements (AMR). After concluding that the best Ar pressure value was 1,5 mTorr, two sets of samples were produced, one of them with varying FM layer thickness and the other one by changing the thickness of the AFM layers. Samples with the thinner FM layer thickness were also to verify if it would be possible to observe the rotational hysteresis by AMR. The films were grown on glass substrates by magnetron sputtering. The electrical transport measurements were measured in the system implemented in the Laboratório de Magnetismo e Materiais magnéticos for AMR measurements as a function of the field angle. By comparing the experimental data to calculated ones, we have obtained the magnetic parameters describing the systems.

Keywords: Exchange Bias. Anisotropic Magnetoresistance. Anisotropy. Misalignment.

SUMÁRIO

1	INTRODUÇÃO	7
2	ASPECTOS BÁSICOS DE MAGNETISMO	10
2.1	FERROMAGNETISMO E ANTIFERROMAGNETISMO	10
2.1.1	Curva de magnetização e Domínios magnéticos	12
2.2	ENERGIAS E ANISOTROPIAS MAGNÉTICAS	15
2.2.1	Anisotropia magnetocristalina	15
2.2.2	Anisotropia magnetostática ou de forma	18
2.2.3	Anisotropia de troca	19
2.3	ENERGIA LIVRE MAGNÉTICA	20
3	EXCHANGE BIAS	21
3.1	O FENÔMENO	21
3.2	MODELO INTUITIVO PARA DESCRIÇÃO DO EB	23
3.3	CARACTERÍSTICAS DO EB	24
3.3.1	Dependência com a temperatura	25
3.3.2	Dependência do H_{eb} e H_C com a espessura da camada FM	26
3.3.3	Dependência do H_{eb} e H_C com a espessura da camada AFM	27
3.3.4	Efeito de treinamento	28
3.4	FATORES QUE INFLUENCIAM NO FENÔMENO DE EB	30
3.4.1	Configuração dos spins interfaciais	30
3.4.2	Rugosidade interfacial	32
3.4.3	Cristalinidade e tamanho de grão	33
3.5	MODELOS PARA A DESCRIÇÃO DO EXCHANGE BIAS	33
4	MAGNETORRESISTÊNCIA	38
4.1	MAGNETORRESISTÊNCIA NORMAL	38
4.2	MAGNETORRESISTÊNCIA ANISOTRÓPICA - AMR	40
4.3	DESCRIÇÃO DO MODELO USADO PARA AJUSTAR AS CURVAS DE AMR	42
5	TÉCNICAS E PROCEDIMENTOS EXPERIMENTAIS	47
5.1	AMOSTRAS	47
5.2	PRODUÇÃO DAS AMOSTRAS	49
5.3	CARACTERIZAÇÃO ESTRUTURAL: DIFRAÇÃO DE RAIOS X	52
5.4	CARACTERIZAÇÃO MAGNÉTICA: MAGNETIZAÇÃO	54
5.5	CARACTERIZAÇÃO DE TRANSPORTE ELÉTRICO: MAGNETORRESISTÊNCIA	55
6	RESULTADOS E DISCUSSÃO	58
6.1	CONJUNTO DE AMOSTRAS VARIANDO A PRESSÃO DE ARGÔNIO NA DEPOSIÇÃO DA CAMADA FM (CONJUNTO 1913)	58
6.2	CONJUNTOS DE AMOSTRAS VARIANDO A ESPESSURA DA CAMADA FM (CONJUNTO 1927) E A ESPESSURA DA CAMADA AFM (CONJUNTO 1928)	61
6.3	MEDIDAS E AJUSTES DAS CURVAS DE AMR	73
7	CONCLUSÕES E PERSPECTIVAS	84
	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	87
	ANEXO A – ARTIGOS PUBLICADOS	93
	ANEXO B – MAPLE	94

1 INTRODUÇÃO

O fenômeno de *Exchange Bias* (EB) foi descoberto em 1956 por Meiklejohn e Bean (MEIKLEJOHN; BEAN, 1956), sendo até hoje objeto de estudo em magnetismo. O fenômeno tem origem na interação interfacial, em geral, entre um material ferromagnético (FM) e um material antiferromagnético (AFM), sendo suas principais manifestações o deslocamento em campo do ciclo de histerese magnética e o aumento da coercividade quando comparada à um material ferromagnético desacoplado.

Sistemas com EB vem sendo muito investigados na área do magnetismo devido as suas aplicações tecnológicas. Dentre as principais, encontram-se sensores de campo magnético, dispositivos de leitura magnética baseadas em magnetorresistência gigante (GMR) e memórias magnéticas de acesso aleatória (MRAM) (SPONG; SPERIOSU; FONTANA, 1996), (SANKARANARAYANAN et al., 2004).

Apesar do tempo que o fenômeno de EB vem sendo estudado, não existe ainda uma teoria que seja aceita por toda a comunidade científica, que explique e preveja todas as características de um sistema real com EB. O desenvolvimento de modelos ao longo dos anos vem buscando descrever os resultados experimentais quantitativamente promovendo melhor compreensão do fenômeno. Técnicas como magnetometria de torque, ressonância ferromagnética (FMR) e magnetorresistência anisotrópica (AMR) têm sido usadas para caracterizar esses sistemas (SILVA et al., 2018), (RIGUE et al., 2015), (BARRETO et al., 2014), (SIQUEIRA et al., 2019).

Vários mecanismos associados ao EB ainda não são bem compreendidos. Como exemplo, o porquê diferentes técnicas de medidas podem resultar em valores diferentes para o campo de bias (H_{eb}) (FERMIN et al., 2000), (LI et al., 2017), além da origem da anisotropia rodável. Outro ponto importante, mencionado em vários artigos refere-se a um possível desalinhamento entre os eixos de anisotropia (uniaxial e unidirecional) nesse tipo de amostra (RIGUE et al., 2015), (GRAET et al., 2009), (POGOSSIAN et al., 2006), (SPENATO; POGOSSIAN; GALL, 2003), (BARRETO et al., 2014), (DEKADJEVI et al., 2011), (SILVA, 2016), (SIQUEIRA et al., 2019).

Ao investigarem sistemas com EB depositados a baixos valores de pressões de argônio $\approx 0,06 \text{ mTorr}$ (TANG et al., 2017), (SANKARANARAYANAN et al., 2004), (DIENY et al., 1991), (GUANGHUA et al., 2002), (YUAN et al., 2013), (OKSUZOGLU et al., 2011), (NASCIMENTO et al., 2013), mostram que a magnitude do H_{eb} pode ser promovida pela baixa rugosidade interfacial, juntamente com o crescimento da estrutura cristalina do filme na direção (111). Quanto menor a pressão de argônio usada na deposição, maior é a taxa de deposição. Nesse caso, a tensão de aceleração dos íons de Ar deve ser aumentada para manter a potência constante. Isso, por sua vez significa que os átomos do alvo pulverizado ganham uma energia relativamente alta, ou seja, a energia com que os átomos

são arrancados do alvo e atingem o substrato é maior. Pelo fato da pressão ser menor e a energia ser relativamente alta, os átomos possuem maior mobilidade para alcançar o substrato, obtendo-se uma superfície mais plana e as camadas com uma boa textura cristalina.

Com intuito de contribuir na compreensão do EB, investigando a relação com o valor da pressão de argônio usada na deposição, chegou-se nos objetivos para esse doutorado:

- Produzir bicamadas FM/AFM, na forma de filmes finos, variando o valor da pressão de argônio na deposição.
- Produzir bicamadas FM/AFM, na forma de filmes finos, variando o valor da pressão de argônio na deposição somente da camada FM.
- Analisar qual é o melhor valor de pressão de argônio para a deposição, a fim de se obter uma melhor textura cristalográfica no filme.
- Depositar os filmes sobre máscaras a fim de definir a direção da corrente em relação à direção de anisotropia nas medidas de AMR.
- Produzir bicamadas FM/AFM, na forma de filmes finos, variando a espessura da camada FM e da camada AFM.
- Investigar as propriedades magnéticas como por exemplo: campo de bias, campo de anisotropia e magnetização de saturação das amostras.
- Constatar um possível desalinhamento entre os eixos de anisotropias (uniaxial e unidirecional).
- Comparar os resultados obtidos pelas diferentes técnicas de medidas.
- Descrever os resultados obtidos experimentalmente com base teórica.

O trabalho experimental que compõem essa tese foi realizado no Laboratório de Magnetismo e Materiais Magnéticos (LMMM), na Universidade Federal de Santa Maria (UFSM), sob a orientação do professor Dr. Marcos Carara, contando com a colaboração do coorientador Josué Neroti Rigue.

Quanto a organização, a tese é apresentada da seguinte maneira. No capítulo dois são apresentados os aspectos básicos do magnetismo, como ferromagnetismo, antiferromagnetismo e anisotropias magnéticas. No capítulo três é dado ênfase ao fenômeno de EB e aos modelos mais relevantes para a sua compreensão. O capítulo quatro é voltado para o efeito da magnetorresistência anisotrópica. No capítulo cinco são mostradas as técnicas e os procedimentos experimentais utilizados neste trabalho. No capítulo seis são discutidos os resultados experimentais e os ajustes feitos através do modelo proposto neste trabalho

para as medidas de AMR. No capítulo sete são apresentadas as conclusões obtidas e as perspectivas.

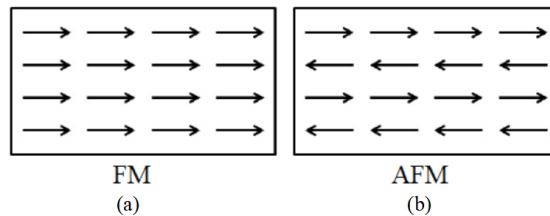
2 ASPECTOS BÁSICOS DE MAGNETISMO

Dois tipos de materiais magnéticos são relevantes em nosso estudo, os materiais ferromagnéticos (FM) e os antiferromagnéticos (AFM). Na sequência, será feita uma breve descrição sobre os mesmos. Ainda nesse capítulo, será apresentada uma discussão sobre as anisotropias magnéticas que devem ser consideradas em nosso estudo.

2.1 FERROMAGNETISMO E ANTIFERROMAGNETISMO

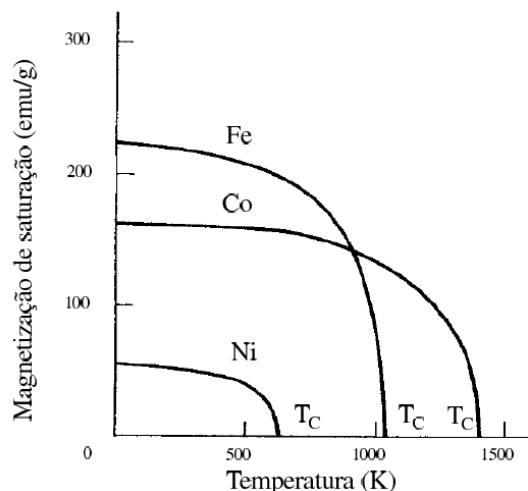
Nos materiais ferromagnéticos, os momentos magnéticos tendem a se alinhar paralelamente uns aos outros podendo produzir uma magnetização espontânea macroscópica, também mesmo na ausência de um campo magnético externo, figura 2.1 (a). A magnetização é definida como o momento magnético por unidade de volume do material. Mediante a aplicação de um campo, a magnetização pode aumentar até atingir um valor máximo, conhecido como magnetização de saturação (M_S). A magnetização de saturação depende da temperatura, como pode ser visto na figura 2.2, para diferentes materiais. De acordo com o aumento da temperatura a M_S diminui, atingindo um valor nulo para determinada temperatura crítica, conhecida como Temperatura de Curie (T_C). A T_C é uma propriedade intrínseca de cada material e seu valor para os três metais ferromagnéticos mais comuns, ferro, níquel e cobalto, são respectivamente, 1043 K, 631 K e 1394 K (REZENDE, 2012). Acima da T_C a magnetização de saturação cai a zero e o material não apresenta mais ordem ferromagnética, comportando-se como um paramagnético.

Figura 2.1 – Representação dos ordenamentos ferromagnético e antiferromagnético. As setas indicam o sentido dos momentos magnéticos.



A figura 2.3, está ilustrando o comportamento dos momentos magnéticos quando a temperatura $T < T_C$ (momentos ordenados) e $T > T_C$ (momentos aleatórios). Na ausência de um campo magnético aplicado, um material paramagnético apresenta seus momentos magnéticos apontando em direções aleatórias, como pode se observado na ilustração da figura 2.3 (b), de modo que não se observa magnetização resultante. Por meio da aplicação de um campo magnético, existe uma tendência de os momentos se

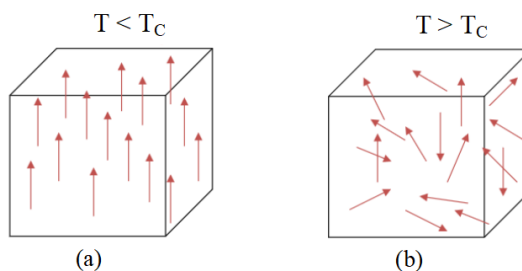
Figura 2.2 – Magnetização de saturação em função da temperatura para Fe, Co e o Ni.



Fonte: (CULLITY; GRAHAM, 2009).

alinharem em direção ao campo magnético aplicado, apresentando assim magnetização resultante diferente de zero. Entretanto, a agitação térmica se opõe a esse alinhamento, mantendo os momentos magnéticos aleatoriamente orientados.

Figura 2.3 – Ilustração de uma material no estado ferromagnético (a) e, no estado paramagnético (b).



Um dos primeiros modelos para o ferromagnetismo, e que continua útil até hoje, foi proposto por Pierre Weiss em 1906. Neste modelo, lançou a hipótese do campo molecular, prevendo que um material FM é formado por inúmeros momentos magnéticos, procedentes dos átomos que compõem e interagem entre si (REZENDE, 2012), (COEY, 2009). Essa interação foi assumida por ele como um campo magnético efetivo, proporcional à magnetização local,

$$\vec{H}_m = \zeta \vec{M}. \quad (2.1)$$

onde \vec{H}_m é o campo molecular e ζ é o coeficiente do campo molecular, sendo esse um parâmetro adimensional e característico de cada material.

Weiss propôs uma outra hipótese para explicar porque os materiais ferromagnéticos podem ser encontrados em um estado desmagnetizado. Essa hipótese é a seguinte:

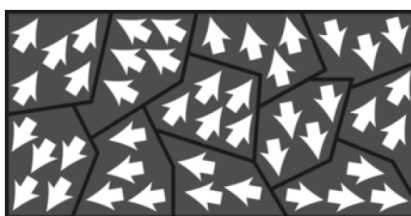
um material ferromagnético no estado desmagnetizado subdivide-se em uma série de pequenas regiões chamadas domínios. Cada domínio está espontaneamente magnetizado no valor de saturação, mas as direções da magnetização dos vários domínios são tais que a amostra como um todo tem uma magnetização nula (CULLITY; GRAHAM, 2009).

Os materiais antiferromagnéticos são aqueles que tem momentos magnéticos alinhados antiparalelamente, totalizando uma magnetização nula, figura 2.1 (b). Nesses materiais também existe uma temperatura crítica, acima da qual o ordenamento AFM é perdido devido a agitação térmica e o material se comporta como um paramagneto. Esta é a chamada temperatura de Néel (T_N).

2.1.1 Curva de magnetização e Domínios magnéticos

Na ausência de um campo magnético externo, um material ferromagnético, encontra-se em um estado de mínima energia, de forma que sua magnetização resultante, em geral é muito menor que a magnetização espontânea. Isto é devido a formação dos chamados domínios magnéticos. Os quais são regiões do material FM, onde os momentos magnéticos estão paralelamente alinhados dentro de cada domínio, possuindo uma magnetização líquida, de modo que a magnetização total é nula, como mostra a figura 2.4. A forma e o tamanho dos domínios magnéticos são determinados pela minimização da energia livre magnética do material FM, que será discutida posteriormente, na secção 2.3.

Figura 2.4 – Ilustração do estado de domínios magnéticos de um material FM desmagnetizado.

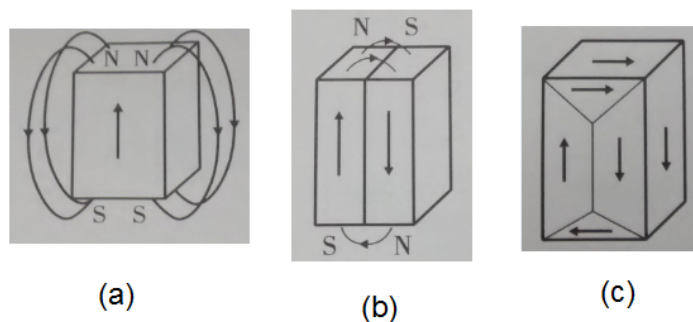


Fonte: (GETZLAFF, 2008).

Na figura 2.5, são apresentadas três configurações diferentes de domínios em uma amostra de material ferromagnético. A uma temperatura $T \ll T_C$, os momentos magnéticos tendem a se alinhar na mesma direção, mesmo na ausência de um campo magnético externo. Se esse alinhamento se der ao longo de todo o material formando um monodomínio, a magnetização será uniforme, como ilustrado na parte (a) da figura. Neste caso, os polos magnéticos gerados na extremidades criam um campo macroscópico externo com energia magnética relativamente alta (campo desmagnetizante). Este campo atua no sentido oposto ao da magnetização, fazendo com que essa configuração não se mantenha em equilíbrio, pois não favorece à minimização da energia. Se metade da amostra tiver magne-

tização em um sentido e metade em outro, como ilustrado na parte (b) da figura, o campo desmagnetizante será menor e a energia será reduzida aproximadamente à metade do valor em (a). A ilustração (c) da figura mostra uma situação de energia ainda menor, pois as linhas de campo se fecham internamente no material, de modo que o campo desmagnetizante é desprezível. As quatro regiões mostradas em (c) têm, internamente, magnetização saturada, porém a magnetização total é nula.

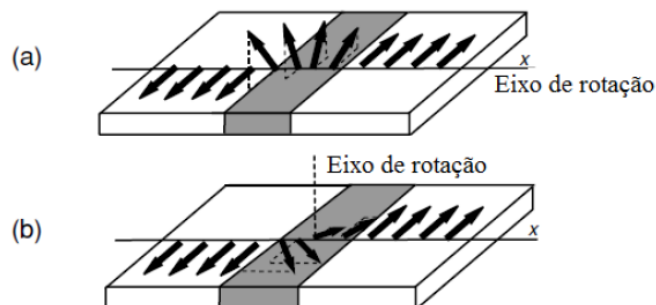
Figura 2.5 – Ilustração da diminuição da energia magnética devido à formação de domínios magnéticos em uma amostra ferromagnética. As setas indicam a orientação da magnetização em cada domínio.



Fonte: (REZENDE, 2012).

Na fronteira entre dois domínios a energia é minimizada com a formação de uma camada onde a orientação dos momentos varia gradualmente. Esta camada é chamada Parede de Domínio, ou parede de Bloch, na qual a rotação da magnetização ocorre no plano da parede 2.6 (a). Outro tipo comum de parede de domínio é a de Néel, onde a rotação da magnetização ocorre no plano perpendicular ao da parede, como ilustrado na figura 2.6 (b).

Figura 2.6 – (a) Parede de Bloch, (b) parede de Néel.



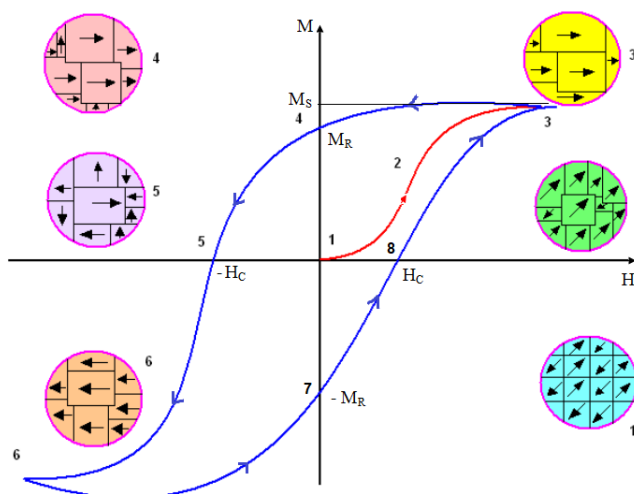
Fonte: Adaptado de (COEY, 2009).

A forma da curva de magnetização em função do campo aplicado é determinada pelo comportamento dos domínios. Os mesmos alteram sua forma e tamanho sob ação de um campo magnético externo, mudando assim a magnetização do material, como pode ser visto na figura 2.7.

Inicialmente, na figura 2.7 (1), o material FM está desmagnetizado, com $M=0$, na ausência de um campo magnético aplicado. A configuração de domínios magnéticos se encontra em um estado de mínima energia livre magnética.

Aumentando a intensidade do campo aplicado, no sentido positivo, os domínios magnéticos começam a se modificar, figura 2.7 (2). Os domínios em orientações favoráveis ao campo aplicado alteram seu volume ao longo dessa direção através de um movimento de paredes de domínio.

Figura 2.7 – Variação da magnetização de um material ferromagnético com o campo aplicado.



Fonte: Adaptado de (COEY, 2009).

Como podemos observar na figura 2.7 (3), todos os momentos magnéticos encontram-se alinhados com o campo aplicado. Nesse caso, o material atinge o estado chamado saturado e pode ser considerado como um monodomínio.

Pode-se observar na 2.7 (4), que quando diminui-se a intensidade do campo aplicado, a magnetização não retorna pela mesma curva do material FM na sua configuração inicial de origem, como ilustrado na figura 2.7 (1). Isso acontece devido as rotações e deslocamentos irreversíveis dos domínios magnéticos. Em consequência, mesmo com $H=0$, há um valor finito de magnetização, chamado de magnetização remanente (M_R). Ela reflete a capacidade de um material magnético exibir magnetização espontânea.

Essa ocorrência deve-se ao fato de uma grande quantidade de momentos magnéticos estarem ainda alinhados na direção do campo magnético aplicado anteriormente. Para voltar a ter a configuração inicial, o campo magnético deve ser invertido no sentido negativo e sua intensidade aumentada, até que todos os momentos se reorientem, de modo a atingirem o estado desmagnetizado novamente. Isso pode ser observado na figura 2.7 (5), onde tem-se um valor de campo diferente de zero, o qual damos o nome de campo coercivo (H_C).

Seguindo a aumentar a intensidade do campo magnético aplicado no sentido negativo, observa-se que o material fica com a magnetização na direção oposta, figura 2.7 (6). Depois de saturado o material FM no sentido oposto, se a intensidade do campo magnético aplicado for aumentada no sentido positivo, chega-se a uma nova magnetização de remanência, 2.7 (7). Finalmente, aumentando o campo magnético aplicado até o estado de saturação positiva do material FM, obtém-se a curva total, denominada de curva de magnetização com histerese magnética, figura 2.7.

No processo descrito acima, há dois mecanismos que atuam para compensar o efeito do campo aplicado: o movimento das paredes que separam os domínios e a rotação dos momentos magnéticos. Quando o movimento das paredes é suprimido, ocorre a rotação dos domínios magnéticos que tendem ao alinhamento com o campo magnético aplicado. Os dois processos são dissipativos, resultando na curva de histerese magnética. A área interna da curva representa a energia dissipada para realizar um ciclo de histerese (CULLITY; GRAHAM, 2009), (KITTEL, 2005).

2.2 ENERGIAS E ANISOTROPIAS MAGNÉTICAS

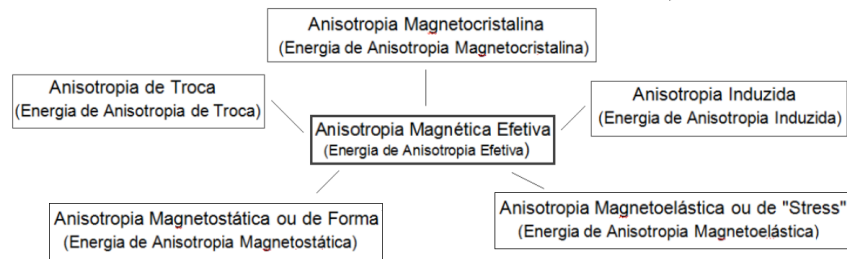
Anisotropia magnética significa que as propriedades magnéticas do material em estudo podem variar conforme as direções ao longo das quais são medidas, ou seja, podendo apresentar eixos preferenciais de orientação. Quando o material apresenta o mesmo comportamento magnético em todas as direções diz-se que ele é magneticamente isotrópico. A orientação espontânea da magnetização no material se dá na direção em que a energia é minimizada, chamada de direção de fácil magnetização. Um material é anisotrópico quando existe um eixo de fácil magnetização ao longo de uma direção fixa.

A anisotropia magnética depende da forma do material, de sua estrutura cristalina, entre outros. A mesma, pode ser induzida no momento em que a amostra é produzida ou através de tratamento térmico em campo magnético (CULLITY; GRAHAM, 2009). A cada tipo de anisotropia associa-se uma energia de anisotropia. Cada termo de energia recebe o nome relacionado à anisotropia com a qual está associado. A soma das diferentes energias de anisotropia é a energia livre magnética do material (E_T). As formas mais comuns estão na figura 2.8.

2.2.1 Anisotropia magnetocristalina

A anisotropia magnetocristalina é uma propriedade intrínseca que reflete a simetria da rede cristalina do material em estudo. Sua origem física está na interação spin-órbita. A anisotropia uniaxial é a forma mais simples de anisotropia magnetocristalina.

Figura 2.8 – Anisotropias magnéticas e energias de anisotropias associadas.



Fonte: Autora.

Quando um campo magnético externo tenta orientar o spin de um elétron, a órbita do elétron também deve se reorientar, devido a interação spin-órbita. Contudo, a mesma está fortemente ligada à rede cristalina e resiste à mudança de orientação. A energia necessária para orientar os spins na direção do campo magnético externo superando a interação spin-órbita é denominada de energia de anisotropia magnetocristalina.

A energia magnetocristalina contribui para que a magnetização em um cristal se direcione ao longo de certos eixos cristalográficos que minimizem a energia de acoplamento entre os spins e os momentos magnéticos orbitais. Esses eixos são chamados de direções de fácil magnetização do cristal. As direções que são mais difíceis de serem magnetizadas são chamadas de direções duras.

Como pode ser visto na figura 2.9, em cristais como o cobalto (Co) de estrutura hexagonal, que possui uma anisotropia uniaxial, tem-se uma energia de anisotropia uniaxial,

$$E_u = K_u \sin^2 \theta, \quad (2.2)$$

onde K_u é a constante de anisotropia uniaxial, e θ é o ângulo entre a magnetização e a direção fácil.

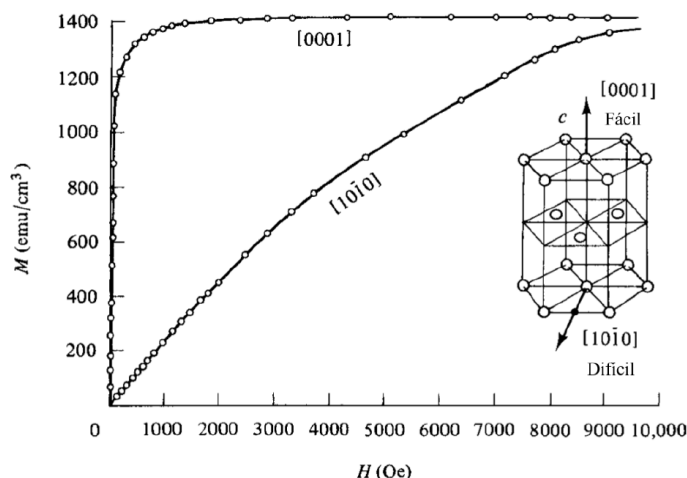
O campo de anisotropia (H_K) é o campo magnético necessário para saturar a magnetização de um cristal uniaxial na direção dura, podendo ser calculado por:

$$H_K = \frac{2K_u}{\mu_0 M_S}. \quad (2.3)$$

onde μ_0 é a permeabilidade magnética do vácuo.

As curvas de magnetização, mostradas na figura 2.10 (a) e 2.10 (b) para monocristais de Fe e Ni, são medidas em diferentes direções cristalográficas, onde percebe-se claramente a anisotropia de origem magnetocristalina. Nesse caso, a energia de anisotropia magnetocristalina (E_k) pode ser expressa em termos de cossenos diretores (α_i) da magnetização em relação aos eixos do cristal. A equação 2.4 expressa a energia magne-

Figura 2.9 – Dependência da magnetização com os eixos cristalográficos do cobalto.



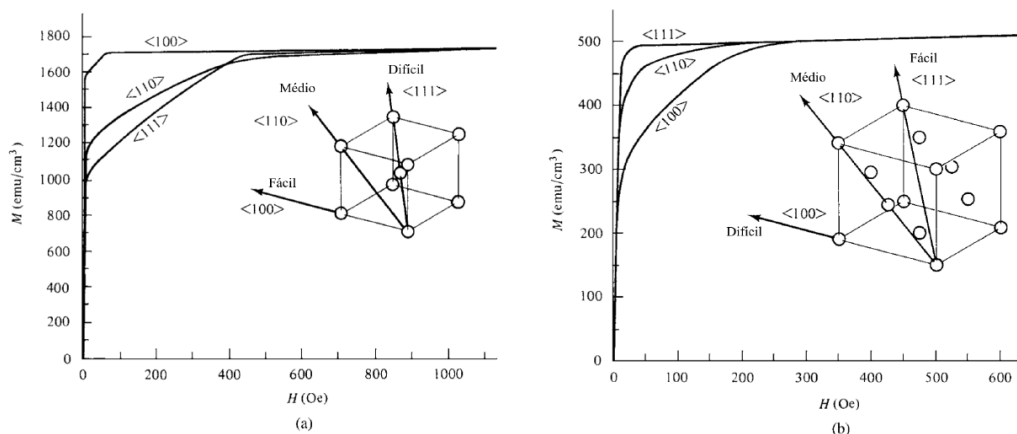
Fonte: Adaptado de (CULLITY; GRAHAM, 2009).

to cristalina para um cristal cúbico:

$$E_k = K_0 + K_1(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2) + K_2(\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2) + \dots \quad (2.4)$$

onde K_0 , K_1 , K_2 são constantes específicas do material a uma dada temperatura e representam a amplitude da densidade de energia de cada termo da série. São expressos em erg/cm^3 ou J/m^3 no SI. Os α_i são os cossenos diretores dos ângulos entre a magnetização e cada um dos eixos do cubo. O tamanho relativo de K_1 e K_2 , assim como seus sinais, definirá as direções de fácil magnetização.

Figura 2.10 – Dependência da magnetização com os eixos cristalográficos para cristais de: (a) ferro e (b) níquel.



Fonte: Adaptado de (CULLITY; GRAHAM, 2009).

A tabela 2.1 apresenta valores das constantes de anisotropias típicas para os elementos ferromagnéticos mais comuns. Os valores relacionados na tabela correspondem

a materiais monocristalinos. Materiais policristalinos, ou seja, materiais onde estão contidos inúmeros monocristais e estes se repetem, mas não necessariamente com a mesma direção, a anisotropia magnetocristalina é dada por uma média ponderada dos cristais individuais.

Tabela 2.1 – Constantes de anisotropia magnetocristalina para Fe, Ni e Co, em temperatura ambiente (CULLITY; GRAHAM, 2009).

Material	Estrutura	K_1 ($10^4 J/m^3$)	K_2 ($10^4 J/m^3$)
Fe	b.c.c	4,8	+/- 0,5
Ni	f.c.c	-0,5	-0,2
Co	h.c.p	45	15

O material pode exibir anisotropia magnetocristalina nula. Podem haver dois casos: os cristais estarem distribuídos de forma aleatória, sem uma direção preferencial ou o material ser amorfo, onde os átomos se distribuem de forma completamente irregular, não chegando a formar uma ordem cristalina de longo alcance.

2.2.2 Anisotropia magnetostática ou de forma

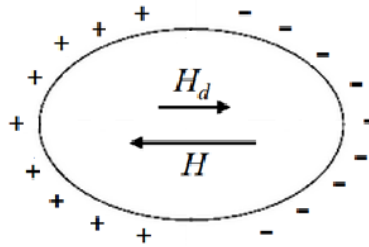
A anisotropia magnetostática está ligada à geometria da amostra em estudo e sua descrição é feita pela energia magnetostática. A forma geométrica da amostra induz a anisotropia no sentido de favorecer a orientação da magnetização espontânea na direção do eixo mais longo da amostra. Isso se deve à formação de polos livres na superfície da amostra e ao campo desmagnetizante (\vec{H}_d) que surge em seu interior, que pode ser visto na figura 2.11.

Para uma melhor compreensão da origem dessa anisotropia, podemos considerar uma amostra sem uma orientação preferencial para a magnetização. Se a forma dessa amostra for esférica, um campo aplicado irá magnetizá-la na mesma proporção em qualquer direção, ou seja, as medidas de magnetização em diferentes direções, não apresentam diferença (anisotropia de forma nula). Porém, se a forma da amostra for retangular, por exemplo, será mais fácil magnetizá-la ao longo da direção de maior comprimento, surgindo uma anisotropia de forma. Isso se deve ao fato de que o \vec{H}_d ao longo do eixo de maior comprimento é mais fraco do que ao longo do eixo de menor comprimento (CULLITY; GRAHAM, 2009).

O campo \vec{H}_d é extremamente dependente do formato da amostra, a sua intensidade é proporcional à magnetização que o cria:

$$\vec{H}_d = -N_d \vec{M}. \quad (2.5)$$

Figura 2.11 – Polos criados na superfície da amostra resultando no campo desmagnetizante.



Fonte: (CHIKAZUMI, 1997).

onde N_d é o fator desmagnetizante que depende da forma da amostra. O sinal negativo na equação indica que o campo desmagnetizante é antiparalelo à magnetização.

Quando um campo externo é aplicado a uma amostra, o campo efetivo (ou real) no seu interior é dado por $\vec{H}_{eff} = \vec{H}_{ext} + \vec{H}_d$. Dessa forma, o campo efetivo no interior da amostra será sempre menor do que o campo aplicado. A energia de anisotropia magnetostática pode ser escrita, em cgs, como:

$$E_s = 2\pi M_S^2 \cos^2\theta. \quad (2.6)$$

A anisotropia magnetostática é mais intensa ao longo dos eixos mais curtos da amostra, favorecendo a orientação de sua magnetização nas dimensões mais alongadas. No caso de filmes finos, onde o comprimento na direção perpendicular ao plano do filme é muito menor do que o comprimento nas direções no plano, a anisotropia magnetostática tende a manter a magnetização presa no plano do filme.

2.2.3 Anisotropia de troca

A anisotropia de troca está ligada a existência de uma direção preferencial dos momentos magnéticos procedentes de acoplamentos entre camadas magnéticas (FM e AFM) em sistemas de bicamadas ou multicamadas. Dessa forma, a energia relacionada a esta anisotropia descreverá a interação de troca entre as camadas magnéticas.

Esta anisotropia leva em conta interações entre as camadas magnéticas, sejam mediadas por um espaçador metálico e não magnético (como para os casos de acoplamentos bilinear e biquadrático), bem como para interações diretas entre camadas (tal como é o caso do fenômeno de *Exchange Bias* (KRONMULLER; PARKIN, 2007; BLUNDELL, 2001)).

Ao fenômeno de Exchange Bias (EB) será dada uma atenção especial neste traba-

Iho, por se tratar do objeto de nosso estudo.

2.3 ENERGIA LIVRE MAGNÉTICA

Como mencionado anteriormente, a estrutura de domínios magnéticos resulta da minimização da energia livre magnética (E_T). Deste modo, para melhor descrever o processo de magnetização, inclui-se todas as interações existentes na amostra ferromagnética numa equação para a energia livre magnética,

$$E_T = E_{Zeeman} + E_{anisotropia}. \quad (2.7)$$

O primeiro termo da equação representa a energia Zeeman que expressa a interação de um campo magnético externo com a magnetização da amostra. O segundo termo representa a soma das energias associadas às anisotropias presentes na amostra em estudo. A energia Zeeman é dada por:

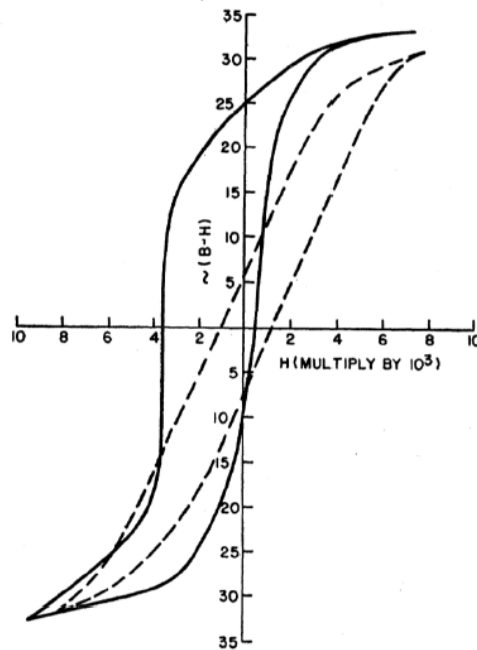
$$E_{Zeeman} = -\mu_0 \vec{M} \cdot \vec{H}. \quad (2.8)$$

3 EXCHANGE BIAS

3.1 O FENÔMENO

Meiklejohn e Bean, em 1956, descobriram um novo fenômeno, descrito por eles como uma "nova anisotropia magnética" (MEIKLEJOHN; BEAN, 1956) e hoje conhecido como *Exchange Bias* (EB) (MEIKLEJOHN; BEAN, 1957), (NOGUES; SCHULLER, 1999). Este novo fenômeno é resultado da interação de troca entre as interfaces dos materiais FM e AFM. Este último deve apresentar anisotropia mais forte do que o material FM. Uma das manifestações do EB é o deslocamento em campo do ciclo de histerese e o aumento do campo coercivo (H_C), como pode ser visto na figura 3.1.

Figura 3.1 – Curvas de histerese de partículas de Co (FM) cobertas por CoO (AFM) resfriadas a 77 K. As linhas tracejadas mostram o ciclo de histerese quando o material é resfriado na ausência de um campo magnético. As linhas sólidas mostram o ciclo de histerese quando o material é resfriado na presença de um campo magnético de 10000 Oe.



Fonte: (MEIKLEJOHN; BEAN, 1956).

Meiklejohn e Bean, descobriram o fenômeno quando realizavam um estudo em partículas de cobalto (Co) envolvidas por uma camada de seu óxido natural Co (AFM) e perceberam um deslocamento em campo do ciclo de histerese magnética. Esse deslocamento em campo era percebido somente quando a amostra era resfriada de 300 até 77 K, na presença de um campo magnético externo suficiente para saturá-la. Repetindo esse

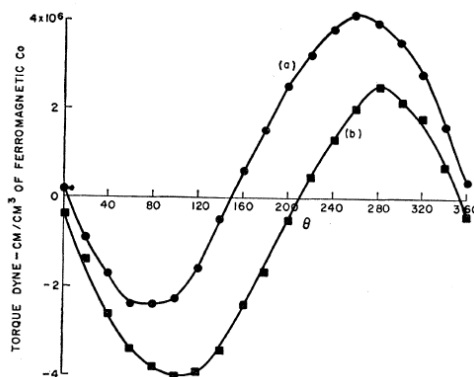
mesmo procedimento sem aplicação de campo, o ciclo de histerese não apresentava deslocamento. Além disso, para uma temperatura acima da temperatura de Néel do Co (293 K), as partículas apresentavam um comportamento magnético típico de partículas de Co puro, ou seja, em FM convencional. Com isso, chegaram a conclusão que o efeito surge da interação entre um material FM e AFM.

Outra manifestação do fenômeno de EB observada por Meiklejohn e Bean é vista em medidas de torque magnético, como apresentado na figura 3.2. Por ser uma anisotropia unidirecional, ou com um sentido favorecido, medidas de torque em materiais com EB resultam em curvas de torque proporcionais a $\sin\theta$, e não a $\sin 2\theta$, como em materiais de anisotropia uniaxial (MEIKLEJOHN; BEAN, 1956). A energia magnética de anisotropia unidirecional pode ser expressa da seguinte forma,

$$E_{EX} = -J \cos\theta, \quad (3.1)$$

onde J é a constante de interação de troca entre as camadas FM e AFM e θ é o ângulo entre os momentos magnéticos da camada FM e a direção de anisotropia AFM. Isso indica que há somente um estado de equilíbrio, com \vec{M}_s do material FM paralelo à direção de magnetização do material AFM (NOGUES et al., 2005).

Figura 3.2 – Medida de torque feita em amostras de CoO-Co a 77K, com campo externo aplicado de 7500 Oe (BERKOWITZ; TAKAMO, 1999). As curvas (a) e (b) são medidas no sentido horário e anti-horário.



Fonte: (BERKOWITZ; TAKAMO, 1999).

Em filmes finos a intensidade do fenômeno de EB está vinculado às espessuras das camadas FM e AFM, à rugosidade na interface, ao modo de deposição, ao tratamento térmico, à cristalinidade, entre outros fatores (MALOZEMOFF, 1987), (NOGUES; SCHULLER, 1999).

Estudos mostram também que dois materiais FM com constantes de anisotropias diferentes, uma bem maior que a outra, apresentam o acoplamento, portanto, apresentando o fenômeno de EB (HU et al., 2018).

3.2 MODELO INTUITIVO PARA DESCRIÇÃO DO EB

O fenômeno de EB tem sua origem física na interação de troca existente entre os momentos magnéticos presentes na interface dos materiais FM e AFM (MEIKLEJOHN; BEAN, 1956). Anterior à apresentação das principais características e teorias do EB, será descrito o modelo apresentado por Nogués e Schuller, em seu artigo de revisão (NOGUES; SCHULLER, 1999) o qual permite uma boa compreensão do fenômeno.

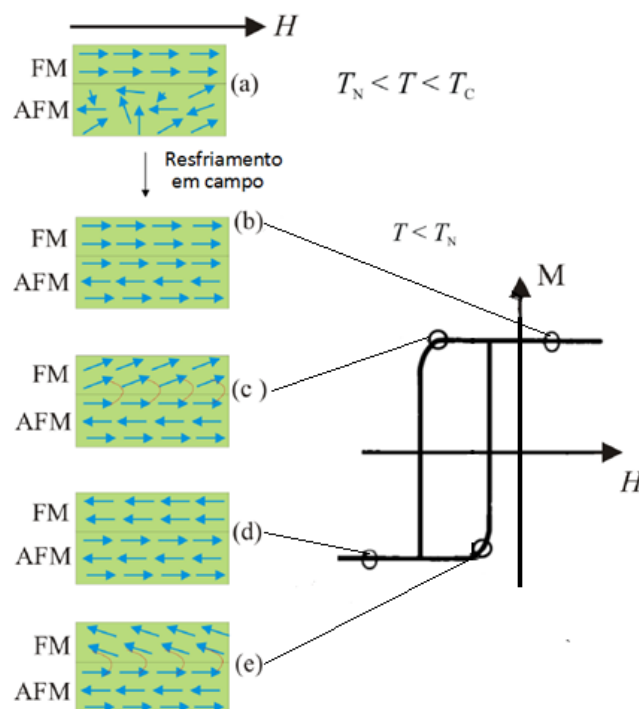
O modelo proposto por Nogués e colaboradores (NOGUES; SCHULLER, 1999), (NOGUES et al., 2005), é um modelo simplificado e intuitivo das configurações de spins para o acoplamento FM/AFM. Ele é baseado nos trabalhos de Meiklejohn e Bean (MEIKLEJOHN, 1962), (MEIKLEJOHN; BEAN, 1956), (MEIKLEJOHN; BEAN, 1957) para uma bicamada de filmes finos composta de materiais FM/AFM, crescendo sem campo magnético aplicado. Quando o sistema se encontra em uma situação em que $T_N < T < T_C$, os momentos magnéticos do FM irão se alinhar com o campo magnético aplicado, enquanto os momentos do AFM estão desorientados, pois estão no estado paramagnético, como pode ser visto na figura 3.3 (a). Após resfriar o sistema na presença de campo, até $T < T_N$, os momentos magnéticos da camada AFM próximos a interface se alinham paralelamente aos momentos da camada FM, figura 3.3 (b), após isso todos os momentos magnéticos da camada AFM orientam-se de forma que sua magnetização líquida total seja nula.

Quando o campo magnético é invertido, os momentos magnéticos da camada FM tendem a girar, enquanto os da camada AFM mantêm-se praticamente inalterados devido à sua forte anisotropia, bem maior do que a da camada FM. Surge então, os efeitos da interação de troca entre os momentos interfaciais. Os momentos do AFM exercem um torque microscópico sobre os momentos da camada FM, tentando mantê-los na posição original, figura 3.3 (c).

O campo magnético necessário para inverter completamente a magnetização do material FM será maior se ele estiver em contato com um AFM, já que é necessário um campo adicional para superar o torque originado pelo acoplamento entre as camadas. Os momentos magnéticos da camada FM giram até ser obtida a situação de saturação, figura 3.3 (d). Variando-se o campo no outro sentido, aquele existente durante o resfriamento, os momentos da camada FM giram antes mesmo do que ocorreria caso não existisse o acoplamento, devido a atuação do torque entre os momentos interfaciais, como pode ser visto na figura 3.3 (e), pois o estado de equilíbrio do sistema é aquele no qual os momentos magnéticos interfaciais estão paralelos.

O sistema funciona como se houvesse um campo adicional sendo aplicado sobre ele. O valor de campo que corresponde ao deslocamento da curva de histerese é chamado de "*campo de exchange bias*" (H_{eb}). Para a maioria dos sistemas magnéticos que apresentam EB, o centro do ciclo de histerese desloca-se para campos negativos se o campo durante o resfriamento for aplicado no sentido positivo onde, conforme o modelo intuitivo,

Figura 3.3 – Modelo intuitivo para o EB (NOGUES; SCHULLER, 1999).



Fonte: Adaptada de (SOUSA, 2013).

os momentos magnéticos interfaciais das camadas FM e AFM acoplam-se ferromagneticamente. Em virtude da forma como esse acoplamento ocorre, ou seja, com um mínimo de energia apenas quando a magnetização está em um dos sentidos ao longo do eixo de anisotropia, ele ganhou o nome de unidirecional (tradução livre de "unidirectional" que do inglês indica apenas um sentido para a anisotropia).

Esse modelo intuitivo permite apenas uma visão qualitativa do fenômeno, ele não é capaz de estimar muitos efeitos e parâmetros associados com o EB, os quais serão discutidos nas seções seguintes.

3.3 CARACTERÍSTICAS DO EB

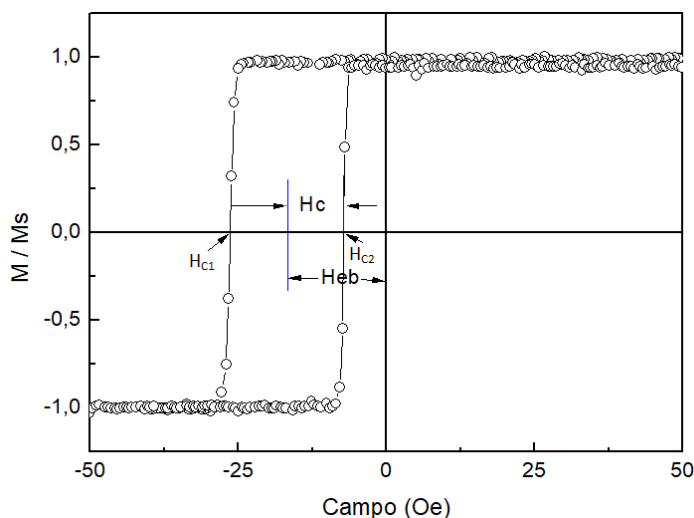
Como citado anteriormente, a característica mais comum do fenômeno de EB é o deslocamento em campo do ciclo de histerese magnética. Outra característica básica é o aumento da coercividade, quando comparado com aquela de um material FM desacoplado (O'GRADY; FERNANDEZ; VALLEJO, 2010). Em virtude do deslocamento, existem dois valores distintos para a coercividade (H_{C1} e H_{C2}). Desse modo, o H_C é representado pela metade da largura da curva para $M=0$. Uma curva típica de histerese magnética de um sistema com EB está mostrada na figura 3.4, onde estão localizados H_C e H_{eb} .

Os campos coercivos e de exchange são definidos por:

$$H_C = \frac{|H_{C1} - H_{C2}|}{2}, \quad (3.2)$$

$$H_{eb} = \frac{|H_{C1} + H_{C2}|}{2}. \quad (3.3)$$

Figura 3.4 – Curva de histerese típica de amostras que apresentam o fenômeno de EB (Ta/NiFe/FeMn/Ta).



Fonte: Autora.

A seguir serão discutidas outras características que influenciam no aparecimento e na intensidade com que o fenômeno de EB se manifesta.

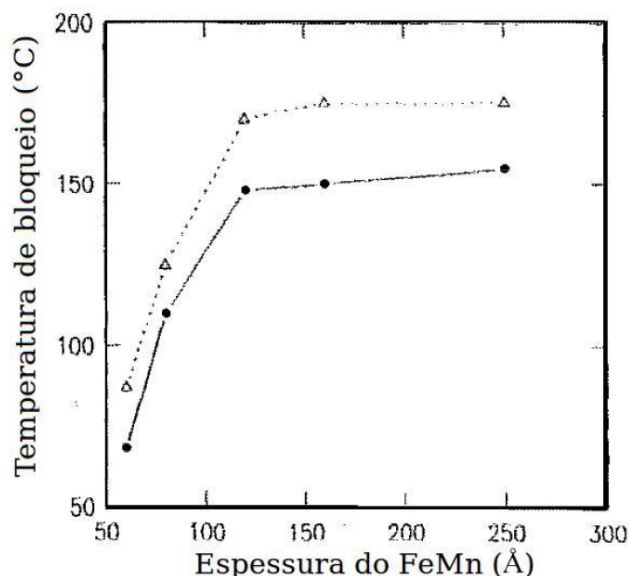
3.3.1 Dependência com a temperatura

Nos sistemas com EB, a temperatura crítica a partir da qual o efeito se extingue é chamada *temperatura de bloqueio* (T_B). Experimentalmente, verifica-se em alguns casos que a T_B pode ser menor que a T_N do material AFM envolvido, em outros a $T_B \approx T_N$ (RADU; ZABEL, 2008). Para o FeMn, material AFM utilizado nesse trabalho, a T_N é em torno de 220°C e T_B entre 110°C e 210°C (NOGUES; SCHULLER, 1999).

O valor da T_B pode estar relacionado a fatores como tamanho dos grãos interfaciais, anisotropia e espessura da camada AFM (NOGUES et al., 2005). Observa-se na figura 3.5, que quanto menor a espessura da camada AFM, menor é a T_B , mostrando que essa exerce grande influência sobre o comportamento do EB. Acima de uma dada espessura da camada AFM ($\approx 120\text{\AA}$ para o FeMn), o valor da T_B tende a ficar estável.

Podemos observar que a presença de uma camada de Ta na composição das amostras influencia no valor da T_B . As amostras depositadas sobre Ta apresentam valores mai-

Figura 3.5 – Influência da espessura do AFM na T_B em filmes finos de NiFe(300Å)/FeMn(60-250Å) (linha sólida) e Ta(200Å)/NiFe(300Å)/FeMn(60-250Å) (linha pontilhada) depositados sobre substrato de vidro.



Fonte: (ALLEGGRANZA; CHEN, 1993).

ores para essa temperatura (ALLEGGRANZA; CHEN, 1993). As amostras em estudo nesse trabalho foram depositadas sobre substratos de vidro e foi usada uma camada *buffer* de Ta, conseqüentemente, deve ter influência sobre o fenômeno de EB apresentado por elas.

3.3.2 Dependência do H_{eb} e H_C com a espessura da camada FM

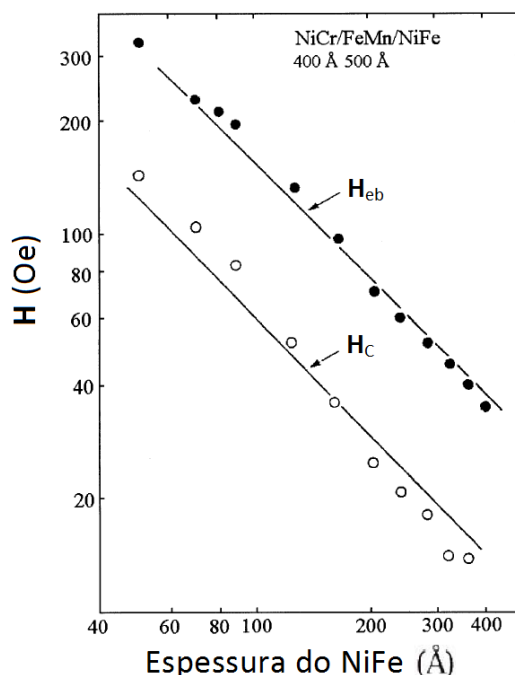
A influência da espessura da camada FM (t_{FM}) em filmes finos sobre o efeito de EB é uma questão bastante explorada experimentalmente. A figura 3.6 apresenta a dependência do H_{eb} e H_C em função da espessura da camada FM. Em geral, H_{eb} é proporcional ao inverso da espessura da camada FM, indicando que o EB é um fenômeno de interface (NOGUES; SCHULLER, 1999), (JUNGBLUT et al., 1994):

$$H_{eb} \propto \frac{1}{t_{FM}}. \quad (3.4)$$

Este comportamento é válido para camadas FM espessas, com várias dezenas de nanômetros (nm). No entanto, se a camada FM é muito fina, a relação não é mais válida (NOGUES; SCHULLER, 1999), provavelmente porque a camada FM torna-se descontínua. A espessura em que isso ocorre (geralmente alguns nm) varia de sistema para sistema e depende da microestrutura em estudo e das condições de crescimento da camada FM.

Apesar da dependência de H_C ser semelhante ao comportamento de H_{eb} , como

Figura 3.6 – Dependência de H_{eb} e H_C com a espessura da camada FM. Amostras de NiCr/FeMn/NiFe.



Fonte: Adaptado de (NOGUES; SCHULLER, 1999).

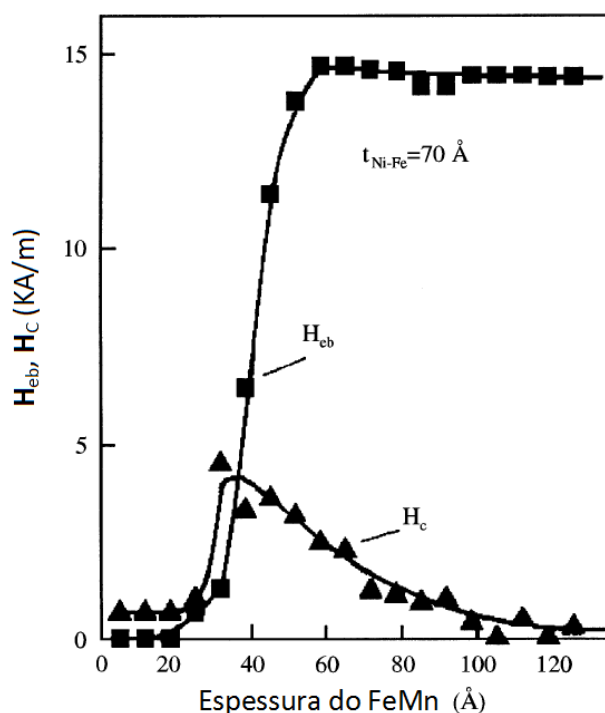
mostrado na figura 3.6, em alguns sistemas FM/AFM essa dependência se revela mais complexa, sendo proporcional ao inverso da espessura em um expoente que admite valores entre 1 e 1,5 (SEU et al., 2003), (ZHANG et al., 1999).

$$H_C \propto \frac{1}{(t_{FM})^n}. \quad (3.5)$$

3.3.3 Dependência do H_{eb} e H_C com a espessura da camada AFM

A dependência do H_{eb} e H_C com a espessura da camada AFM (t_{AFM}) é mais complicada. O fenômeno de EB só ocorre acima de uma dada espessura da camada AFM (espessura crítica) e, normalmente, o H_{eb} aumenta abruptamente até um valor máximo onde se estabiliza (O'GRADY; FERNANDEZ; VALLEJO, 2010), (NOGUES; SCHULLER, 1999), (SEU et al., 2003), como mostra a figura 3.7. Em alguns casos pode ser observado um máximo de H_{eb} antes de atingir um valor estável. A espessura exata em que cada um desses estágios é atingido depende do material em estudo, de sua estrutura microscópica e da temperatura que a medida é realizada. Outro detalhe interessante é que normalmente a subida abrupta de H_{eb} é acompanhada por um pico no valor do H_C , como pode ser visto na figura 3.7.

Figura 3.7 – Dependência de H_{eb} e H_C com a espessura da camada AFM. Amostras de NiFe/FeMn.



Fonte: (NOGUES; SCHULLER, 1999).

Tais comportamentos podem estar ligados a fatores como o fato de que a anisotropia de um filme muito fino pode não ser suficientemente forte para impedir a rotação da camada FM sob a ação de um campo aplicado, ou ainda, a dependência da T_N com a espessura do AFM. Ao estudarem amostras com IrMn, Ali e colaboradores (ALI et al., 2003), explicam tais fatores associando-os à formação de uma parede de domínio parcial no AFM, paralela a interface (XI; WHITE, 2000). Porém, a descrição desses comportamentos é complicada para ser descrita em um modelo geral, pois a espessura em que cada um dos estágios se manifesta é dependente do material em estudo, do tamanho dos grãos, da temperatura de Néel, entre outros.

3.3.4 Efeito de treinamento

A curva de histerese de um material FM não acoplado com um AFM, geralmente é simétrica, tanto em relação ao eixo de magnetização quanto ao de campo magnético. Num sistema com EB isso nem sempre é verdade, observando-se com frequência uma assimetria entre o ramo descendente e o ascendente (RADU; ZABEL, 2008). Esta é uma propriedade intrínseca do EB, contudo efeitos semelhantes podem estar relacionados com

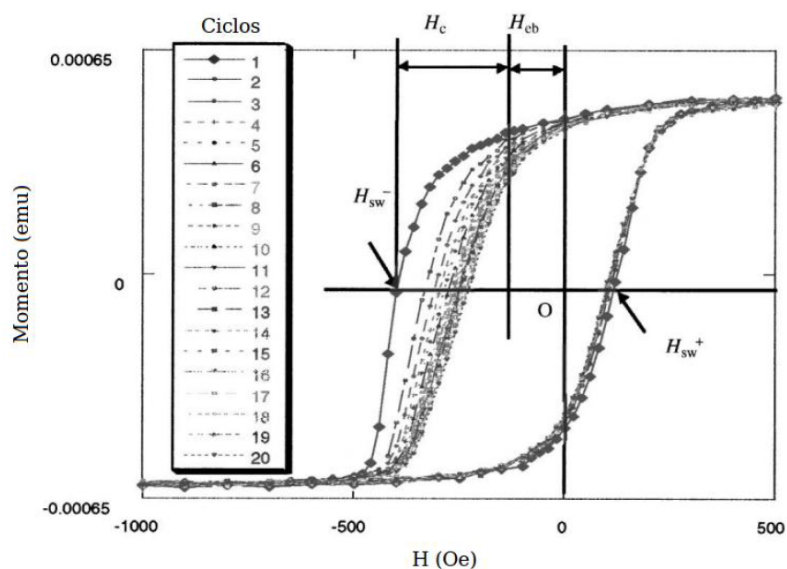
a reorientação parcial dos domínios do AFM que ocorre a cada ciclo completo da magnetização do material FM. Tais mudanças geralmente estão associadas a sistemas que apresentam os chamados efeitos de treinamento (ou *training effect*). Paccard em 1966 (PACCARD et al., 1966), observou pela primeira vez esse efeito em sistemas contendo interfaces de Co/CoO e NiFe/AFM. Consiste basicamente em uma redução nos valores de H_{eb} e H_C com o número de ciclos de histerese magnética consecutivos que é feito na amostra a uma temperatura fixa. A figura 3.8 apresenta o efeito para os 20 primeiros ciclos de histerese magnética de uma determinada amostra.

Recentemente foi demonstrado que o efeito de treinamento é dividido em dois estágios: o primeiro ocorre entre o primeiro e o segundo ciclo de histerese e acarreta em uma acentuada queda no valor de H_{eb} . Essa parcela é conhecida como efeito de treinamento atérmico (FERNANDEZ-OUTON et al., 2006), (BITERNAS; NOWARK; CHANTRELL, 2009), explicado por Hoffmann (HOFFMANN, 2004) a partir de um modelo simples de rotação coerente da magnetização, sugerindo que o efeito pode ser causado por um acoplamento do tipo *spin-flop* (KOON, 1997) (orientação perpendicular dos momentos FM relativos à direção de eixo fácil da camada AFM). O segundo estágio descreve a gradativa redução de H_{eb} na medida em que os ciclos de histerese vão sendo medidos (NOGUES; SCHULLER, 1999).

$$H_{eb} \propto \frac{1}{(\sqrt{n})} \text{ (para } n > 2). \quad (3.6)$$

onde n é o número de ciclos realizados.

Figura 3.8 – Caso típico de efeito de treinamento. Os campos coercivos são representados por H_{sw} .



Fonte: (FUJIWARA et al., 2001).

Outras origens para o efeito de treinamento foram propostas como, por exemplo, a simetria magnética do AFM (NOGUES et al., 2005) e movimento de paredes de domínio durante o ciclo de magnetização. O efeito não aparece em todos os casos em que há o fenômeno de EB, no entanto, é sempre importante certificar-se de sua existência, para garantir uma correta obtenção dos parâmetros a serem avaliados. Dessa maneira, pode-se avaliar a mudança de comportamento existente nas dez primeiras curvas de magnetização para um dada amostra (JUNGBLUT et al., 1994), para avaliar se há o efeito de treinamento.

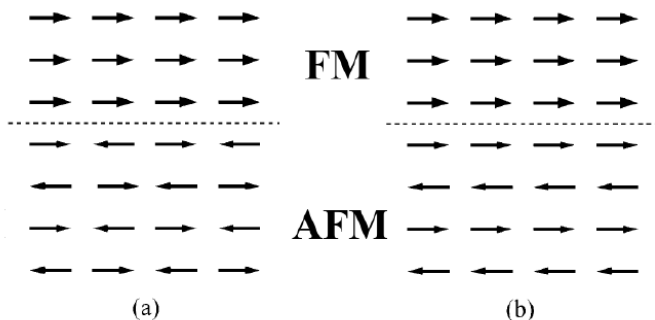
3.4 FATORES QUE INFLUENCIAM NO FENÔMENO DE EB

3.4.1 Configuração dos spins interfaciais

Sendo o EB um fenômeno interfacial, um fator que deve-se levar em conta é a forte relação entre a configuração de spins na interface FM/AFM. No modelo intuitivo da figura 3.3, a configuração que aparece é uma configuração colinear, ou seja, os spins interfaciais das camadas FM e AFM estão alinhados na mesma direção. De modo geral, podemos considerar duas configurações interfaciais colineares:

- estrutura interfacial compensada: magnetização líquida da camada AFM na interface é nula, figura 3.9 (a).
- estrutura interfacial não-compensada: magnetização líquida da camada AFM não é nula na interface, figura 3.9 (b).

Figura 3.9 – Diagrama esquemático das configurações interfaciais colineares (a) interface compensada e (b) interface não-compensada.

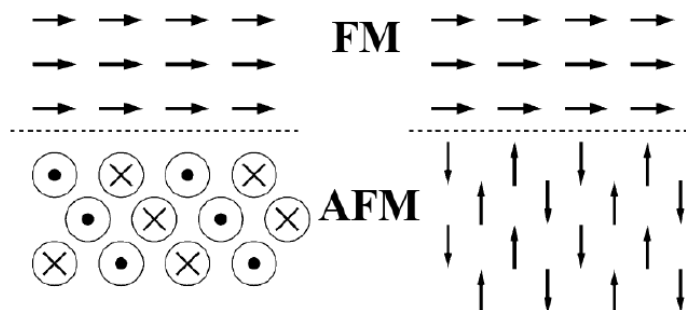


Fonte: Adaptado de (KIWI, 2001).

Os spins FM e AFM interfaciais podem ainda formar configurações não-colineares, ou seja, que não estejam alinhados na mesma direção. Neste caso, os spins da camada

AFM estão alinhados perpendicularmente aos spins da camada FM. A não-colinearidade pode gerar ângulos entre as direções das magnetizações das camadas FM/AFM desde 0° até 180° . A figura 3.10 mostra um diagrama esquemático para o ângulo de 90° .

Figura 3.10 – Diagrama esquemático das configurações interfaciais não-colineares para o ângulo de 90° .



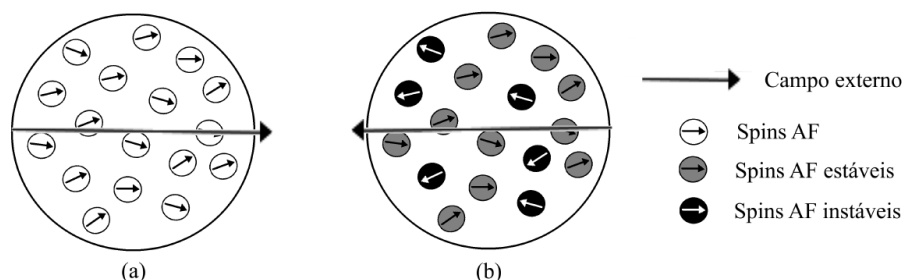
Fonte: Adaptado de (KIWI, 2001).

Outra configuração relevante, mais complexa e com maior aceitação atualmente, principalmente para materiais policristalinos, é aquela em que a interface entre os materiais FM e AFM pode ser dividida, em pelo menos, duas categorias diferentes de grãos, ou aglomerado de grãos, os quais se comportam individualmente como monodomínios (O'GRADY; FERNANDEZ; VALLEJO, 2010), (STILES; MCMICHAEL, 1999), (FUJIWARA et al., 2001), (HARRES; GESHEV, 2011), (BERKOWITZ; TAKAMO, 1999), (FUJIWARA et al., 1999), (RIGUE et al., 2015). O'Grady *et al.* (O'GRADY; FERNANDEZ; VALLEJO, 2010) atribuíram às características dessas regiões as diferentes interações que os spins interfaciais não-compensados do AFM mantém com o restante da rede. Berkowitz *et al.* (BERKOWITZ; TAKAMO, 1999) consideraram que os aglomerados de grãos eram partículas ferromagnéticas que se formaram através de reações químicas. Esses aglomerados podem ser separados quanto a estabilidade que apresentam, em relação à direção de anisotropia do AFM, quando a magnetização da camada FM varia sua direção.

Em um dos seus trabalhos Fujiwara *et al.* (FUJIWARA et al., 1999) consideraram que ambas estruturas estivessem presentes na interface FM/AFM. Os spins não-compensados da camada AFM são divididos em estáveis e instáveis, figura 3.11. Os spins estáveis estão fixos na direção original determinada pelo campo aplicado, e os spins instáveis mudam de direção com a mudança da direção da magnetização da camada FM. Além disso, considera que somente a magnetização líquida dessa camada deve estar apontando na direção de seu eixo de anisotropia, existindo assim a liberdade dos spins AFM estarem apontando em direções diferentes ou próximas a essas. A figura 3.11, ilustra o comportamento dos spins interfaciais não-compensados da camada AFM, em um sistema FM/AFM, quando o campo magnético externo aponta na direção do acoplamento de troca entre as camadas, que é também a direção de anisotropia do AFM. Quando o campo magnético é

invertido, a camada FM tende a girar junto com o campo, mas devido a presença do fenômeno de EB, os spins não-compensados da camada AFM aplicam um torque microscópico sobre os momentos da camada FM, dificultando a rotação. Mas como pode ser visto na figura 3.11 (b), nem todos os spins interfaciais do AFM se comportam dessa forma, existindo os estáveis que cumprem esse papel e os instáveis que giram irreversivelmente com o campo magnético que é aplicado.

Figura 3.11 – Ilustração esquemática dos spins interfaciais não-compensados da camada AFM. (a) Spins apontam na mesma direção do campo magnético externo. (b) Diferentes classificações dos spins AFM da interface quando o campo é invertido.



Fonte: (FUJIWARA et al., 1999).

A maioria dos autores ao utilizarem as classificações de grãos interfaciais mencionadas acima concordam em atribuir aos grãos estáveis do AFM o surgimento da anisotropia unidirecional que está relacionada com a magnitude do H_{eb} e aos grãos instáveis, manifestações como efeito de treinamento, aumento da coercividade e a existência de histerese rotacional.

3.4.2 Rugosidade interfacial

Outra característica da interface que influi sobre o EB é a rugosidade na interface e que separa os materiais FM e AFM, pois interfaces reais sempre apresentam um certo grau de rugosidade e/ou de interdifusão entre os materiais de uma camada e outra. A maior parte dos resultados experimentais descrevem, em filmes finos texturizados, que a magnitude de H_{eb} decresce com o aumento da rugosidade interfacial (NOGUES; SCHULLER, 1999), (PARK; MIN; SHIN, 1996). Contudo, alguns sistemas se mostram mais resistentes a sua influência (NOGUES; SCHULLER, 1999), (HAN et al., 1997), e outros se comportam de maneira inversa, ou seja, quanto maior a rugosidade interfacial maior H_{eb} (NOGUES; SCHULLER, 1999), (FLEISCHMANN et al., 2010).

A presença da rugosidade na interface pode afetar a formação dos domínios magnéticos e ainda alterar a compensação dos spins interfaciais. Experimentalmente, verifica-se que a influência da rugosidade sobre o EB não depende da estrutura interfacial, ou seja,

aparece em estruturas não-compensadas, compensadas, colineares e não-colineares (NOGUES; SCHULLER, 1999).

A refletividade de raios X (XRR) é uma técnica usada com frequência para avaliar a rugosidade na interface. Esse parâmetro está relacionado com a atenuação das franjas de Kiessig e com a mudança no decaimento do difratograma, e pode ser obtido através de um ajuste sob os pontos experimentais (FLEISCHMANN et al., 2010), (HARRES; GESHEV, 2011), (MALINOWSKI et al., 2003).

3.4.3 Cristalinidade e tamanho de grão

Outros dois parâmetros que devem ser controlados e caracterizados são a cristalinidade (ou textura cristalográfica) e o tamanho de grãos. A cristalinidade desempenha um papel essencial para a observação do fenômeno de EB, uma vez que consiste da distribuição de orientações cristalinas de um material policristalino. Essas orientações são resultado das condições de formação do cristal (CASTRO et al., 2013), (CHEN, 2009). Nesses materiais, a forma como a camada AFM cresce é essencial para o aparecimento e acentuação do fenômeno de EB, já que está ligada diretamente à forma com que os domínios localizados na interface estarão arranjados para interagirem com a camada FM.

O H_{eb} aumenta, na maioria das vezes, com a melhora da cristalinidade para uma amostra que possui uma única orientação preferencial (NOGUES; SCHULLER, 1999). No caso do material AFM ser o IrMn ou FeMn, sendo esse último o material AFM estudado neste trabalho, o crescimento do filme com textura (111) é fundamental para observação do fenômeno de EB (DRIEL; BOER; LENSSEN, 2000), (PAKALA et al., 2000), (TONG et al., 2000).

O tamanho de grão é um parâmetro onde encontra-se uma maior dificuldade de compreensão e clareza no estudo de sua relação com o fenômeno de EB. Em alguns sistemas foi verificado que o H_{eb} aumenta com o tamanho do grão (TSUNODA et al., 1997) e em outros verifica-se o contrário (UYAMA et al., 1997). Isso se deve ao fato de que o tamanho de grão AFM não varia de forma independente, afetando outros parâmetros como rugosidade, textura cristalina e anisotropia da camada AFM (NOGUES; SCHULLER, 1999).

3.5 MODELOS PARA A DESCRIÇÃO DO EXCHANGE BIAS

Desde a descoberta do fenômeno de EB vários modelos foram apresentados e vem sendo aprimorados, alguns com resultados satisfatórios para a sua descrição. No entanto, nenhum deles foi capaz de explicar de forma totalmente eficaz todos os seus aspectos,

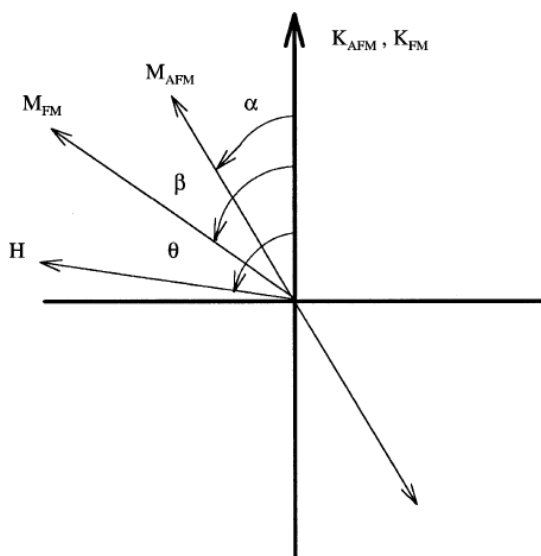
devido à algumas dificuldades como: a grande variedade de sistemas que podem apresentar o fenômeno e a mudança na interface dos sistemas em estudo, já que o EB é um fenômeno interfacial e alguns parâmetros relacionados a ela são de difícil análise.

Um bom modelo para o EB precisa levar em conta todos os efeitos que o acompanham e os diferentes tipos de amostras que serão estudadas. A seguir faz-se uma breve revisão de alguns modelos importantes formulados.

O primeiro modelo para explicar o fenômeno de EB foi proposto por *Meiklejohn e Bean* (MEIKLEJOHN; BEAN, 1956), em 1956. O modelo era simples (semelhante ao modelo intuitivo), e foi bem sucedido qualitativamente. Eles estudaram partículas de Co com uma camada oxidada de CoO (AFM) e propuseram uma rotação coerente para as magnetizações das camadas FM e AFM. Além disso, o modelo considera uma interface FM/AFM atômica sem imperfeições e apresentando uma estrutura de spins não-compensados.

A geometria dos vetores envolvidos nesse modelo de *Meiklejohn e Bean* para um sistema FM/AFM pode ser observada na figura 3.12. O ângulo entre a magnetização da camada FM (M_{FM}) e o eixo de anisotropia FM é β , o ângulo entre a magnetização da camada AFM (M_{AFM}) e o eixo de anisotropia AFM é α e o ângulo entre os eixos das anisotropias FM e AFM (assume-se que são colineares) e o campo aplicado (H) é definido como θ .

Figura 3.12 – Diagrama esquemático dos ângulos envolvidos para um sistema com EB no modelo de Meiklejohn e Bean. Assume-se que os eixos das anisotropias FM e AFM são colineares e que M_{AFM} tem duas direções opostas.



Fonte: (NOGUES; SCHULLER, 1999).

Nesse modelo, a energia por unidade de área para sistemas com EB, assumindo a

rotação coerente da magnetização, pode ser escrita como:

$$E = -HM_{FM}t_{FM}\cos(\theta - \beta) + K_{FM}t_{FM}\sin^2(\beta) + K_{AFM}t_{AFM}\sin^2(\alpha) - J_{INT}\cos(\beta - \alpha). \quad (3.7)$$

onde J_{INT} é a constante de acoplamento na interface, K_{FM} e K_{AFM} são as constantes de anisotropia das camadas FM e AFM.

Na equação 3.7, os quatro termos correspondem, respectivamente, à relação entre o campo aplicado e a camada FM, às anisotropias FM e AFM e ao acoplamento interfacial. Isto é, os principais termos envolvidos no fenômeno de EB. Considerando que $K_{FM}t_{FM} \ll K_{AFM}t_{AFM}$ e minimizando a energia com relação a α e β obtém-se:

$$H_{eb} = \frac{J_{INT}}{M_{FM}t_{FM}}. \quad (3.8)$$

O modelo de *Meiklejohn e Bean* é bem sucedido em prever o deslocamento do ciclo de histerese, porém, o valor previsto para o H_{eb} é, geralmente, duas ordens de grandeza maior do que observado experimentalmente, para o caso de filmes policristalinos (O'GRADY; FERNANDEZ; VALLEJO, 2010). Esse modelo mesmo considerando os principais parâmetros envolvidos no fenômeno de EB (equação 3.7), deixa a desejar, por exemplo, quando não considera os domínios na camada FM e AFM, a rugosidade na interface e que os eixos de anisotropias FM e AFM podem não ser colineares.

Um problema nesse modelo surge do fato de que a intensidade do H_{eb} depende do valor assumido de J_{INT} , uma vez que não sabe como avaliar essa constante em interfaces mais complexas e em segundo, interfaces reais sempre apresentam um certo grau de rugosidade, o que acaba ocasionando uma divergência entre o modelo e os resultados experimentais.

Um resultado importante, obtido na equação 3.7, é que $H_{eb} \propto \frac{1}{t_{FM}}$, o que caracteriza o EB como um fenômeno interfacial e vem sendo comprovado nos estudos experimentais, como mostrado na figura 3.6.

O segundo modelo foi proposto por *Néel* em 1967 (NÉEL, 1967), sendo o primeiro a notar que o acoplamento em sistemas FM/AFM envolve muitos aspectos. Levou em conta uma interface AFM não-compensada que poderia sofrer mudanças irreversíveis, introduzindo a ideia de uma parede de domínio no interior do AFM durante a reversão da magnetização, ou seja, sugere que quando o campo aplicado é invertido, e a camada FM rotaciona, forma-se uma parede de domínio na camada AFM. Essa parede armazenaria uma parte da energia de acoplamento, diminuindo o valor do H_{eb} . Apesar desse modelo ser relevante para o estudo do fenômeno, ele falha em obter valores razoáveis para o deslocamento em campo da curva de histerese. Outro problema é a exigência de uma espessura mínima das camadas FM e AFM para que se produza esse deslocamento. A teoria de Néel serviu de base para o desenvolvimento de novos modelos (KIWI et al., 1999), (MAURI et

al., 1987).

Fulcomer e Charap, em 1972, propuseram um modelo que é considerado um dos mais bem sucedidos quando se trata de EB (FULCOMER; CHARAP, 1972a), (FULCOMER; CHARAP, 1972b). Nesse modelo, considerou-se uma amostra composta por grãos AFM, com diferentes tamanhos e orientações, acoplados a uma camada FM. O modelo conseguiu prever a dependência do H_{eb} e do H_C com a temperatura. Além disso, explicou efeitos de treinamento e um pico do campo coercivo próximo da temperatura de bloqueio, considerando mudanças termicamente ativadas nas orientações de spins interfaciais não-compensados. Foram levados em conta diversos tamanhos e formas dos grãos do AFM, e uma boa concordância foi obtida ao prever a dependência da temperatura com H_{eb} e H_C , mesmo acima da T_N . Atualmente, esse modelo serve como base para os modelos granulares baseados em flutuações térmicas.

Mauri e colaboradores (MAURI et al., 1987), em 1987, melhoraram a ideia de parede de domínio na camada AFM. Esse modelo trata do acoplamento entre uma camada FM ultrafina e uma camada AFM infinitamente espessa, obrigando a formação de uma parede de domínio, causada pela reversão da magnetização da camada FM e, acontece nas proximidades da interface FM/AFM. Nesse caso, a interface é considerada como sendo perfeitamente lisa e com uma determinada espessura. De acordo com esse modelo, a formação de paredes de domínios nas proximidades da interface FM/AFM resulta em um acoplamento interfacial menor do que o previsto no modelo de *Meiklejohn e Bean*, obtendo valores mais razoáveis para o H_{eb} . Contudo, o modelo não explica características como, por exemplo, o aumento no valor do H_C e o efeito de treinamento.

Malozemoff (MALOZEMOFF, 1987), também em 1987, apresentou um modelo que introduzia uma interface com rugosidade aleatória entre as camadas FM e AFM e encontrou valores de H_{eb} na mesma ordem de grandeza de *Mauri*. A natureza rugosa da interface dá origem a campos magnéticos aleatórios que atuam sobre os spins interfaciais, levando ao surgimento de uma anisotropia unidirecional. Com isso, obteve valores do H_{eb} compatíveis com os resultados experimentais. O ponto fraco desse modelo é o fato de ser de difícil aplicação para filmes policristalinos, pois o comportamento é mais complexo, dependendo da microestrutura do AFM, tornando mais difícil sua aplicação. Além disso, o modelo é incapaz de prever EB em interfaces perfeitamente compensadas.

Koon (KOON, 1997) em 1997, propôs um modelo microscópico para explicar o fenômeno de EB em interfaces compensadas. Ele propôs que a magnetização do material FM tende a se orientar perpendicular ao eixo fácil do AFM. Com este acoplamento perpendicular tanto interfaces compensadas como não-compensadas são capazes de produzir valores semelhantes de H_{eb} . Isso se deve à formação de uma parede de domínio no AFM, paralela à interface, durante a reversão da magnetização do FM. A ideia do acoplamento *spin-flop* (orientação perpendicular dos momentos FM relativos à direção de eixo fácil da camada AFM) é o principal resultado desse modelo. Koon também observou uma pequena

inclinação relativa entre os spins interfaciais da camada AFM.

Entre 1998 e 1999, *Shulthess e Butler* (SHULTHESS; BUTLER, 1998) combinaram os modelos de *Malozemoff e Koon* e resolveram a equação de *Landau-Lifshitz* incluindo o termo de amortecimento de Gilbert-Kelley para estudar o acoplamento de troca entre as camadas FM e AFM. Eles mostraram que se a interface for perfeitamente plana, não é possível observar $H_{eb} \neq 0$. Porém, um aumento na coercividade da camada FM foi percebida, o que é uma característica comum em sistemas com EB. Adicionando defeitos na interface consegue-se obter valores de H_{eb} da mesma ordem de grandeza dos valores experimentais. O fato dos valores do H_{eb} dependerem da natureza e concentração dos defeitos interfaciais dificulta a aplicação desse modelo. O modelo somente é aplicado para sistemas onde FM e AFM são camadas monocristalinas e comportam-se como monodômínios.

Stiles e McMichael (STILES; MCMICHAEL, 1999) em 1999, propuseram um modelo que considera bicamadas de FM/AFM policristalinas com grãos interfaciais do AFM divididos em estáveis e instáveis, e não interagentes entre si. O acoplamento dos grãos FM e AFM ocorre via interação de troca e spin-flop, mediante a formação de uma parede de domínio parcial no AFM. Os grãos AFM estáveis mantêm sua ordem antiferromagnética durante a reversão da magnetização da camada FM, sendo responsáveis pelo deslocamento do ciclo de histerese. Já, os grãos AFM instáveis sofrem mudanças irreversíveis na ordem antiferromagnética durante a reversão e estão associados a efeitos histeréticos observados em curvas de torque e de ressonância ferromagnética.

Mais recente, publicada em 2012 a contribuição de Harres e Geshev. Esse modelo descreve o comportamento magnético de sistemas policristalinos FM/AFM com interfaces granulares. Aparece um termo de anisotropia rodável, o qual explicaria o aumento da coercividade. A proposta considera que os momentos magnéticos não-compensados da camada AFM interagem com os momentos da camada FM. Dependendo da estabilidade desses momentos, eles poderiam ser arrastados pela camada FM durante o processo de reversão da magnetização, possuindo sua própria anisotropia e contribuindo para o aumento do H_C , sem afetar o deslocamento em campo do ciclo de histerese. O diferencial desse modelo é o fato da anisotropia rodável mudar com a variação de um campo magnético externo, resultando numa coercividade diferente de zero ao longo do eixo duro da amostra. Geralmente, essa característica é observada experimentalmente, mas na maioria das vezes, é ignorada nos modelos (HARRRES; GESHEV, 2012).

4 MAGNETORRESISTÊNCIA

A magnetorresistência (MR) é definida como a mudança da resistência elétrica (R) do material quando submetido a um campo magnético externo. Na presença de um campo magnético externo, o arranjo dos spins altera a mobilidade dos elétrons provocando uma variação na resistência. Teoricamente, todos os metais ou ligas metálicas apresentam estas propriedades (MOTT, 1935). Contudo, a magnitude da MR pode ser positiva ou negativa dependendo da configuração eletrônica do metal. Ainda, a MR também depende da intensidade do campo magnético aplicado e sua orientação com relação à direção da corrente elétrica. A magnetorresistência pode ser expressa como:

$$MR = \frac{R(H) - R(H = 0)}{R(H = 0)} = \frac{\Delta R}{R}, \quad (4.1)$$

onde $R(H)$ é a resistência para um determinado valor de campo H , e $R(H = 0)$ é a resistência na ausência de campo magnético.

O valor da magnetorresistência $MR(H)$ normalmente é expresso como uma variação percentual e, em alguns casos pode ser interessante definir a sensibilidade relativa da magnetorresistência:

$$S = \frac{\frac{\Delta R}{R}}{H_s} \cdot 100\%, \quad (4.2)$$

onde H_s é o menor valor de campo externo que permite a saturação do efeito magnetorresistivo (GETZLAFF, 2008) e a unidade de S é dada em %/ Oe.

A magnetorresistência normal e a magnetorresistência anisotrópica (AMR) estão entre os mais importantes efeitos magnetorresistivos e serão discutidos a seguir.

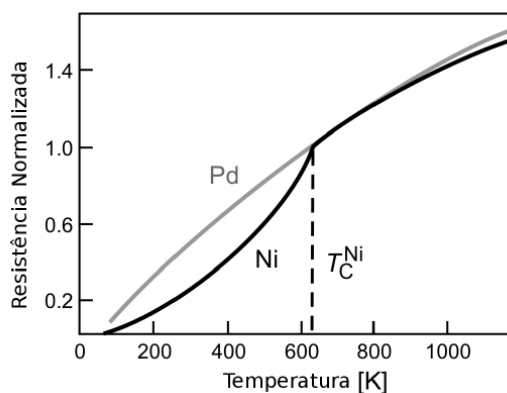
4.1 MAGNETORRESISTÊNCIA NORMAL

A magnetorresistência normal ou positiva é caracterizada por um aumento da resistência elétrica de um material quando se aplica um campo magnético. Ela é melhor observada em materiais não-magnéticos, tais como Cu, Ag, Mg, Zn, Pd, entre outros. Um campo magnético aplicado nestes materiais força os elétrons a se deslocarem em trajetórias espirais, consequência da força de Lorentz, diminuindo o livre caminho médio entre colisões, o que leva a um aumento da resistência.

Em metais de transição ferromagnéticos como por exemplo Fe e Ni, abaixo da temperatura de Curie, a resistência é menor quando comparados aos metais de transição não-magnéticos como o paládio, figura 4.1. Nos metais de transição, o transporte elétrico é devido, principalmente, aos elétrons s que exibem uma pequena massa efetiva. A resis-

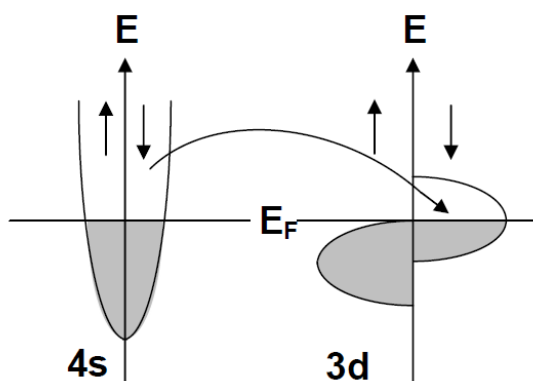
tência pode ser explicada pelo espalhamento de elétrons s pelos estados vazios da banda d próximos ao nível de Fermi (E_F). Metais de transição são caracterizados pela grande densidade de estados (DOS) da banda d no nível de Fermi. Desse modo, a seção de espalhamento é grande e como consequência a resistência é relativamente alta. Já, os metais nobres exibem uma baixa densidade de estados no nível de Fermi, que resulta em uma baixa resistência.

Figura 4.1 – Resistência em função da temperatura para Ni e Pd. As curvas são normalizadas em relação a temperatura de Curie do Ni.



Fonte: (GETZLAFF, 2008).

Figura 4.2 – As diferentes densidades no orbital d viabilizam espalhamentos de elétrons do orbital s para o estado desocupado.



Fonte: (ARAUJO, 2007).

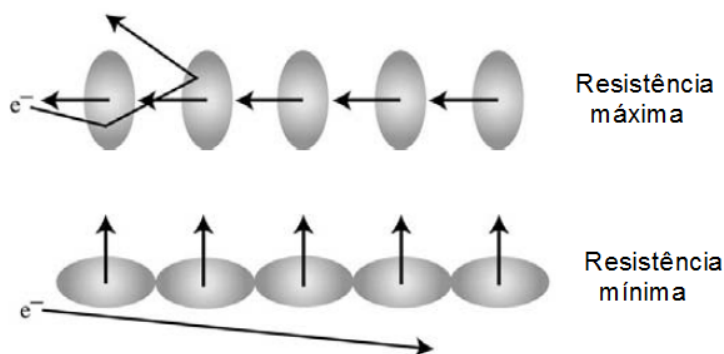
Nos metais FM, comparado a um metal não magnético (NM), a densidade de estados nos orbitais d é menor em função da diferença de ocupação dos estados pelos spins up e down, figura 4.2. Esses materiais quando transitam para a fase FM tem sua resistência reduzida na comparação com um NM, figura 4.1. Nos metais ferromagnéticos a variação da resistência devido a ação de campos externos pode chegar a 6%.

4.2 MAGNETORRESISTÊNCIA ANISOTRÓPICA - AMR

Em 1857 W. Thomson constatou que a resistência do Ni variava levemente com a direção da corrente relativa a direção da magnetização (COEY, 2009). A resistência era cerca de 2% maior quando um campo magnético externo era aplicado na mesma direção da corrente (SPALDIN, 2010). O efeito chamado AMR consiste na variação da resistência de um material ferromagnético em função do ângulo entre a corrente elétrica e a magnetização do material.

A AMR em materiais ferromagnéticos tem sua origem física no acoplamento spin-órbita nos orbitais $3d$ devido ao campo aplicado. Os espalhamentos $s-d$ são dependentes da interação spin-órbita entre o momento magnético do spin S dos elétrons livres participantes da condução e o momento angular L dos estados d desocupados, essa interação não ocorre se os vetores S e L são ortogonais ($\mathbf{L}\cdot\mathbf{S}=0$). Além disso, o momento de um elétron espalhado precisa ser conservado o que, juntamente com o formato dos orbitais d , faz com que a seção de espalhamento seja diferente para uma orientação paralela ou perpendicular entre as direções da magnetização e da corrente elétrica, como mostrado esquematicamente na figura 4.3.

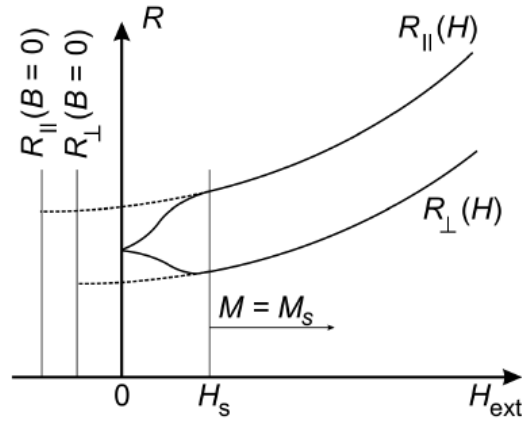
Figura 4.3 – Esquema representando a origem da magnetorresistência anisotrópica. As elipses são as nuvens eletrônicas e as setas indicam a direção dos momentos magnéticos.



Fonte: (SPALDIN, 2010).

O valor da AMR depende do ângulo entre a densidade de corrente elétrica \vec{J} e a magnetização \vec{M} do material ferromagnético. Considerando um material FM saturado, quando então magnetização e campo aplicado estão alinhados conforme a figura 4.3, pode ser observado que a resistência de uma amostra FM é máxima quando a corrente é paralela à direção da magnetização (R_{\parallel}), pois há um maior espalhamento dos elétrons pelos orbitais. É mínima quando a corrente é perpendicular à magnetização (R_{\perp}), pois o espalhamento dos elétrons pelos orbitais é menor. O comportamento da AMR em relação ao campo externo aplicado pode ser visto na figura 4.4. Quando o campo magnético externo é nulo, não há diferença entre as resistências (R_{\parallel} e R_{\perp}). Aumentando a intensidade do

Figura 4.4 – Resistência em função do campo magnético externo para uma orientação paralela (R_{\parallel}) e outra perpendicular (R_{\perp}) entre o campo magnético e a corrente elétrica.



Fonte: (GETZLAFF, 2008)

campo magnético, a diferença entre R_{\parallel} e R_{\perp} alcança um valor máximo em H_s . Após o campo ser maior do que o campo de saturação da amostra a diferença entre as curvas permanece constante.

A dependência angular da resistência devido ao efeito da AMR pode ser expressa como:

$$R(\phi_H) = R_{min} + \Delta R_{AMR} \cos^2(\phi_{FM} - \phi_I). \quad (4.3)$$

onde ΔR_{AMR} é a variação da resistência devido ao efeito AMR e $(\phi_{FM} - \phi_I)$ é a separação angular entre a posição de equilíbrio da magnetização e a direção da corrente. De acordo com essa relação, se o material está saturado a mudança de resistência exibe uma periodicidade de 180° quando o material ferromagnético é rotacionado sob aplicação de um campo magnético constante. A equação 4.3 pode ser reescrita usando os termos:

$$\Delta R_{AMR} = R_{\parallel} - R_{\perp}. \quad (4.4)$$

$$R_{min} = R_{\perp}. \quad (4.5)$$

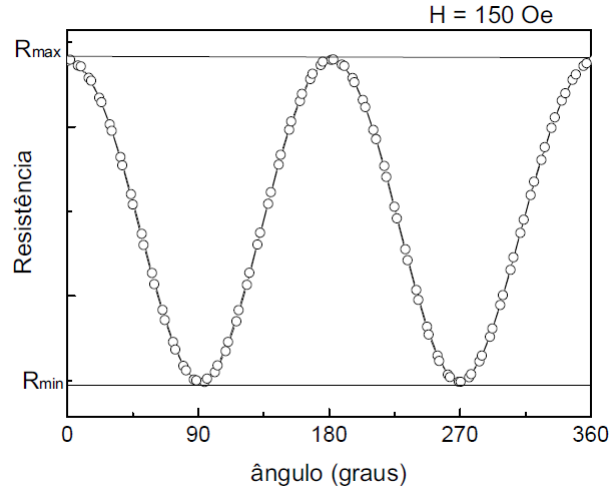
Temos assim:

$$R(\phi_H) = R_{\perp} + (R_{\parallel} - R_{\perp}) \cos^2(\phi_{FM} - \phi_I). \quad (4.6)$$

A equação (4.6) para um material FM, mantém-se válida para sistemas que apresentam o fenômeno de EB. ϕ_{FM} depende da orientação e intensidade do campo aplicado (ϕ_H) e, também das anisotropias presentes na amostra e suas orientações. Quando a amostra gira em torno do campo aplicado nas medidas de AMR ($R \times \theta$), o comportamento de ϕ_{FM} não depende unicamente do ϕ_H , mas também dos campos de anisotropia (H_K) e H_{eb} . A figura 4.5 mostra o comportamento da resistência em função do ângulo entre a \vec{M}_S

e \vec{J} .

Figura 4.5 – Medida de AMR para uma amostra de Ta(150Å)/NiFe(500Å)/FeMn(120Å)/Ta(150Å) para um valor de campo magnético externo aplicado maior que o H_S .



Fonte: Autora.

4.3 DESCRIÇÃO DO MODELO USADO PARA AJUSTAR AS CURVAS DE AMR

O ajuste do modelo aos dados experimentais foi feito por meio de cálculos computacionais desenvolvidos no programa *Maple*, através dele obtemos os parâmetros que descrevem o sistema magnético (anexo B). O diagrama do sistema magnético com os vetores magnetização, campos (H , H_{eb} e H_K) e a direção da corrente (I) são mostrados na figura 4.6. O campo aplicado e as anisotropias estão no plano das amostras (plano X, Y na figura 4.6). Os eixos de anisotropia uniaxial e unidirecional bem como a direção da corrente podem ser considerados como não coincidentes no modelo. Os termos da densidade de energia livre magnética utilizados no programa para os cálculos são:

$$E_{Total} = E_Z + E_K + E_{eb} + E_{rot}, \quad (4.7)$$

onde E_Z é a energia Zeeman, E_K é a energia uniaxial, E_{eb} é a energia de exchange bias (energia unidirecional) e E_{rot} é a energia rotacional. Cada termo de energia é definido como:

$$E_Z = -\vec{M} \cdot \vec{H}, \quad (4.8)$$

$$E_K = -\frac{1}{2} \frac{(\vec{M} \cdot \vec{H}_K)^2}{M_S H_K}, \quad (4.9)$$

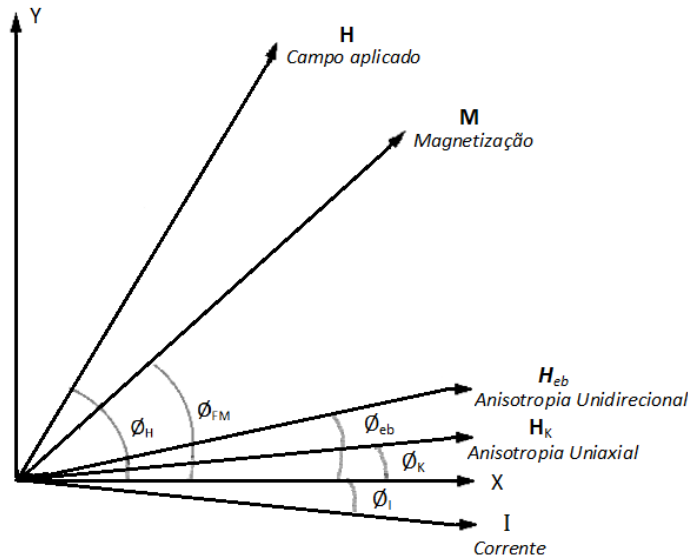
$$E_{eb} = -\vec{M} \cdot \vec{H}_{eb}, \quad (4.10)$$

$$E_{rot} = -\frac{1}{2} \frac{(\vec{M} \cdot \vec{H}_{rot})^2}{M_S H_{rot}}. \quad (4.11)$$

$$(4.12)$$

Na figura 4.6, ϕ_H é o ângulo do campo aplicado, ϕ_{FM} é o ângulo da magnetização, ϕ_{eb} é o ângulo do campo de exchange bias (unidirecional), ϕ_K é o ângulo do campo de anisotropia (uniaxial) e ϕ_I é o ângulo da corrente. Todos eles medidos com relação ao eixo X da amostra. Para um dado campo aplicado e determinada as condições de energia do sistema, dadas pelo H_K e H_{eb} e suas orientações em relação ao eixo da amostra, o programa procura a orientação de ϕ_{FM} que minimiza a energia magnética total.

Figura 4.6 – Representação dos ângulos utilizados na formulação básica do modelo descrito. X e Y definem o plano da amostra.

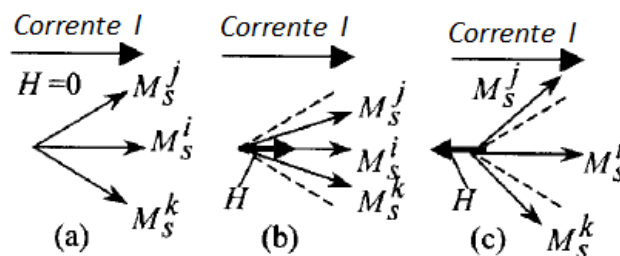


Fonte: Autora.

Considerando que as amostras são policristalinas e que diferentes grãos podem ter orientações diferentes entre os eixos de anisotropia foi usada uma distribuição de probabilidade angular Gaussiana (P_i), cujo desvio padrão (σ_B) está associado à dispersão dos eixos de anisotropia em torno da direção do campo de bias, como na referência (HOU et al., 2001). O desvio funciona como um "leque" de direções de H_{eb} . A figura 4.7, mostra a representação esquemática dessa dispersão. As medidas de AMR ($R \times \theta$), para cada campo aplicado, são calculadas como a soma da contribuição de cada grão usando uma P_i , equação 4.13:

$$R(\phi_H) = R_{\perp} + (R_{\parallel} - R_{\perp}) \sum_i P_i \cos^2(\phi_{FM} - \phi_I). \quad (4.13)$$

Figura 4.7 – Dispersão dos momentos para três casos: (a) campo aplicado nulo ($H = 0$), (b) campo aplicado paralelo à direção da corrente e (c) campo aplicado na direção oposta à direção da corrente. As linhas pontilhadas representam as posições dos momentos em $H = 0$.



Fonte: (HOU et al., 2001).

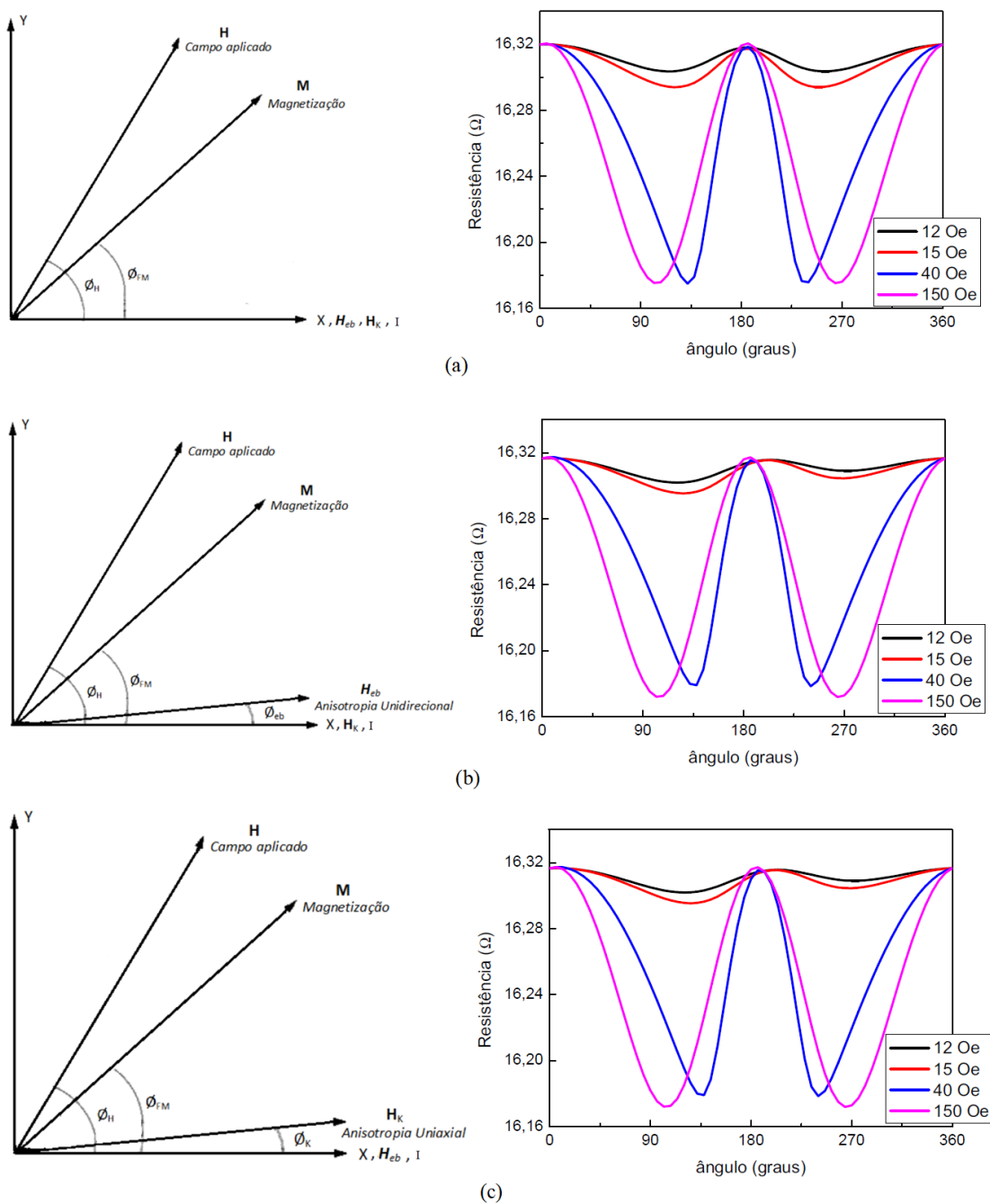
No ajuste, o parâmetro σ_B é responsável pela redução no valor da resistência em $\theta_H = 180^\circ$ em comparação com os valores em $\theta_H = 0$ ou 360° . De acordo com a referência (HOU et al., 2001) a diminuição do máximo central ($\theta_H = 180^\circ$) decorre da dispersão na direção da magnetização no interior da camada FM e na interface do sistema FM/AFM. A explicação qualitativa para a origem na redução do pico próximo a $\theta_H = 180^\circ$ é ilustrada na figura 4.7. A figura 4.7 (a) mostra os momentos dispersos localmente, designados como M_s^i , M_s^j e M_s^k no estado remanescente com campo aplicado nulo ($H = 0$). Quando o campo é aplicado paralelo à direção da corrente, os momentos M_s^j e M_s^k convergem para a direção média M_s^i , figura 4.7 (b). Neste caso, a resistência no efeito de AMR é maior em $\theta_H = 0^\circ$ do que em $\theta_H = 180^\circ$. Por outro lado, quando o campo é aplicado na direção oposta à corrente, M_s^j e M_s^k divergem da direção média, figura 4.7 (c).

A figura 4.8 apresenta exemplos de AMR em diferentes condições de campo aplicado e orientação dos eixos de campo e direção da corrente. Os parâmetros (H_{eb} e H_K) usados no cálculo são próximos àqueles das amostras estudadas. Apresenta-se essas curvas para demonstrar como espera-se que seja o comportamento das experimentais. De modo geral, como pode ser observado na figura, a amplitude da AMR vai crescendo com o campo aplicado e, após este campo ser maior que o campo de saturação da amostra os mínimos apresentam forma mais arredondada e os vales se separam até a curva ficar com a forma de $\cos^2(\theta + fase)$, onde a fase depende da orientação inicial entre a corrente e o campo de deposição.

Na figura 4.8 (a) os eixos de anisotropias e a direção da corrente estão alinhados com o eixo na amostra. Podemos observar no gráfico da resistência versus o ângulo do campo aplicado que as curvas são simétricas em torno de $\theta = 180^\circ$. Acima do H_{eb} a AMR atinge um valor máximo, permanecendo constante para valores maiores de campos aplicados.

Na figura 4.8 (b) o eixo de anisotropia uniaxial e a direção da corrente estão ali-

Figura 4.8 – Diferentes orientações nos eixos em relação ao eixo de referência na amostra. O $H_{eb}=24$ Oe e o $H_k=12$ Oe para a amostra usada nesse ajuste.



Fonte: Autora.

nhados com o eixo na amostra, enquanto a anisotropia unidirecional está desalinhada. Podemos observar no gráfico da resistência versus o ângulo do campo aplicado que a curva apresenta uma assimetria entre os mínimos de AMR para valores de campo menores do que o H_{eb} . Para valores de campo aplicado acima do H_{eb} e menores do que o

campo de saturação da amostra, a curva apresenta mínimos mais agudos e mais próximos de $\theta = 180^\circ$. Acima do H_{eb} a amplitude da AMR atinge um valor máximo, permanecendo constante para valores maiores de campos aplicados.

Na figura 4.8 (c) o eixo de anisotropia unidirecional e o eixo da corrente estão alinhados com o eixo na amostra, enquanto a anisotropia uniaxial está desalinhada. O comportamento das curvas de AMR no gráfico da resistência versus o ângulo do campo aplicado é semelhante ao descrito para as curvas da figura 4.8 (b).

O eixo da corrente não foi desalinhado dos eixos de anisotropias e do eixo na amostra, pois para o caso das nossas amostras, devido aos cortes feitos através das máscaras foi possível definir a direção da corrente em relação a direção de anisotropia. A corrente elétrica é aplicada na mesma direção do campo aplicado durante a realização das medidas.

A fim de ajustar as curvas de AMR, o ângulo de equilíbrio da magnetização (ϕ_{FM}) foi determinado usando o modelo de rotação coerente da magnetização, juntamente com a minimização da energia total, com os três termos de energia citados anteriormente. A AMR foi calculada de acordo com a equação 4.13 (GETZLAFF, 2008), (WALTER et al., 2014), (HOU et al., 2001).

5 TÉCNICAS E PROCEDIMENTOS EXPERIMENTAIS

Este capítulo trata das técnicas e procedimentos experimentais que foram adotados na produção e caracterização estrutural, magnética e de transporte elétrico das amostras.

5.1 AMOSTRAS

Para realização de nosso estudo foram produzidas amostras na forma de filmes finos que apresentam o fenômeno de EB. Foram produzidas bicamadas FM/AFM, onde o material FM foi o Permalloy (Py), na composição $Ni_{81}Fe_{19}$, e o AFM foi o ferro-manganês, na composição $Fe_{50}Mn_{50}$. Foi usada uma camada *buffer* e uma camada protetora de Tântalo (Ta), ambas com 150\AA de espessura. A camada *buffer* melhora a aderência do filme ao substrato e favorece a texturização das camadas FM e AFM na direção (111). A camada protetora protege o filme da oxidação quando exposto à atmosfera.

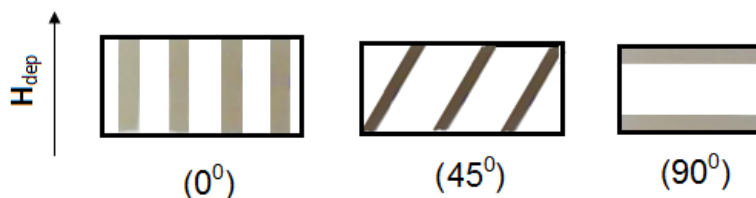
As amostras, a caracterização estrutural, magnética, morfológica por imagens de microscopia de força atômica e de transporte elétrico foram feitas no Laboratório de Magnetismo e Materiais Magnéticos (LMMM) da Universidade Federal de Santa Maria (UFSM). Elas foram depositadas por *magnetron sputtering* sobre substratos de vidro. Durante a produção das amostras, foi aplicado um campo magnético ($H_{dep} \approx 1kOe$) produzido por ímãs permanentes, no seu plano a fim de induzir a direção de anisotropia. Cada conjunto de amostra foi depositado numa única rodada, sendo possível depositar quatro amostras por rodada.

No primeiro momento, foram produzida bicamadas, variando a espessura da camada FM ($400-700\text{\AA}$), depositadas com pressão de argônio (Ar) de 2,1 mTorr. Essas espessuras foram escolhidas devido a sensibilidade do magnetômetro de torque e da AMR ($\approx 10^{-10}Nm$). Foram feitas comparações entre as medidas de magnetização, torque ($torque \times \theta$) e magnetorresistência ($R \times \theta$). Nas medidas de magnetização foi verificado um decréscimo no H_{eb} com o aumento na espessura da camada FM, mas tal decréscimo não demonstrou a dependência, ou seja, $H_{eb} \propto \frac{1}{t_{FM}}$. Essa diferença foi associada ao aumento do número de spins AFM não-compensados, devido ao decréscimo no tamanho de grão da camada de FeMn, como verificado nas medidas de raios X. Verificou-se também que a histerese rotacional do sistema saturado, analisada por torque, não se manifestava na AMR. Concluiu-se, preliminarmente, o que já se tinha conhecimento, ou seja, que o EB é um fenômeno de interface, pois via AMR a corrente evita a interface. Todo esse estudo detalhado encontra-se na referência (SILVA et al., 2018), em anexo.

No segundo momento, foram produzidas bicamadas depositadas a diferentes va-

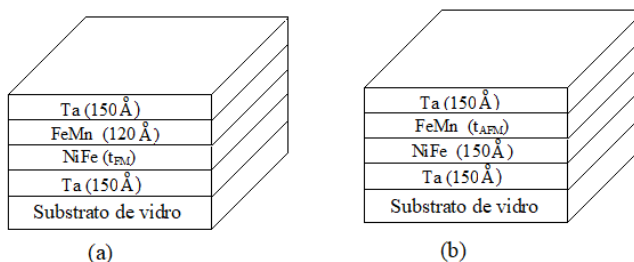
lores de pressão Ar, 1,5; 3 e 6 mTorr (conjunto 1819). Foram usadas máscaras durante a deposição das amostras a fim de definir a direção da corrente em relação à direção de anisotropia, seguindo a metodologia utilizada por (BARHOLZ; MATHEIS, 2002). Os ângulos foram de 0° , 45° e 90° em relação ao campo aplicado durante a deposição (\vec{H}_{dep}) ou campo de pinning, figura 5.1. Foi feita toda caracterização estrutural, magnética e elétrica das amostras, obtendo os resultados mais satisfatórios em relação a uniformidade do filme para as amostras depositadas a pressão mais baixa, ou seja, 1,5 mTorr. O estudo envolvendo esse conjunto de amostras resultou em um trabalho publicado (SIQUEIRA et al., 2019), em anexo, onde conseguimos mostrar que o desalinhamento observado nas curvas de de AMR é devido a um desalinhamento entre os eixos de anisotropia uniaxial e unidirecional, e estabelecemos um protocolo para ajuste das curvas experimentais de $R \times \theta$, afim de observar os parâmetros que descrevem o EB. Ainda nesse segundo momento, foram produzidas outras bicamadas onde manteve-se fixa a pressão de Ar na deposição da camada AFM (1,5 mTorr) e variou-se seu valor na deposição da camada FM (0,7; 1,5; 3,0 e 6,0 mTorr). Isso para tentar se obter uma melhora na textura (111) do NiFe e do FeMn, além de uma melhor qualidade da interface e, dessa forma, obter um sistema com as anisotropias uniaxial e unidirecional melhor definidas.

Figura 5.1 – Orientações das amostras em relação ao campo aplicado durante a deposição.



Fonte: Autora.

Figura 5.2 – Esquema ilustrando a composição das amostras estudadas. Em (a) temos o conjunto variando a espessura da camada FM e em (b) conjunto variando a espessura da camada AFM.



Fonte: Autora

No terceiro momento, depois de avaliar a melhor pressão para deposição, foram

produzidos dois conjuntos de amostras, um variando a espessura da camada FM e outro variando a espessura da camada AFM, conforme esquema da figura 5.2. As tabelas 5.1 e 5.2 apresentam a composição e a espessura nominal das amostras. As amostras com a espessura da camada FM mais fina serviram também para tentar verificar se daria para observar a histerese rotacional por AMR, já que no primeiro conjunto, a camada de NiFe mais espessa promovia um caminho com menor resistência para a corrente.

Tabela 5.1 – Espessuras nominais do conjunto de amostras (1927) variando a espessura da camada FM.

Amostra	Ta (Å)	NiFe/FeMn (Å)	Ta (Å)
1927C	150	30/120	150
1927D	150	60/120	150
1927A	150	120/120	150
1927B	150	240/120	150

Tabela 5.2 – Espessuras nominais do conjunto de amostras (1928) variando a espessura da camada AFM.

Amostra	Ta (Å)	NiFe/FeMn (Å)	Ta (Å)
1928A	150	150/60	150
1928B	150	150/80	150
1928C	150	150/100	150
1928D	150	150/120	150

5.2 PRODUÇÃO DAS AMOSTRAS

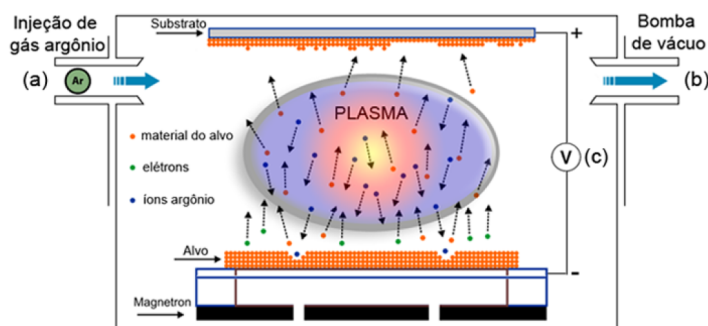
As amostras foram produzidas pela técnica de *magnetron sputtering* ou desbaste iônico. A deposição por *sputtering* é bastante utilizada, devido à excelente reprodutibilidade das amostras produzidas, boa aderência ao substrato e a facilidade no controle da espessura.

A figura 5.3, ilustra o equipamento básico para a deposição de filmes finos por *sputtering*. Nessa técnica, antes do processo de deposição ser iniciado, a câmara é evacuada até uma pressão da ordem de 10^{-7} Torr. Em seguida um gás nobre, nesse caso o argônio, é injetado na câmara com pressão da ordem de 10^{-3} Torr, formando uma atmosfera inerte. A emissão do material do qual se deseja obter o filme, ou seja, o *sputtering*, começa quando é aplicada uma diferença de potencial da ordem de alguns kV entre o porta-substratos e o alvo que contém o material a ser pulverizado, ionizando o gás na região e formando um plasma. Os íons do plasma são acelerados pela diferença de potencial e, ao

colidirem balisticamente com o alvo, são capazes de remover átomos de sua superfície e ejetá-los em todas as direções. Esses átomos acabam se depositando sobre o substrato formando o filme. A espessura do filme é controlada pelo tempo de exposição do substrato ao plasma e com o prévio conhecimento da taxa de deposição. Essa última é obtida através de medidas de refletividade de raios X de filmes do material que se deseja depositar e depende, entre outros fatores, da distância entre o substrato e o alvo, da potência utilizada nas fontes de tensão e da pressão de argônio. Os sistemas atuais de *sputtering* utilizam imãs permanentes para criar um campo magnético próximo do alvo permitindo um maior controle sobre o plasma, aumentando a taxa de ionização do gás o que pode por sua vez aumentar a taxa de deposição (REZENDE, 2012).

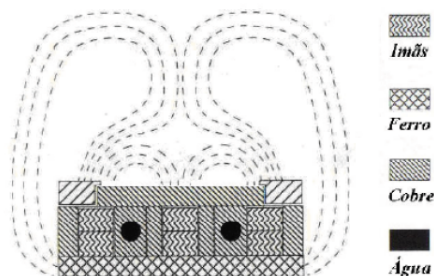
O conjunto de imãs, que caracteriza a técnica como *magnetron sputtering*, encontra-se nos canhões, abaixo do alvo. A configuração das linhas de campo magnético em torno de um canhão, figura 5.4, pode também induzir uma anisotropia uniaxial nos filmes finos, devido à movimentação dos substratos sobre essa região durante a deposição.

Figura 5.3 – Componentes básicos de um sistema de deposição por *sputtering*.



Fonte: (SILVA, 2016).

Figura 5.4 – Configuração das linhas de campo magnético em torno de um canhão (AJA International).



O sistema de deposição usado no LMMM está ilustrado na figura 5.5, composto basicamente por:

- Uma câmara (BAK 600) evacuada por duas bombas BALZERS, uma rotativa e outra difusora, capazes de baixarem a pressão de base no interior da câmara na ordem de 10^{-7} Torr ¹.
- Um porta-substrato (em forma de cruz), onde é possível a deposição de até quatro filmes numa mesma rodada. O mesmo é acionado por um motor de passos, possibilitando uma deposição em movimento, melhorando a uniformidade dos filmes ao longo dos substratos.
- Quatro canhões magnéticos de sputtering cilíndricos (AJA), nos quais são colocados os alvos dos materiais que se deseja depositar. Dois alimentados por fontes AC e dois por fontes DC, permitindo depositar tanto materiais condutores quanto isolantes, magnéticos e não magnéticos.
- Um shutter, que consiste em um disco com um orifício que permite iniciar e interromper a exposição do substrato ao plasma (deposição) com maior precisão, sendo acionado por um motor de passo.
- Um Baratron para a verificação da pressão de Argônio no interior da câmara durante o processo de deposição.
- O fluxo de gás (Ar) dentro da câmara é monitorado por dois controladores 1179A MKS, não estão ilustrados na figura.

Para induzir a direção de anisotropia da camada FM e, conseqüentemente, o EB foi utilizado o sistema de aplicação de um campo magnético durante a deposição dos filmes, mostrado na figura 5.6. Esse sistema é fixado no porta-substratos e utiliza ímãs permanentes, que são responsáveis pela produção do campo, que ficam montados em uma estrutura em forma de "U", como pode ser observada na figura 5.6 (b). Essa estrutura é constituída de ferro "doce", a fim de fechar o fluxo magnético.

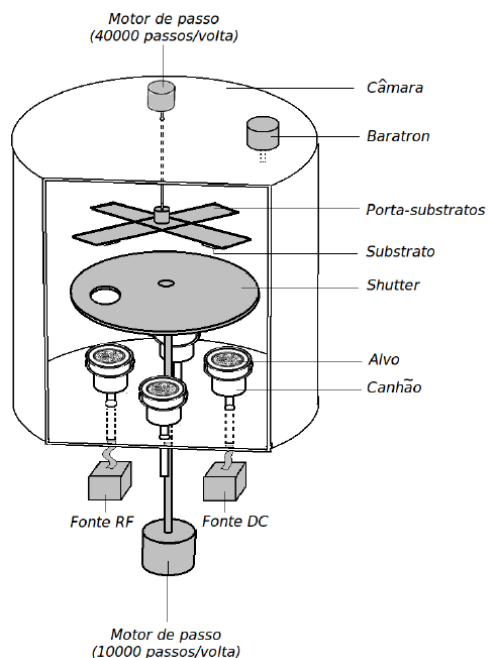
Usando esse sistema de indução de anisotropia, na região da amostra o campo medido é de aproximadamente 1 kOe, paralelo ao plano do substrato e perpendicular à direção do movimento que o mesmo realiza sobre o canhão durante o processo de deposição.

Os alvos utilizados são metálicos e com isso foram usadas duas fontes de corrente DC. As amostras foram produzidas em quatro rodadas, e os parâmetros utilizados durante as deposições, feitas com o porta-amostras em movimento, foram:

- Pressão de base: $\approx 5 \times 10^{-7}$ Torr
- Fluxo de argônio: 32 sccm;

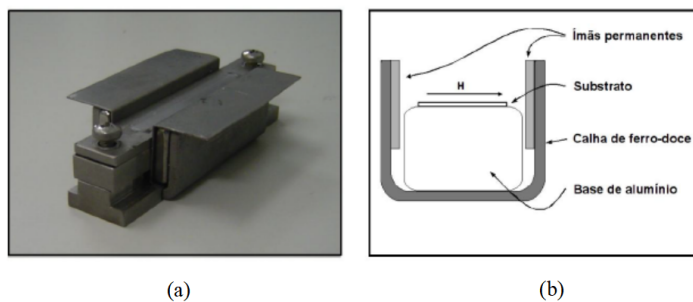
¹ 1 Pa = 0,01 mBarr = 7,50 mTorr.

Figura 5.5 – Esquema representando o sistema de deposição de filmes finos do LMMM (fora de escala).



Fonte: (RIGUE, 2014).

Figura 5.6 – Sistema de indução de anisotropia magnética com aplicação de campo magnético. (a) Foto ilustrativa. (b) Representação esquemática, vista lateral.



Fonte: (RIGUE, 2014).

- Potência: 30 W;
- Distância dos alvos ao substrato: 7,5 cm.

5.3 CARACTERIZAÇÃO ESTRUTURAL: DIFRAÇÃO DE RAIOS X

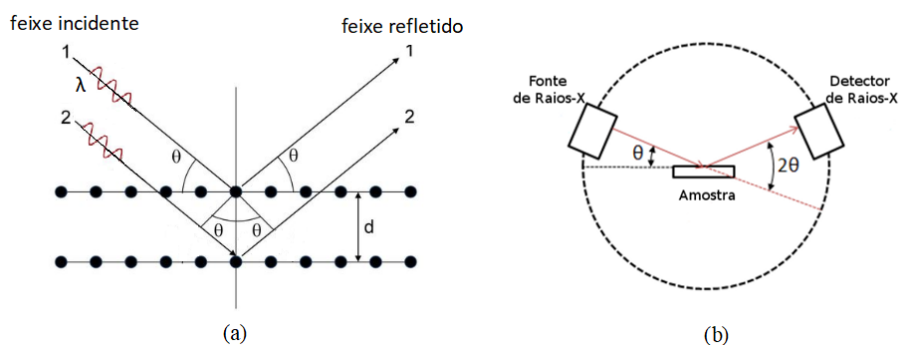
A difração de raios X é uma técnica relativamente simples, baseia-se no espalhamento da radiação incidente pelos átomos do material em análise. Esse espalhamento se

dá em todas as direções, porém, quando se está examinando um material cristalino, existirão determinadas direções em que os feixes refletidos por diferentes planos atômicos se encontrarão em fase, interferindo construtivamente. Para que esta interferência construtiva ocorra é necessário que a diferença entre caminhos óticos de raios distintos ($2d\sin\theta$), corresponda a um múltiplo inteiro do comprimento da onda incidente ($n\lambda$) (CULLITY, 1956), como ilustrado na figura 5.7. Esta condição é expressa através da Lei de Bragg:

$$2d\sin\theta = n\lambda, \quad (5.1)$$

onde d é a distância entre os planos cristalinos, θ o ângulo entre estes planos e a radiação incidente, λ o comprimento de onda da radiação incidente e n um número inteiro que indica a ordem de difração.

Figura 5.7 – (a) Representação ilustrativa da difração de raios X em um sólido cristalino. (b) Goniômetro de um difratômetro de raios X na configuração Bragg-Brentano.

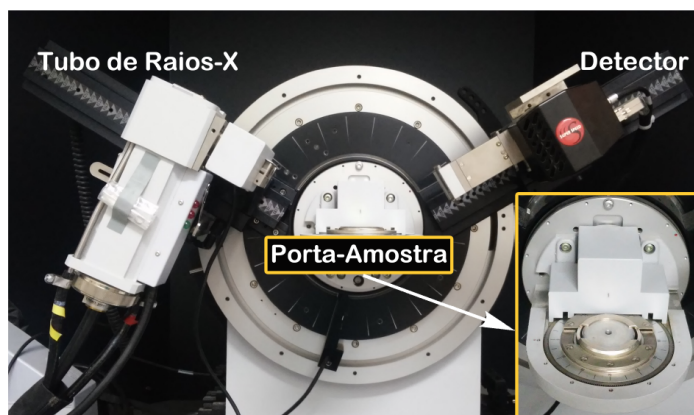


A difração de raios X é a técnica mais adequada e mais usada em estudos cristalográficos. Dos difratogramas é possível também obter informações sobre orientação preferencial em policristais, tamanho de grão cristalino e rugosidade (WAINFAN; PARRATT, 1960).

Um difratograma pode ser separado em duas faixas: altos ângulos ($\theta \geq 10^\circ$) e baixos ângulos ($\theta < 10^\circ$). As medidas de difração de raios X à altos ângulos (XRD) permitem determinar a estrutura cristalina das amostras e estimar o tamanho dos grãos formados no filme. As medidas à baixos ângulos, ou refletividade de raios X (XRR), possibilitam determinar as espessuras das camadas e a rugosidade presente na interface, essa através do ajuste computacional aos dados experimentais.

A figura 5.8 mostra parte do equipamento de difração de raios X utilizado e que se encontra no LMMM. É um difratômetro Brüker D8 Advance, que possui goniômetro na geometria Bragg-Brentano ($\theta - 2\theta$), o tubo de raios X possui o alvo de cobre, e o detector *LinxEye* de tiras de silício. Nesse caso, o raio X característico corresponde da transição de um elétron da camada L para a K, esse é conhecido como K_α e tem comprimento de onda (λ) de 1,54056 Å. Para selecionar apenas o comprimento de onda característico, são

Figura 5.8 – Difratômetro Brüker D8 Advance.



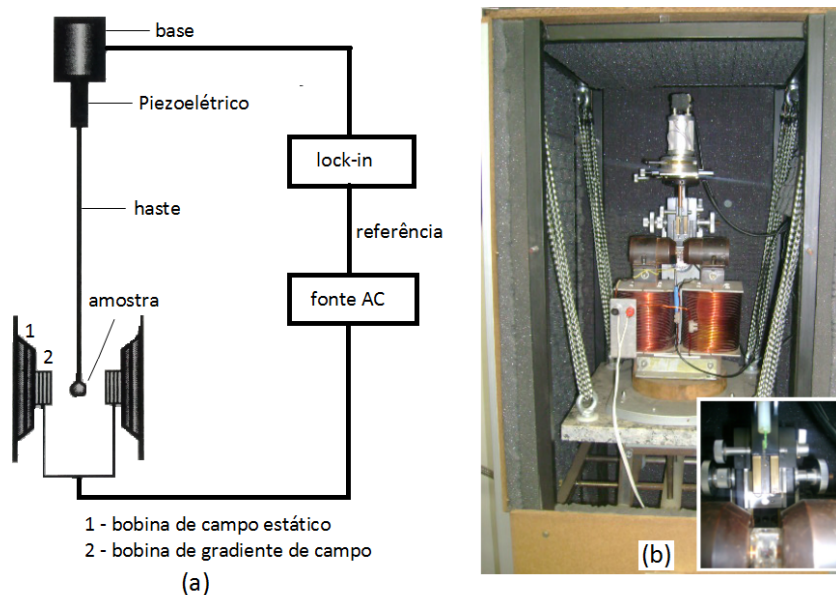
utilizados filtros que absorvem o espectro contínuo e as outras emissões de menor intensidade de Cu. O feixe é colimado usando *Sollers* e *Slits* na saída do tubo e na entrada do detector. O porta-amostras é fixo, enquanto o tubo e o detector são móveis e controlados por motores de passo, de modo que o ângulo entre eles seja sempre 2θ .

5.4 CARACTERIZAÇÃO MAGNÉTICA: MAGNETIZAÇÃO

Para a caracterização magnética das amostras foi usado um *magnetômetro de gradiente de campo alternado (AGFM)*. O AGFM é um instrumento para medidas de momento magnético das amostras (\vec{m}) e sua dependência com o campo aplicado. Nesse sistema, a amostra é colocada em um gradiente de campo magnético alternado, sendo então submetida à ação de uma força: $F_x = \vec{m} \cdot \nabla H_x$, onde ∇H_x é o gradiente de campo magnético.

Como pode ser visto na figura 5.9 (a), a amostra é fixada em uma das extremidades de uma haste não-magnética e colocada entre os pólos de um eletroímã, que gera um campo magnético estático. Paralelo aos polos do eletroímã estão duas bobinas que produzem o gradiente de campo alternado (H_{AC}) na região da amostra, que por sua vez exerce uma força periódica na amostra magnetizada pelo campo magnético estático. Essa força deflete a haste na qual a amostra está fixada, fazendo-a oscilar com a mesma frequência do H_{AC} . A amplitude da deflexão é proporcional à magnitude do gradiente de campo e ao momento magnético da amostra (TAKEUCHI, 2010), (SAMPAIO et al., 2000). Na outra extremidade da haste tem um sensor piezoelétrico, o qual transforma a oscilação mecânica em uma tensão elétrica alternada, que por fim é medida com um amplificador *lock-in*. A frequência usada para a realização desse tipo de medida é a próxima à ressonância mecânica do conjunto. Assim tem-se uma maior amplitude do movimento da amostra resultando em um sinal de maior intensidade para o mesmo campo alternado. A ressonância mecânica do conjunto é encontrada fazendo-se uma varredura do sinal do piezoelétrico em

Figura 5.9 – (a) Estrutura básica de um AGFM (TAKEUCHI, 2010). (b) AGFM existente no LMMM, em destaque a região do porta-amostras e o piezoelétrico.



Fonte: (RIGUE, 2010).

função da frequência do H_{AC} .

O AGFM é montado de modo que o sistema experimental fique protegido contra vibrações mecânicas externas. Para a realização das medidas de magnetização desse trabalho utilizou-se o AGFM disponível no LMMM, figura 5.9 (b), capaz de aplicar um campo $H_{max} = 3 \text{ kOe}$. A sensibilidade do sistema é da ordem de 10^{-6} emu .

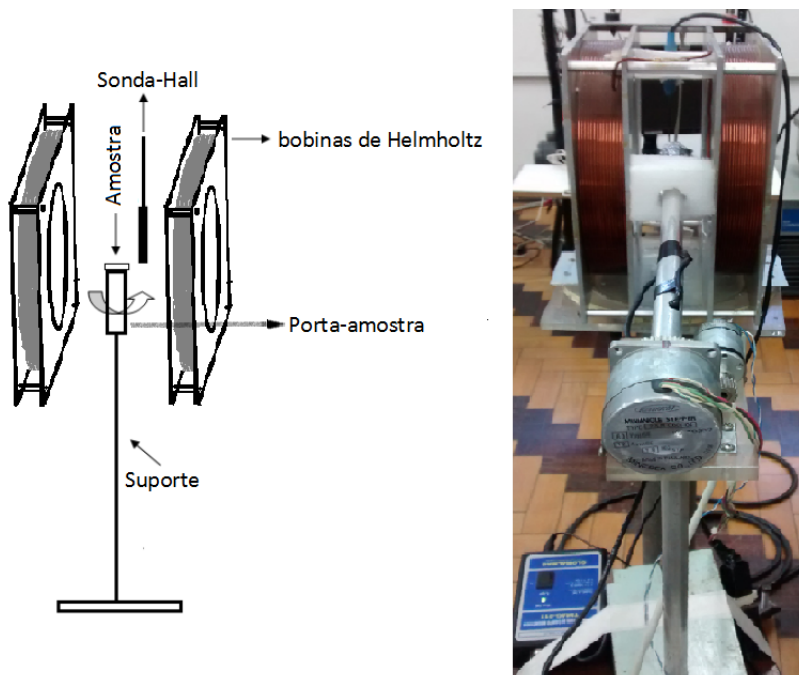
5.5 CARACTERIZAÇÃO DE TRANSPORTE ELÉTRICO: MAGNETORRESISTÊNCIA

As medidas de magnetorresistência anisotrópica (AMR) podem ser feitas de duas maneiras:

- Resistência elétrica em função do campo externo aplicado ($R \times H$), para um ângulo (θ) escolhido entre a corrente e o campo;
- Medida da resistência elétrica em função do ângulo entre a corrente elétrica e o campo aplicado ($R \times \theta$), com campo fixo.

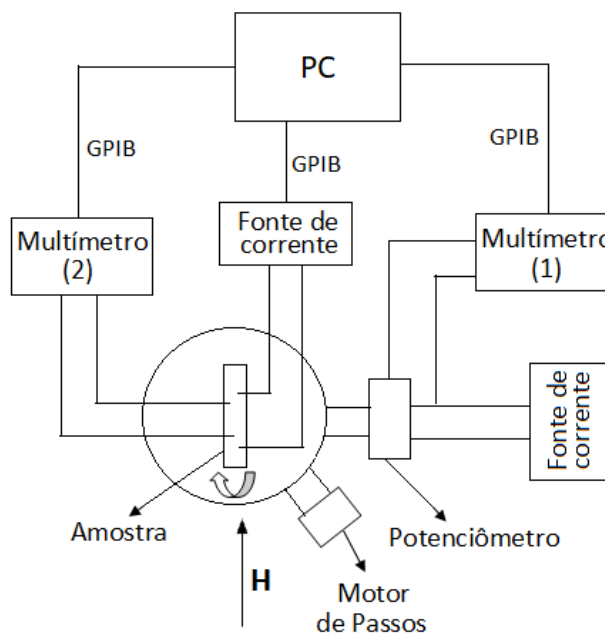
A figura 5.10, mostra um diagrama do aparato experimental usado para a realização das medidas de AMR. O porta-amostras é montado de forma que a amostra seja posicionada no centro das bobinas de Helmholtz, podendo girar de 360° em ambos os sentidos e é movido por um motor de passos controlado por um computador. A leitura da sua posição angular é feita através de um potenciômetro ligado a um multímetro (1). O campo

Figura 5.10 – Diagrama e foto do aparato experimental usado para medir as curvas de AMR.



Fonte: Autora.

Figura 5.11 – Representação das ligações da fonte de corrente com o computador e com os multímetros.



Fonte: Autora.

magnético é medido por uma sonda-hall fixada ao lado da amostra. A medida é controlada utilizando um *software* desenvolvido em plataforma HP-VEE.

A configuração de medida da resistência escolhido foi o de 4 pontas. Nesta, é utilizada uma fonte de corrente, que faz passar uma corrente elétrica (I) através da amostra e um multímetro (2) que mede a diferença de potencial (ΔV) na amostra. A razão da diferença de potencial pela corrente elétrica é a resistência elétrica da amostra. Um diagrama esquemático do sistema de medidas de AMR está mostrado na figura 5.11. Os contatos são colados na superfície da amostra com tinta condutora a base de prata.

6 RESULTADOS E DISCUSSÃO

Neste capítulo serão apresentados os resultados obtidos. Nas amostras citadas anteriormente, foram realizadas medidas de difratometria de raios X, magnetização e de magnetorresistência anisotrópica.

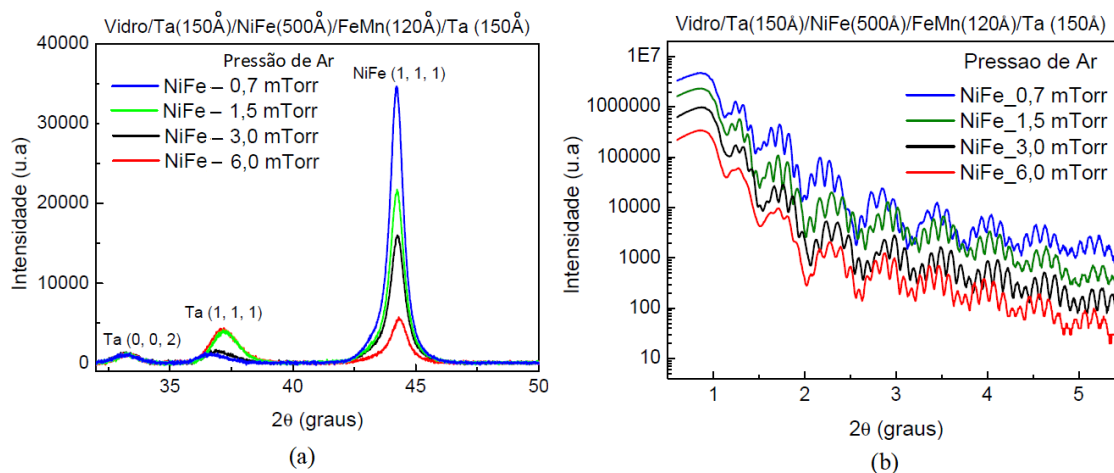
6.1 CONJUNTO DE AMOSTRAS VARIANDO A PRESSÃO DE ARGÔNIO NA DEPOSIÇÃO DA CAMADA FM (CONJUNTO 1913)

O trabalho (TANG et al., 2017) foi uma das motivações para realização desse estudo com deposição à diferentes valores de pressão de argônio (Ar) em sistemas com EB. Os autores mantiveram fixa a pressão de Ar na deposição da camada AFM e cresceram a camada FM com diferentes pressões, mostrando que a magnitude do H_{eb} pode ser aumentada com a redução da rugosidade na interface e a melhora da estrutura cristalina do filme para baixa pressão de deposição ($\approx 0,06 \text{ mTorr}$). Quanto menor for a pressão de Ar usada durante o crescimento do filme, maior é a taxa de deposição. A tensão de aceleração dos íons de Ar em direção ao alvo na deposição deve ser aumentada a fim de manter a potência constante quando a pressão de Ar diminui. Isso, por sua vez significa que os átomos do alvo pulverizado ganham uma energia relativamente mais alta com a pressão menor, ou seja, a energia com que os átomos são arrancados do alvo e atingem o substrato é maior. Pelo fato da pressão ser menor e a energia ser relativamente alta, os átomos tem maior mobilidade ao alcançar o substrato, obtendo-se uma superfície menos rugosa e uniforme com uma boa textura cristalográfica.

Como citado na seção 5.1, a fim de otimizar as propriedades das amostras em termos das anisotropias e rugosidades interfaciais foram produzidas bicamadas variando a pressão de Ar na deposição da camada FM. A seguir, serão apresentados os resultados obtidos para esse conjunto de amostras, que serviu de base para a produção de outros conjuntos posteriormente.

Na figura 6.1 (a) são mostrados os difratogramas de raios X das amostras. O pico de difração característico do NiFe pode ser observado em torno de $2\theta \approx 44,2^\circ$. O NiFe cresce com textura cristalográfica na direção (111), conforme comparação feita com a ficha padrão n° 03-065-3244. O difratograma não apresenta claramente o pico característico do FeMn que de acordo com a ficha padrão n° 01-071-8286, deveria estar em torno de $2\theta \approx 44,1^\circ$ e também com textura cristalográfica na direção (111). Um fator importante para a ocorrência do fenômeno de EB é que ambos os materiais FM e AFM, cresçam com essa textura cristalográfica (DEVASAHAYAM; SIDES; KRYDER, 1988), (YUAN et al., 2013). De modo geral, observa-se que a intensidade dos picos de difração do NiFe são

Figura 6.1 – (a) Medidas de difratometria de raios X para as bicamadas do conjunto 1913. (b) Medidas de refletividade de raios X para as bicamadas do conjunto 1913.



Fonte: Autora.

mais intensos para valores de pressões de Ar mais baixos, apresentando uma melhor textura cristalográfica. Isso pode estar relacionado ao tamanho de grão no filme.

Na figura 6.1 (b) são mostradas as medidas de refletividade de raios X. Pode-se identificar os picos de Bragg acompanhados por oscilações superpostas a eles, as chamadas franjas de Kiessig. A periodicidade dessas franjas relaciona-se à espessura da amostra. Já a inclinação da curva após o ângulo em que a intensidade começa a diminuir (ângulo crítico) e a amplitude das franjas estão relacionadas à rugosidade nas interfaces entre as camadas da amostra (BAZONI, 2013). Observamos que as curvas apresentam comportamentos semelhantes, aparentemente não há uma grande mudança na rugosidade do conjunto, já que teoricamente as espessuras seriam as mesmas, apenas com variação na pressão de Ar na deposição.

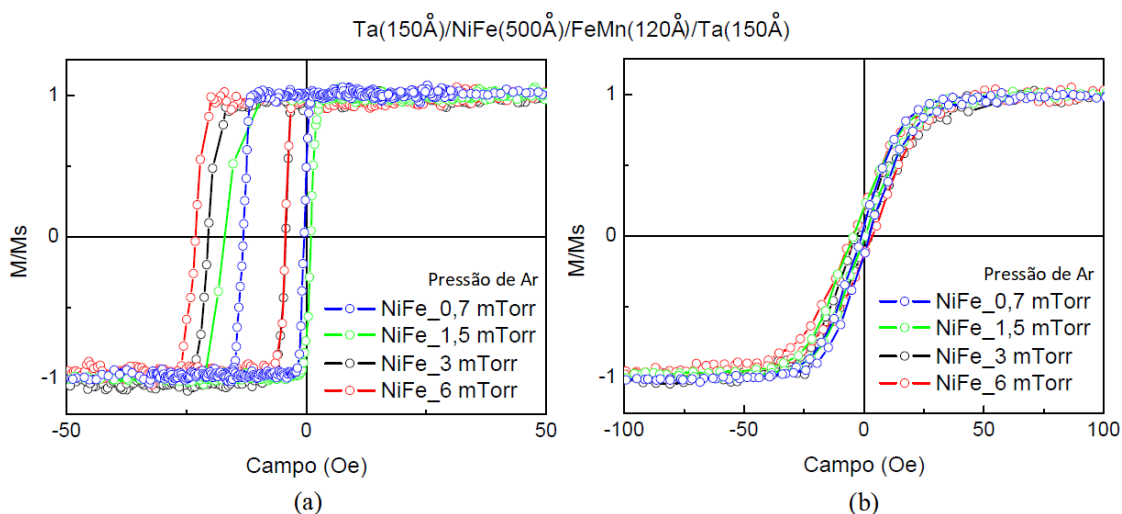
Usando a Lei de Bragg é possível calcular a espessura total das amostras através das medidas de refletividade. No entanto, uma descrição das espessuras das camadas individualmente, suas rugosidades interfaciais e da densidade do material deve ser feita através de cálculos a fim de ajustar as medidas experimentais, os quais não foram feitos. A tabela 6.1, apresenta os valores das espessuras nominais e calculadas para esse conjunto de amostras (1913). Podemos observar que as espessuras totais calculadas foram menores que as espessuras nominais.

A figura 6.2 mostra as medidas de magnetização desse conjunto de amostras. As medidas foram realizadas a temperatura ambiente, com campo aplicado no plano da amostra e a diferentes ângulos (0° , 90°) em relação ao campo aplicado durante a deposição. Pode-se observar claramente o deslocamento em campo da curva de magnetização, comprovando a ocorrência do fenômeno de EB nas amostras.

Tabela 6.1 – Espessura nominal e espessura calculada total do conjunto variando a pressão de deposição da camada FM.

Amostra - Pressão de Ar	Esp. nominal total(Å)	Esp. calculada total (Å)
1913D - 0,7 mTorr	920	805
1913C - 1,5 mTorr	920	791
1913A - 3,0 mTorr	920	858
1913B - 6,0 mTorr	920	888

Figura 6.2 – Medidas de magnetização feitas em 0° (a) e 90° (b) em relação ao campo aplicado durante a deposição.

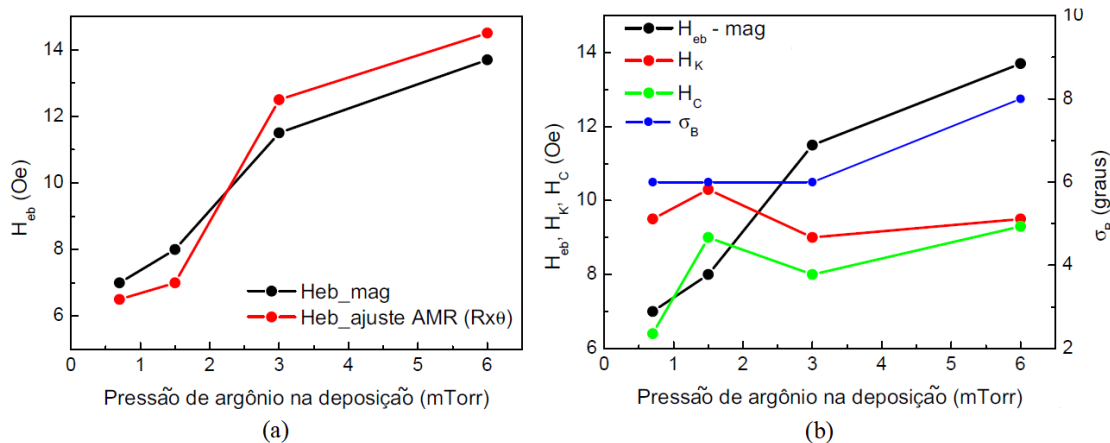


Fonte: Autora.

As dimensões das amostras para essas medidas foram: comprimento: 5 mm e largura: 3 mm. Pode ser observado nas curvas de magnetização ao longo do eixo fácil, uma forma mais arredondada na região próxima a saturação nas amostras crescidas nas pressões mais altas. Isso pode ser a indicação de um sistema com um eixo de anisotropia não muito bem definido. Pode-se fazer relação disso, com o desvio padrão na direção do H_{eb} obtidos nos ajustes das curvas de AMR, pois o desvio está associado à dispersão dos eixos de anisotropia em torno da direção do campo de bias, como discutido na seção 4.3.

A variação de H_{eb} com a pressão de deposição é mostrada no gráfico da figura 6.3 (a). Podemos observar que o conjunto 1913 apresentou valores próximos para o H_{eb} pelas duas técnicas, aumentando seu valor, conforme aumenta a pressão de Ar na deposição. A figura 6.3 (b), apresenta a evolução de H_K , H_C e o desvio padrão na orientação do H_{eb} (σ_B) com a pressão de Ar. Observa-se que o H_K se mantém em torno de aproximadamente 10 Oe. O H_C tem seu maior valor para a amostra depositada a pressão de 6 mTorr. O σ_B se mantém constante para três amostras do conjunto, sendo um pouco maior para a amostra depositada a pressão de 6 mTorr.

Figura 6.3 – (a) H_{eb} obtido pelas diferentes técnicas, magnetização e AMR ($R \times \theta$) com relação a pressão de deposição. (b) Comportamento do H_{eb} , H_K , H_C e σ_B com relação a pressão de deposição.



Fonte: Autora.

Como pode-se observar nos difratogramas de raios X, as melhores texturas cristalográficas foram obtidas para valores mais baixos de pressão de Ar (0,7 e 1,5 mTorr), mas o maior valor para H_{eb} foi obtido para a amostra depositada a 6 mTorr. Devido a dificuldade de manter estável a pressão de 0,7 mTorr durante o processo de deposição, escolhemos a pressão de 1,5 mTorr para a deposição dos próximos dois conjuntos em estudo. Além disso, nesse valor de pressão o H_{eb} e H_K têm valores próximos, uma contribuição que facilita a identificação do desalinhamento entre os eixos de anisotropia do filme, nas medidas de AMR. Os resultados obtidos pelas medidas de AMR estão na seção 6.3.

A diferença observada nas espessuras dos filmes, obtidas pelas medidas de refletividade de raios X, também interfere na comparação entre os valores referentes ao H_{eb} e H_K das amostras.

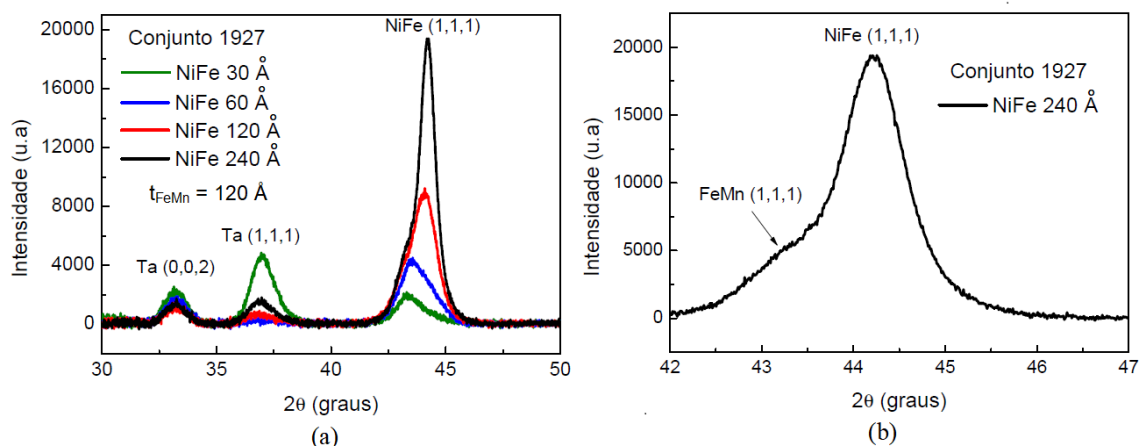
6.2 CONJUNTOS DE AMOSTRAS VARIANDO A ESPESSURA DA CAMADA FM (CONJUNTO 1927) E A ESPESSURA DA CAMADA AFM (CONJUNTO 1928)

Conforme citado na seção 5.1, depois de definida qual pressão de Ar seria melhor para deposição das amostras, foram produzidos esses dois conjuntos: 1927 e 1928. As espessuras mais finas da camada FM, serviram para tentar verificar se seria possível observar a histerese rotacional (HR) por AMR, já que em outro conjunto o NiFe mais espesso promovia um caminho com menor resistência para a corrente (SILVA et al., 2018). A seguir, serão apresentados os resultados obtidos para esses conjuntos de amostras.

Nas figuras 6.4 (a) e 6.5 (a) são mostrados os difratogramas de raios X do conjunto

1927 (variando a espessura da camada FM) e do conjunto 1928 (variando a espessura da camada AFM), respectivamente. O pico de difração característico do NiFe (111) pode ser observado em $2\theta \approx 44,2^\circ$, conforme comparação feita com a ficha padrão n° 03-065-3244. O pico relativo ao FeMn (111) que de acordo com a ficha padrão n° 01-071-8286, é em torno de $2\theta \approx 44,1^\circ$. De acordo com os difratogramas apresentados em 6.4(a), podemos observar que o pico referente ao NiFe aumenta sua intensidade, conforme aumenta sua espessura. Já em 6.5 (a), a intensidade do pico do NiFe se mantém aproximadamente a mesma, diminuindo apenas para a espessura maior do FeMn.

Figura 6.4 – (a) Medidas de difratometria de raios X para o conjunto de amostras variando a espessura da camada FM (conjunto 1927). (b) Ampliação da região na curva onde possivelmente existe um pico do FeMn.

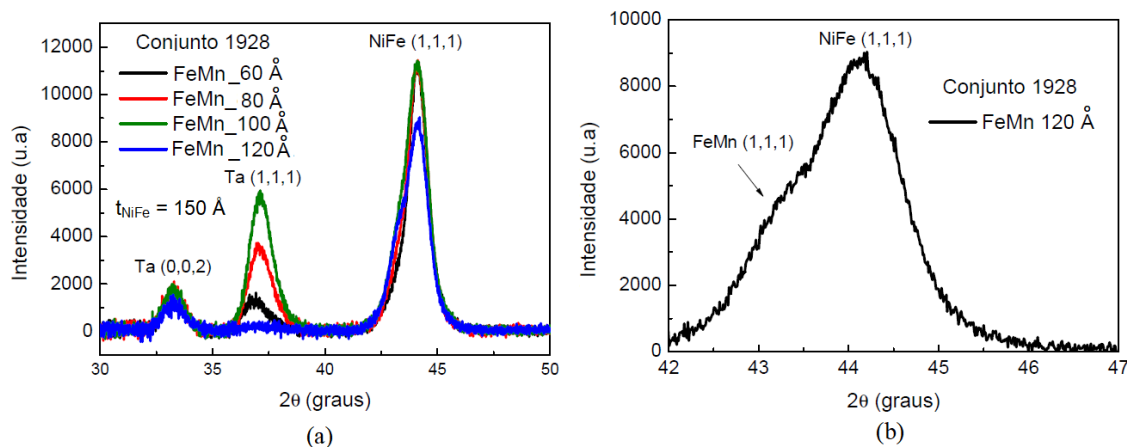


Fonte: Autora.

Por outro lado, observando as figuras 6.4 (b) e 6.5 (b) percebe-se nos difratogramas um pico suave em torno de $2\theta \approx 43^\circ$, mostrando uma convolução entre os picos do NiFe (111) e do FeMn de acordo com a ficha n° 01-071-8284. Numa tentativa de separar esses dois picos, ajustamos as curvas a altos ângulos através da soma de duas Lorentzianas, uma descrevendo o NiFe e outra o FeMn, conforme mostram as figuras 6.6 e 6.8. A partir desses ajustes podemos obter informações como intensidade, largura e posição dos picos.

Analisando a figura 6.7, referente ao conjunto de amostras variando a espessura da camada FM, podemos observar que a intensidade do pico de difração do NiFe aumenta, conforme aumenta sua espessura, enquanto sua largura diminui. A posição angular do pico se mantém em torno de $2\theta \approx 44,2^\circ$. Isso mostra o que se era esperado, pois a intensidade do pico está relacionada com a quantidade de material no filme e a sua largura com o tamanho de grão na amostra, o qual não foi avaliado devido a possível convolução dos picos de difração de um e de outro. Já a intensidade do pico relativo ao FeMn praticamente não se altera, o que era de se esperar, já que a quantidade de material AFM não varia. Por outro lado, a largura do pico tem um leve aumento conforme aumenta a espessura da

Figura 6.5 – (a) Medidas de difratometria de raios X para o conjunto de amostras variando a espessura da camada AFM (conjunto 1928). (b) Ampliação da região na curva onde possivelmente existe um pico do FeMn.



Fonte: Autora.

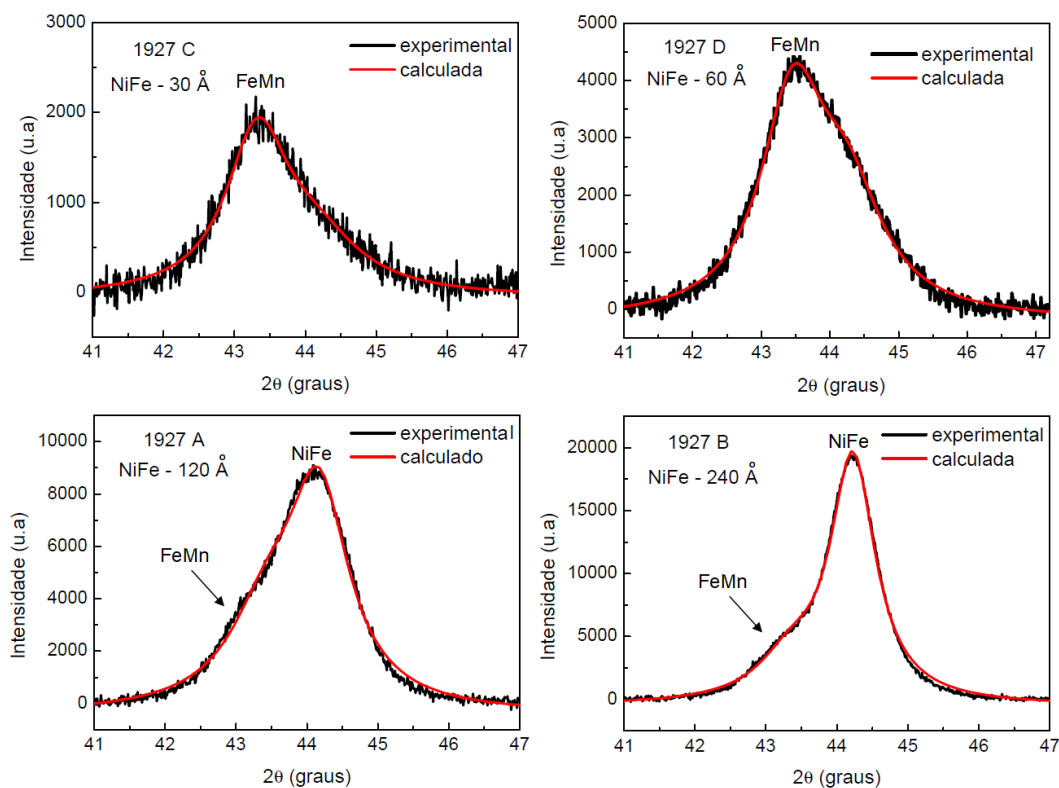
camada FM. A posição do pico de difração se mantém em torno de $2\theta \approx 43,2^\circ$. Avaliando o conjunto de difratogramas apresentados na figura 6.8, percebe-se que a partir do FeMn com 80Å o surgimento do pico relativo à ele, ficando um pouco mais claro para o difratograma da amostra com 120Å de FeMn.

A figura 6.9, resume a evolução dos parâmetros do NiFe e do FeMn do conjunto variando a espessura da camada AFM. A posição angular do pico do NiFe se mantém em torno de $2\theta \approx 44,2^\circ$. A intensidade do pico do FeMn aumenta levemente com o aumento de sua espessura, assim como a largura do seu pico. Sua posição angular se manteve em torno de $2\theta \approx 43,2^\circ$. Importante ressaltar que os difratogramas para as diferentes amostras foram obtidos nas mesmas condições de medidas.

A figura 6.10 mostra as medidas de refletividade de raios X. Pode-se identificar os picos de Bragg acompanhados pelas franjas de Kiessig. Observa-se que a amplitude das franjas de Kiessig diminuem de modo considerável para a amostra depositada com 60Å de NiFe, figura 6.10 (a), indicando uma rugosidade maior na comparação com as demais amostras do conjunto. Esse fato também pode ser observado nas imagens de microscopia de força atômica, que serão apresentadas a seguir. Já na figura 6.10 (b), observa-se que não há uma grande mudança da rugosidade do conjunto, o que seria de se esperar uma vez que o FeMn é crescido sobre o NiFe, e esse não teve a espessura ou condições de deposição modificadas.

Usando a Lei de Bragg calculamos as espessuras das amostras através das medidas de refletividade. As tabelas 6.2 e 6.3, apresentam os valores das espessuras nominais e calculadas. Podemos observar que as espessuras totais calculadas foram próximas dos valores das espessuras nominais.

Figura 6.6 – Ajustes feitos através da soma de duas Lorentzianas, uma descrevendo o NiFe e outra o FeMn para o conjunto variando a espessura da camada FM (1927).



Fonte: Autora.

Tabela 6.2 – Espessura nominal e espessura calculada total do conjunto variando a espessura da camada FM (1927).

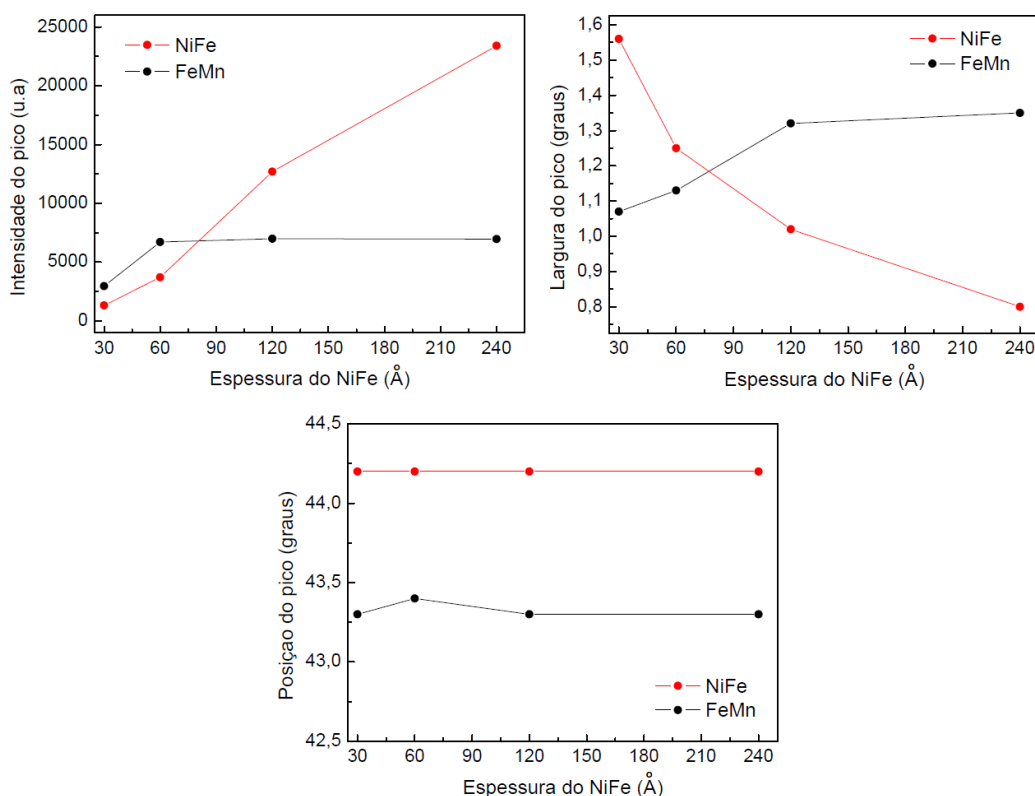
Amostra	Esp. nominal total(Å)	Esp. calculada total (Å)
1927C (30 Å de NiFe)	450	428
1927D (60 Å de NiFe)	480	492
1927A (120Å de NiFe)	540	537
1927B (240Å de NiFe)	660	653

Tabela 6.3 – Espessura nominal e espessura calculada total do conjunto variando a espessura da camada AFM (1928).

Amostra	Esp. nominal total (Å)	Esp. calculada total (Å)
1928A (60 Å de FeMn)	510	501
1928B (80 Å de FeMn)	530	535
1928C (100Å de FeMn)	550	545
1928D (120Å de FeMn)	570	564

Uma estimativa da rugosidade foi verificada por imagens de microscopia de força atômica, conforme mostram as figuras 6.11 e 6.12. Essas imagens foram feitas na super-

Figura 6.7 – Comparações entre a posição angular, intensidade e largura dos picos de difração em relação a espessura da camada FM usando uma Lorentziana de dois picos.



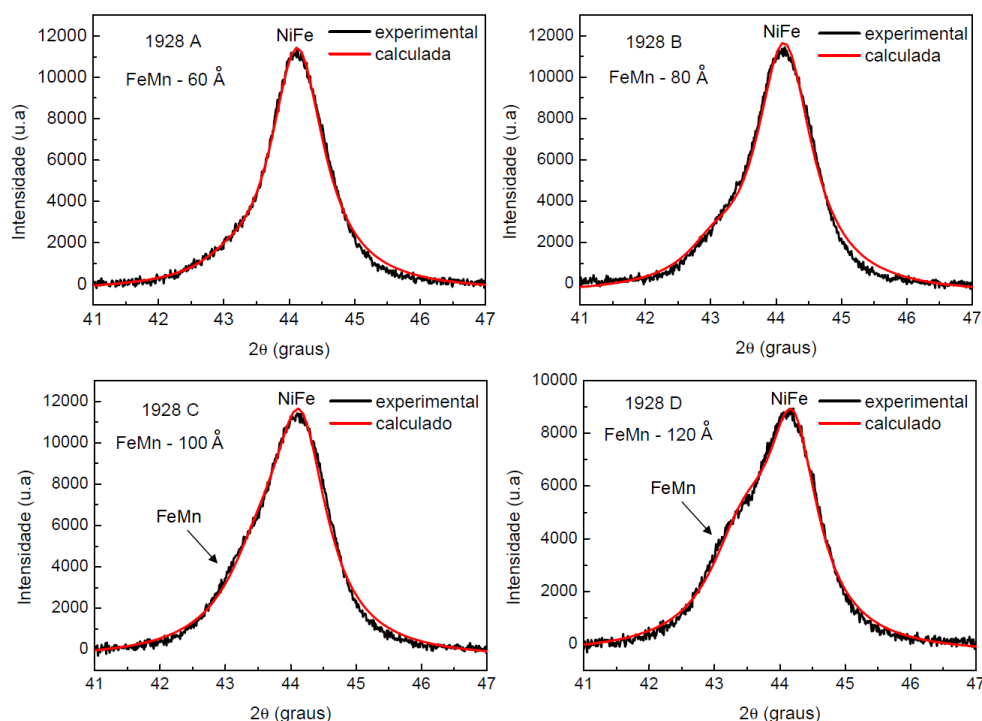
Fonte: Autora.

fície das amostras, ou seja, na superfície do Ta (camada protetora). Para se obter esse parâmetro foi selecionada uma região da amostra onde a oxidação era menor. Essas medidas foram realizadas bastante tempo, aproximadamente dois anos, após as amostras terem sido produzidas, e já apresentavam certa oxidação. A tabela 6.4, apresenta os valores obtidos para a rugosidade de cada amostra através dessa técnica. As que apresentaram maior rugosidade, são justamente as que estão com maior oxidação, como pode ser observado nas imagens e encontram-se assinaladas na tabela (*). A rugosidade superficial medida no substrato de vidro foi da ordem de 10Å .

As figuras 6.13 e 6.14, mostram as medidas de magnetização dos conjuntos de amostras variando a espessura da camada FM (1927) e AFM (1928), respectivamente. As medidas foram realizadas a temperatura ambiente, com campo aplicado no plano da amostra e a diferentes ângulos (0° , 90°) em relação ao campo aplicado durante a deposição. Pode-se observar claramente o deslocamento em campo da curva de magnetização, comprovando a ocorrência do fenômeno de EB nas amostras.

Juntamente com as curvas de magnetização, estão apresentadas as medidas de AMR ($R \times H$), para a comparação entre as duas técnicas que permitem a obtenção do H_{eb} e H_C mais diretamente. As dimensões das amostras para as medidas de magnetização

Figura 6.8 – Ajustes feitos através da soma de duas Lorentziana, uma descrevendo o NiFe e outra o FeMn para o conjunto variando a espessura da camada AFM (1928).



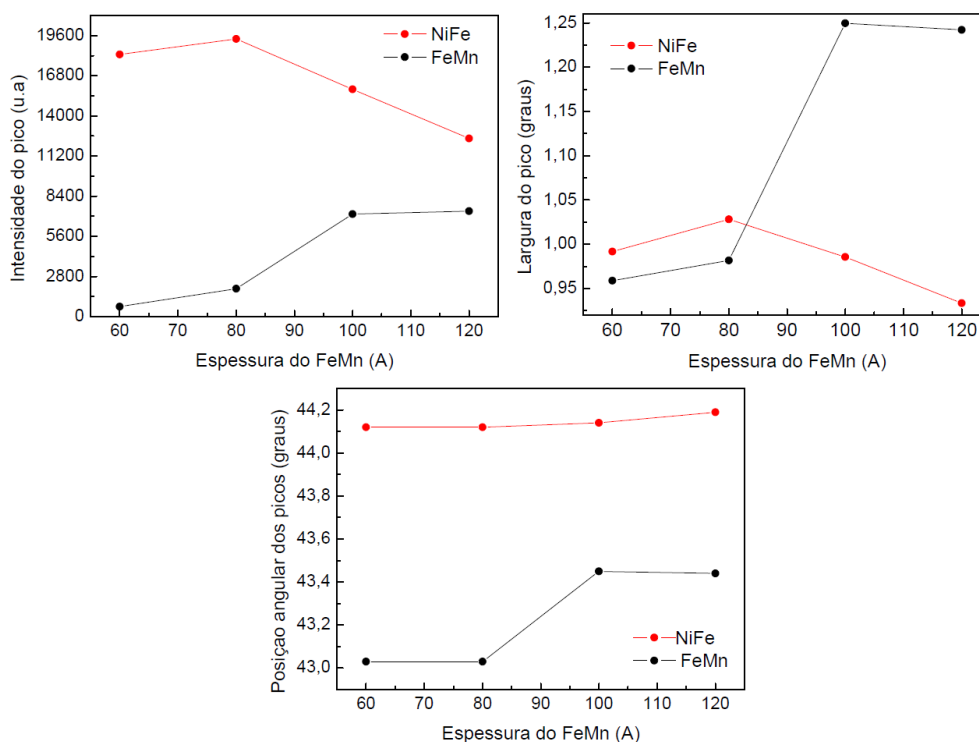
Fonte: Autora.

Tabela 6.4 – Rugosidade calculada através de medidas de microscopia de força atômica para os dois conjuntos de amostras 1927 e 1928.

Amostra	Rugosidade(Å)
1927 C (30 Å de NiFe)	6
1927 D (60 Å de NiFe)	91 (*)
1927 A (120Å de NiFe)	30
1927 B (240Å de NiFe)	10
1928 A (60Å de FeMn)	34
1928 B (80Å de FeMn)	41
1928 C (100Å de FeMn)	79 (*)
1928 D (120Å de FeMn)	74 (*)

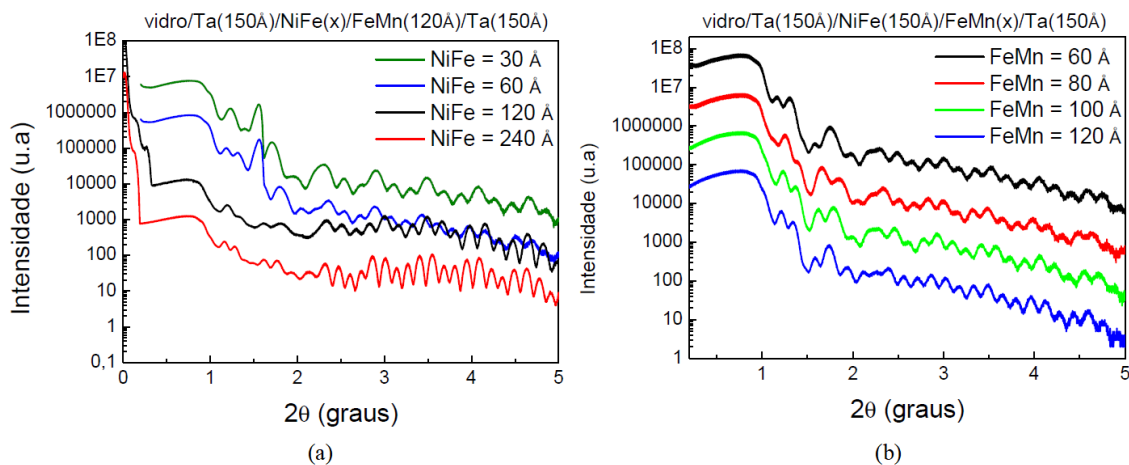
foram: comprimento: 5 mm e largura: 3 mm. Observa-se em algumas curvas ao longo do eixo fácil, uma forma mais arredondada na região próxima a saturação, indicando um sistema com eixo de anisotropia não muito bem definido. Como citado anteriormente, para o conjunto 1913, pode-se fazer relação desse fato, com o desvio padrão na direção do H_{eb} obtidos nos ajustes das curvas de AMR ($R \times \theta$), pois o desvio está associado à dispersão dos eixos de anisotropia em torno da direção do campo de bias. Os valores referentes aos H_{eb} obtidos pelas curvas de magnetização e pelas medidas de AMR ($R \times H$) e ($R \times \theta$), estão nas tabelas 6.5 e 6.7. Os valores referentes ao H_C e o H_K , estão nas tabelas 6.6 e 6.8. Os

Figura 6.9 – Comparações entre a posição angular, intensidade e largura dos picos de difração em relação a espessura da camada AFM usando uma Lorentziana de dois picos.



Fonte: Autora.

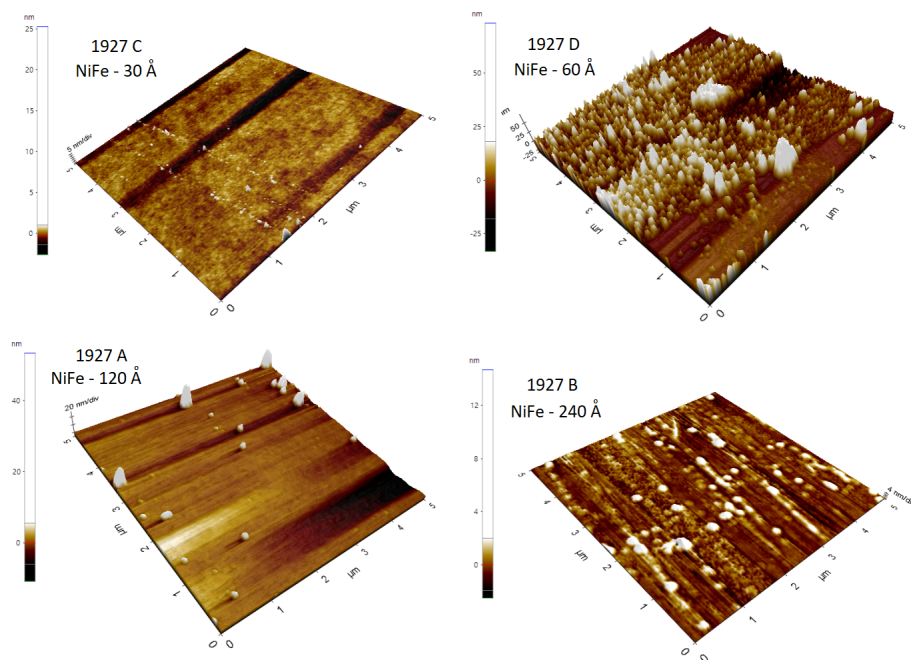
Figura 6.10 – Medidas de difratometria de raios X à baixos ângulos para as amostras estudadas. (a) Conjunto variando a espessura da camada FM e (b) conjunto variando a espessura da camada AFM.



Fonte: Autora.

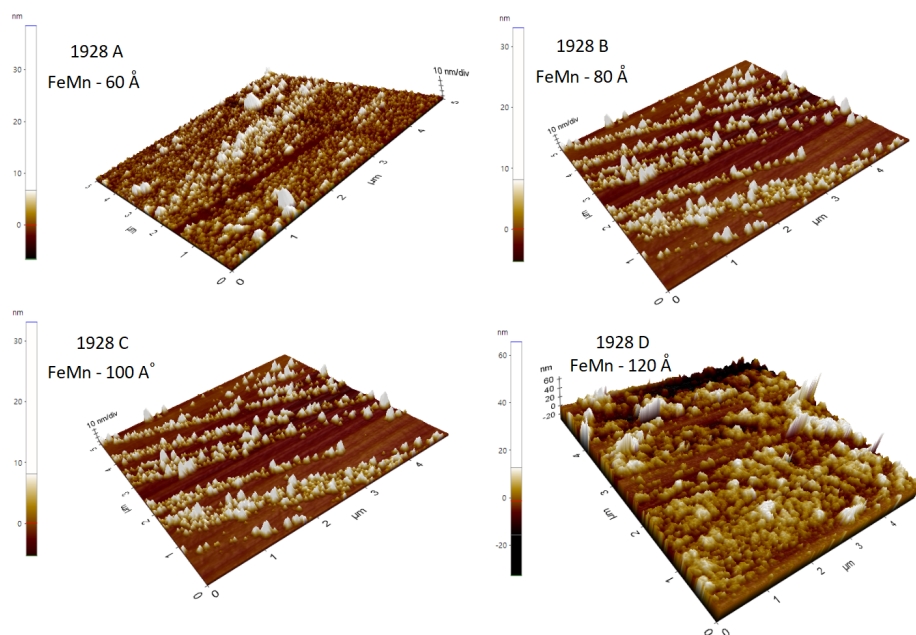
valores do H_{eb} obtidos pelas diferentes técnicas utilizadas também estão representados no gráfico da figura 6.15. As medidas de AMR para esses dois conjuntos de amostras estão na sequência, na seção 6.3.

Figura 6.11 – Imagens topográficas de microscopia de força atômica na superfície da amostra (superfície do Ta) do conjunto de amostras variando a espessura da camada FM (1927).



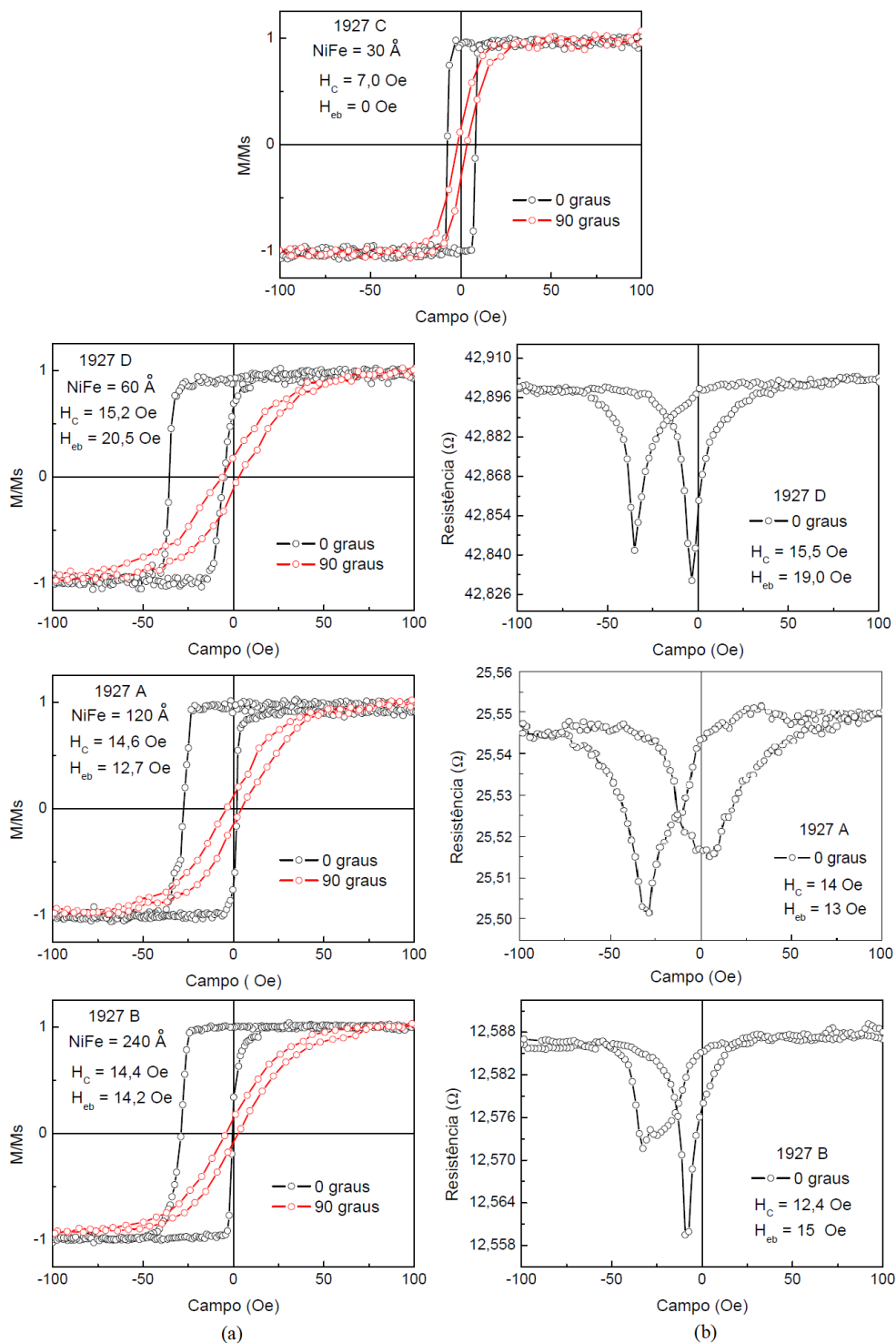
Fonte: Autora.

Figura 6.12 – Imagens topográficas de microscopia de força atômica na superfície da amostra (superfície do Ta) do conjunto de amostras variando a espessura da camada AFM (1928).



Fonte: Autora.

Figura 6.13 – (a) Medidas de magnetização feitas em 0° e 90° em relação ao campo aplicado durante a deposição. (b) Medidas da resistência elétrica pelo campo em 0° em relação ao campo de deposição.



Fonte: Autora.

Tabela 6.5 – Valores do campo de exchange bias pelas três técnicas: magnetização, AMR ($R \times H$) e AMR ($R \times \theta$), para o conjunto de amostras variando a espessura da camada FM (Ta(150Å)/NiFe(x)/FeMn(120Å)/Ta(150Å)).

Amostra	H_{eb} (Oe)-mag	H_{eb} (Oe)-AMR ($R \times H$)	H_{eb} (Oe)-AMR ($R \times \theta$)
30Å NiFe	0,0	0,0	0,0
60Å NiFe	20,5	19,0	20,8
120Å NiFe	12,7	13,0	15,2
240Å NiFe	14,2	15,0	15,0

Tabela 6.6 – Valores do campo coercivo e de anisotropia do conjunto de amostras variando a espessura da camada FM (Ta(150Å)/NiFe(x)/FeMn(120Å)/Ta(150Å)).

Amostra	H_C (Oe)-mag	H_C (Oe)-AMR ($R \times H$)	H_K (Oe)-AMR ($R \times \theta$)
30Å NiFe	7,0	-	2,0
60Å NiFe	15,2	15,5	9,2
120Å NiFe	14,6	14	12,5
240Å NiFe	14,4	12,4	8,5

Tabela 6.7 – Valores do campo de exchange bias pelas três técnicas: magnetização, AMR ($R \times H$) e AMR ($R \times \theta$), para o conjunto de amostras variando a espessura da camada AFM (Ta(150Å)/NiFe(150Å)/FeMn(x)/Ta(150Å)).

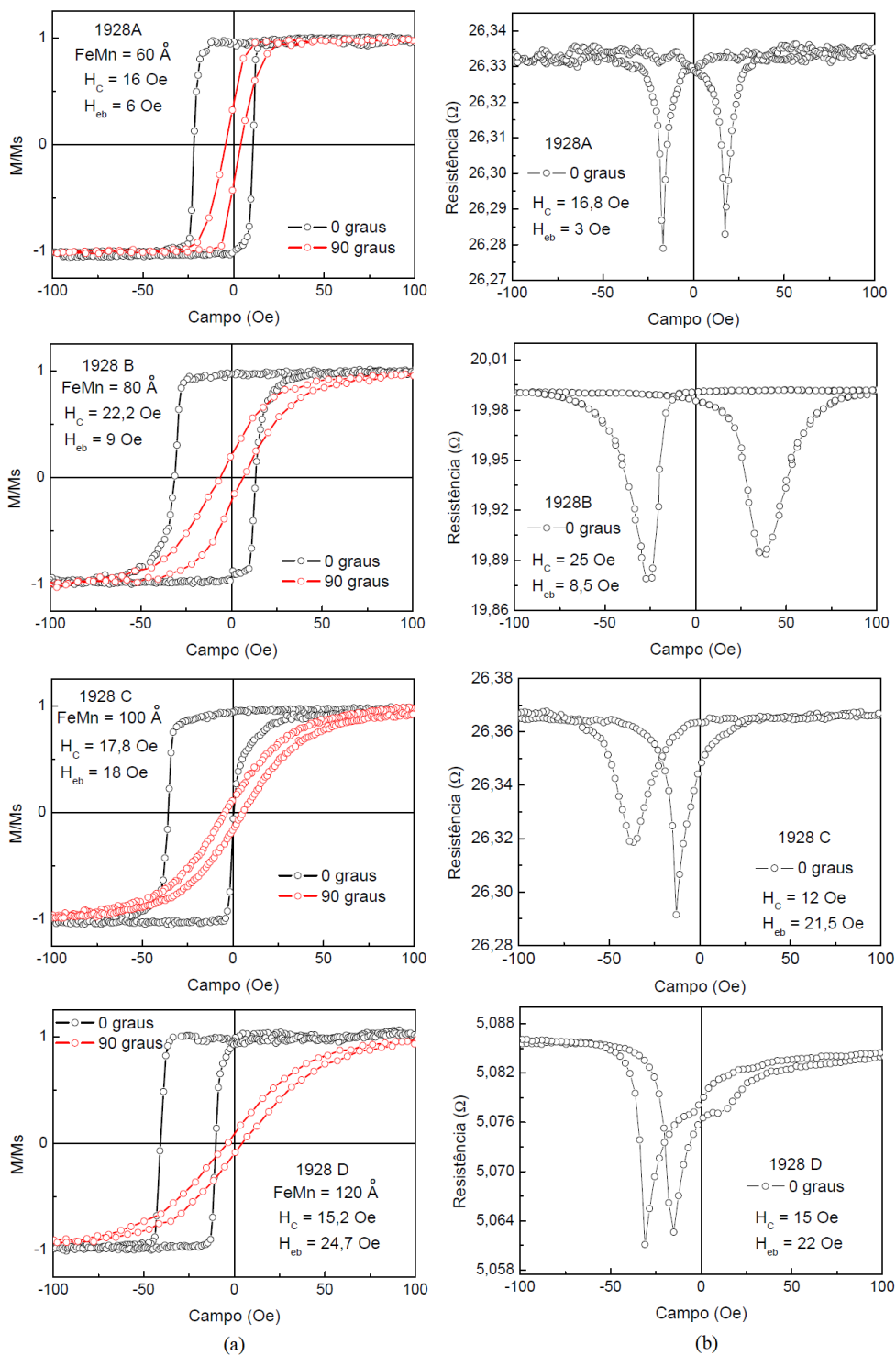
Amostra	H_{eb} (Oe)-mag	H_{eb} (Oe)-AMR ($R \times H$)	H_{eb} (Oe)-AMR ($R \times \theta$)
60Å FeMn	6,0	3,0	3,0
80Å FeMn	9,0	8,5	16,8
100Å FeMn	18	21,5	22,5
120Å FeMn	24,7	22,0	24,3

Tabela 6.8 – Valores do campo de coercivo e de anisotropia do conjunto de amostras variando a espessura da camada AFM (Ta(150Å)/NiFe(150Å)/FeMn(x)/Ta(150Å)).

Amostra	H_C (Oe)-mag	H_C (Oe)-AMR ($R \times H$)	H_K (Oe)-AMR ($R \times \theta$)
60Å FeMn	16,0	16,8	13,0
80Å FeMn	22,2	25	7,0
100Å FeMn	17,8	12,0	11,0
120Å FeMn	15,2	15	12,2

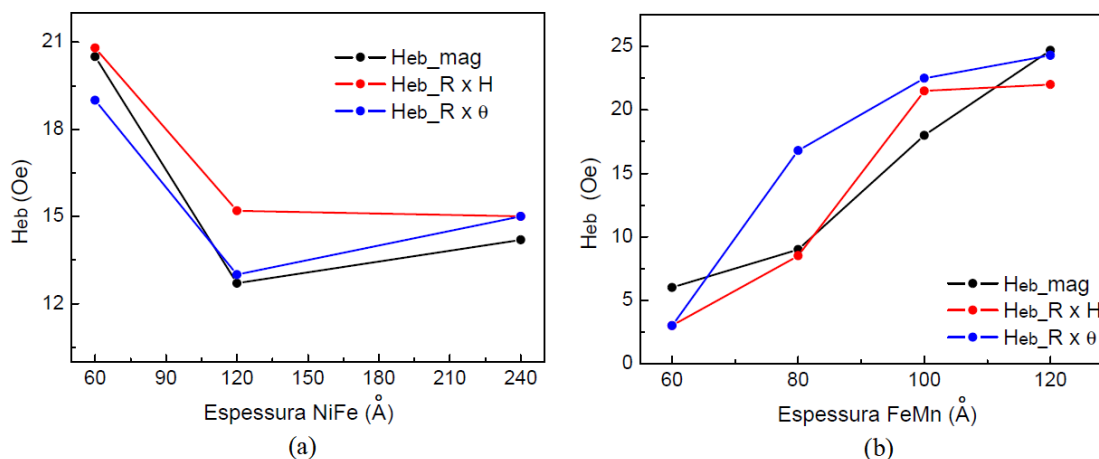
No conjunto variando a espessura da camada FM (1927), podemos observar que os valores obtidos para o H_{eb} pelas três técnicas utilizadas são próximos, sendo a amostra depositada com menor espessura (30Å), a única que não apresentou o fenômeno de EB. De acordo com a relação $H_{eb} \propto \frac{1}{t_{FM}}$ (NOGUES; SCHULLER, 1999), a amostra depositada com menor t_{FM} , deveria apresentar o maior valor para o H_{eb} . Isso não foi observado, mostrando que talvez essa espessura de NiFe seja muito fina, tornando essa camada descontínua. Percebe-se pela tabela 6.4, que a rugosidade na superfície dessa amostra é

Figura 6.14 – (a) Medidas de magnetização feitas em 0° e 90° em relação ao campo aplicado durante a deposição. (b) Medidas da resistência elétrica pelo campo em 0° em relação ao campo de deposição.



Fonte: Autora.

Figura 6.15 – Campo de bias obtidos pelas diferentes técnicas utilizadas: magnetização e AMR. (a) Conjunto variando a espessura da camada FM (1927) e (b) Conjunto variando a espessura da camada AFM (1928).



Fonte: Autora.

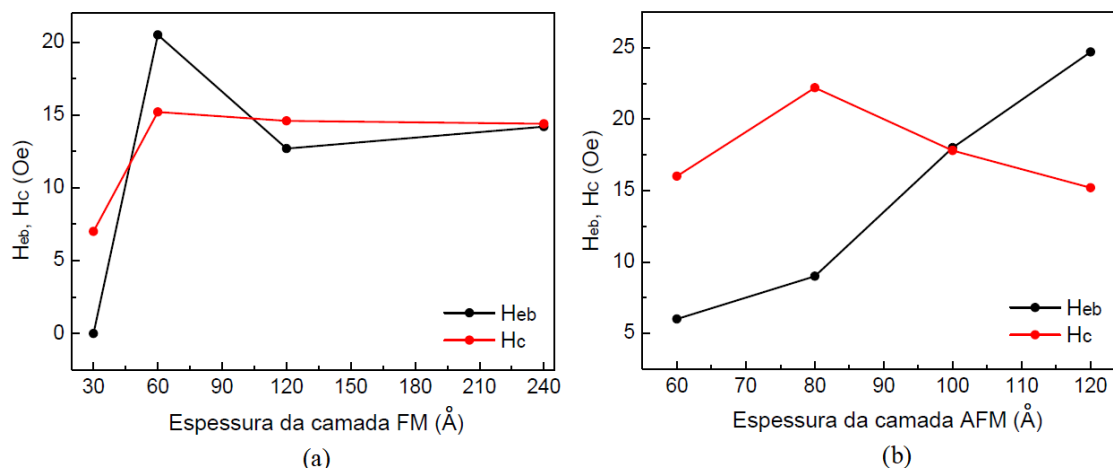
comparável com a espessura do NiFe da amostra. No caso, seria necessário uma espessura mínima de material FM para que o fenômeno de EB possa se manifestar, ao passo que para a $t_{FM}=60\text{Å}$, o fenômeno já se manifesta. Os valores do H_C obtidos pelas curvas de magnetização e AMR ($R \times H$) também apresentam valores semelhantes. A amostra que apresentou maior valor para o H_{eb} e H_C foi com espessura de 60Å .

No conjunto variando a espessura da camada AFM (1928), podemos observar a evolução no valor do H_{eb} com o aumento da espessura, verificada nas três técnicas de medida. Os valores do H_C obtidos pelas curvas de magnetização e AMR ($R \times H$), também apresentam valores semelhantes. As espessuras da camada AFM foram escolhidas a partir de 60Å devido a um estudo já realizado (KERN, 2018), que mostrou que o fenômeno de EB se manifestou nesse mesmo tipo de bicamadas a partir dessa espessura, por meio de sua característica mais conhecida, ou seja, o deslocamento em campo do ciclo de histerese. Em outras palavras, é a espessura mínima de FeMn necessária para o surgimento do acoplamento interfacial FM/AFM.

De acordo com o trabalho (KERN, 2018), o H_{eb} aumenta passando por um máximo em $t_{AFM}=120\text{Å}$, e, então, diminui para camadas AFM mais espessas. No conjunto estudado nesse trabalho, observa-se que o valor do H_{eb} para a espessura de 120Å de FeMn apresenta o maior valor. Como não foram depositadas amostras com valores superiores a esse para a camada AFM, não temos como afirmar que a partir dessa espessura vai haver um decréscimo no valor do H_{eb} . No trabalho (XI et al., 2001), esse decréscimo de H_{eb} com o aumento de t_{AFM} está associado com o decréscimo do tamanho dos domínios AFM, ou tamanho de grãos AFM, com a espessura da bicamada policristalina.

Na figura 6.16, é possível perceber que o aumento no valor do H_{eb} , é acompanhado

Figura 6.16 – Evolução dos H_{eb} e H_C obtidos pelas curvas de magnetização em função (a) da espessura da camada FM e (b) da espessura da camada AFM.



Fonte: Autora.

por um acréscimo no valor do H_C . Adotando a ideia de uma interface FM/AFM dividida em grãos estáveis e instáveis (discutido na seção 3.4), notamos que para $t_{AFM}=60\text{Å}$ e 80Å o acoplamento é fraco, visto que o $H_C > H_{eb}$, nessas espessuras. Isso sugere que a contribuição dos grãos instáveis é maior para ambas as espessuras. Para as espessuras maiores que $t_{AFM}=80\text{Å}$, o H_{eb} continua aumentando enquanto o H_C decresce, sugerindo que a contribuição dos grãos instáveis é menos significativa, e o fenômeno se estabelece. Li e colaboradores (Li et al., 2017), fazem uso desse argumento para explicar a diferença entre os valores do H_{eb} medidos por diferentes técnicas, ressaltando que à medida que a camada AFM torna-se mais espessa, a energia de anisotropia unidirecional é grande o suficiente para estabilizar o sistema no processo de reversão da magnetização.

6.3 MEDIDAS E AJUSTES DAS CURVAS DE AMR

Para as medidas da resistência elétrica em função do ângulo entre a corrente elétrica e o campo aplicado ($R \times \theta$), o ângulo zero foi definido quando o campo aplicado é paralelo ao campo de deposição.

Juntamente com as medidas experimentais são mostrados os ajustes feitos através do modelo descrito anteriormente. As curvas ajustadas apresentam boa concordância com os dados experimentais. A partir dos ajustes foi possível determinar os valores de H_K , H_{eb} , H_{rot} , ϕ_k , ϕ_{eb} e σ_B , que serão apresentados a seguir. O ϕ_I foi mantido fixo na aplicação do campo externo.

Para iniciar os ajustes os valores de $R(\theta=0)$ e $\Delta R(H > H_{Sat})$ são verificados nas

curvas experimentais medidas com $H > H_{Sat}$, e mantidos fixos. A escolha dos demais parâmetros H_K , H_{eb} , H_{rot} , ϕ_k , ϕ_{eb} e σ_B é feita comparando as curvas calculadas com as medidas num valor de campo aplicado da ordem de H_{eb} . Nesse caso, uma pequena variação nos parâmetros é bem percebida na curva calculada. Quando um bom ajuste é conseguido, os parâmetros são testados para o cálculo das curvas a campos diferentes (SIQUEIRA et al., 2019).

As medidas de AMR foram realizadas variando-se o ângulo do campo (ϕ_H) no sentido horário e anti-horário para vários valores de campos aplicados, figuras 6.18, 6.19 e 6.20. As dimensões das amostras para essas medidas foram: comprimento: 10 mm e largura: 2 mm. A corrente DC usada nas medidas foi de 3 mA para o conjunto 1913 (variando a pressão de Ar na deposição da camada FM), 3 mA para o conjunto 1927(variando a espessura da camada FM) e 2 mA para o conjunto 1928 (variando a espessura da camada AFM). Nota-se claramente nas figuras, que há uma evolução na forma da AMR a medida que o campo aplicado aumenta até o campo de saturação. Com o $H > H_{eb}$, a amplitude da AMR não varia e os vales se afastam a medida em que o campo é aumentado até a curva ficar com a forma de $\cos^2\theta$, como pode ser observado nas medidas com campos de 80 Oe e 180 Oe.

Um dos objetivos de estudo nessa tese foi provar que a assimetria presente nas curvas de AMR para valores de campo aplicados menores que o H_{eb} é devido ao desalinhamento entre os eixos de anisotropia uniaxial e unidirecional (RIGUE et al., 2015), (GRAET et al., 2009), (POGOSSIAN et al., 2006), (SPENATO; POGOSSIAN; GALL, 2003), (BARRETO et al., 2014), (DEKADJEVI et al., 2011), (SILVA et al., 2018), (SIQUEIRA et al., 2019), e não por um desalinhamento entre a direção da corrente de medição e a direção de fácil magnetização das amostras. Um conjunto de amostras (1819) foi depositado usando máscaras para a definição dos cortes. A partir da caracterização elétrica e dos ajuste realizados através do modelo desenvolvido por nossa equipe, descrito na seção 4.3, conseguimos mostrar que a origem dessa assimetria realmente é devido à um desalinhamento entre os eixos de anisotropia uniaxial e unidirecional, pois a definição dos cortes feitos através da máscaras definiu também a direção da corrente em relação à direção de anisotropia. Como citado anteriormente esse resultados foram publicados, todos os detalhes estão na referência (SIQUEIRA et al., 2019), em anexo. A figura 6.17, mostra as medidas desse conjunto, e a tabela 6.9 apresenta os parâmetros obtidos. Para esse conjunto de amostras, no ajuste das curvas o parâmetro ϕ_{rot} foi mantido fixo, apenas invertendo-se seu sinal no ajuste da curva medida no sentido anti-horário o que dará conta da histerese rotacional. Será feita uma breve discussão sobre essas medidas.

Para campos aplicados maiores que o H_{eb} observa-se que a assimetria na amplitude dos mínimos praticamente desaparece. Na medida com campo de 30 Oe (abaixo do campo de saturação das amostras), é possível observar que as curvas apresentam mínimos mais agudos e mais próximos de $\theta = 180^\circ$. Como foi comentado anteriormente

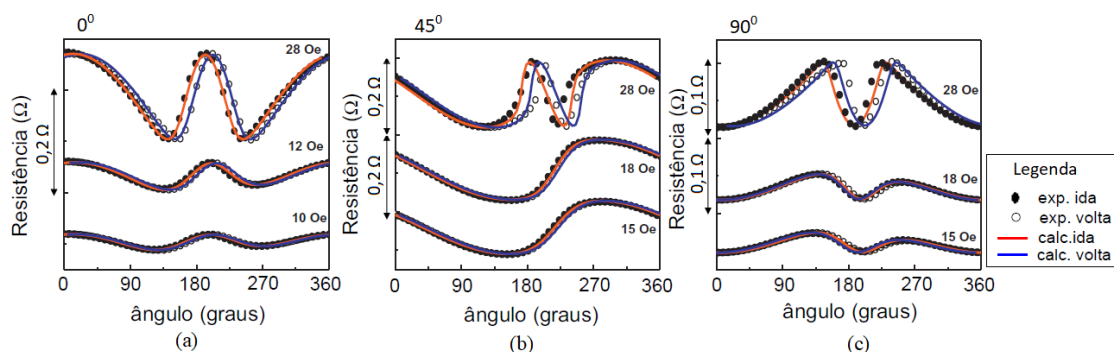
na descrição do modelo, acima do H_{eb} a amplitude da AMR atinge um valor máximo permanecendo constante para maiores valores de campos aplicados. O campo de 80 Oe está próximo ao campo de saturação da amostra, sendo possível observar as curvas com mínimos mais arredondados e simétricos. Isso ocorre porque para campos aplicados próximos ou maiores que o campo de saturação das amostras, a magnetização praticamente acompanha o campo aplicado.

Medidas realizadas com campos magnéticos externos elevados, ou seja, acima do campo de saturação da amostra, o comportamento para sistemas com EB é igual ao esperado para sistemas FM.

Esse desalinhamento entre os eixos de anisotropia uniaxial e unidirecional tem sido observado em diferentes sistemas (bicamadas, tricamadas e multicamadas), e pode ter origem em diferentes razões (CHOI et al., 2010), (GRAET et al., 2009), (KHANAL et al., 2014). Choi em um dos seus trabalhos (CHOI et al., 2010), relata um desalinhamento em tricamadas NiFe(19nm)/FeMn/CoFe(19nm) para determinadas espessuras da camada AFM. Nesse trabalho, os resultados apontaram um maior ângulo de desalinhamento para a $t_{AFM} = 5$ nm, espessura necessária para induzir o EB no referido sistema. Verificou-se, ainda, que maiores espessuras da camada AFM, o ângulo de desalinhamento convergiu para zero.

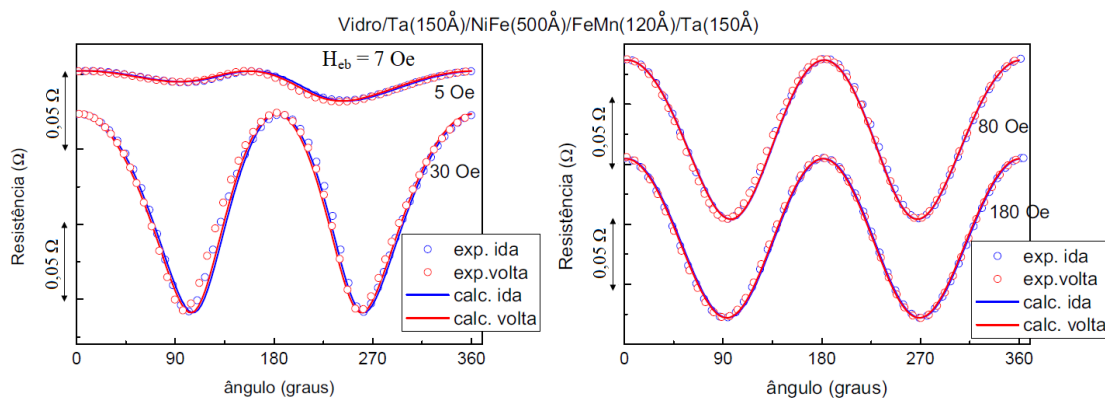
Para as amostras estudadas nessa tese, a variação da pressão de Ar na deposição e a variação nas espessuras das camadas FM e AFM, podem ter contribuído de alguma forma para o aparecimento do desalinhamento nas medidas de AMR, pois ambas mudanças influenciam na interface FM/AFM das amostras. De acordo com os dados publicados por Choi, uma combinação de uma anisotropia AFM fraca (para uma faixa de $9 \leq t_{AFM} \leq 18$ nm) e imperfeições estruturais na interface FM/AFM seria a chave da explicação para a não-colinearidade de anisotropia em sistemas com EB. Nessa faixa de espessuras o EB está estabelecido, porém, supõe-se que a anisotropia ainda é fraca, o que leva ao aparecimento de um desalinhamento.

Figura 6.17 – Medidas de AMR e ajuste do conjunto de amostras variando a pressão de argônio na deposição (1819), para diferentes valores de campos aplicados. As medidas apresentadas são da amostra depositada a 1,5 mTorr e com diferentes orientações de acordo com as máscaras (SIQUEIRA et al., 2019). As curvas a diferentes campos foram deslocadas verticalmente para melhor comparação.



Fonte: Autora.

Figura 6.18 – Medidas de AMR e ajustes da amostra do conjunto variando a pressão de argônio na deposição da camada FM (1913), para diferentes valores de campos aplicados. As medidas apresentadas são da amostra depositada a 1,5 mTorr, sendo essa escolhida para a deposição dos conjuntos seguintes. As curvas a diferentes campos foram deslocadas verticalmente para melhor comparação.



Fonte: Autora.

Tabela 6.9 – Parâmetros usados para ajustar as curvas de AMR da amostra 1819.

ϕ_I (°)	H_{eb} (Oe)	H_K (Oe)	H_{rot} (Oe)	$\phi_{eb} - \phi_K$ (°)	ϕ_{rot} (°)	σ_B (°)
0	14,5	13,0	13,0	1,4	10	6
-45	19,0	12,0	15,0	0	13	6
90	17,5	13,5	15,0	2,7	12	6

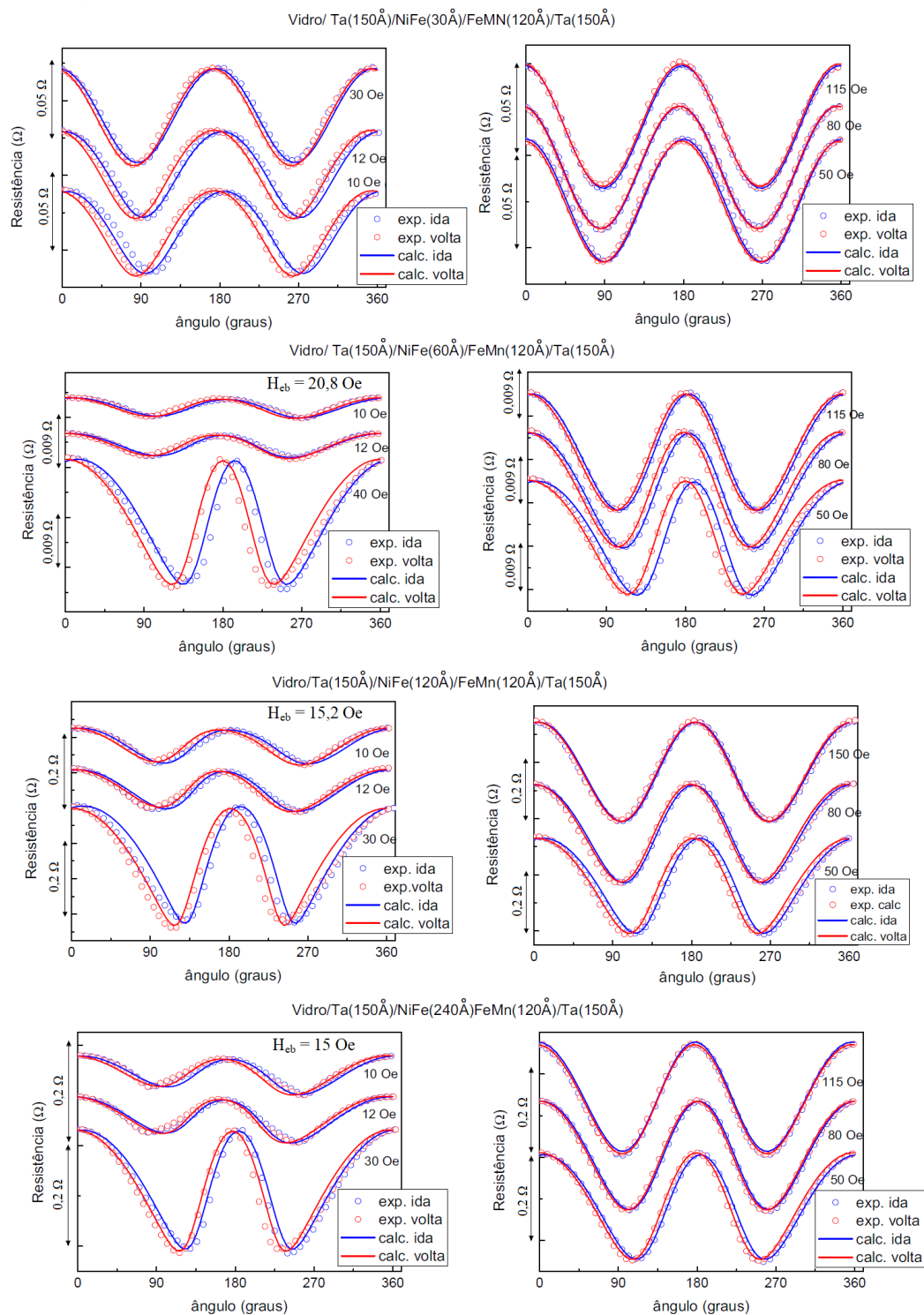
Nas medidas apresentadas na figura 6.17 (a), a corrente é aplicada na mesma direção do campo de deposição, os resultados são semelhantes aos obtidos para os conjuntos de amostras trabalhados. Na figura 6.17 (b), a corrente foi aplicada a 45° em relação ao campo de deposição. Para campos menores do que H_{eb} a curva apresenta somente um mínimo e um máximo. Para campo maiores que o H_{eb} e menores que a saturação as curva apresentam uma assimetria em torno de $\theta = 180^\circ$, apresentando um lado mais alargado que o outro. Já para campos maiores que a saturação, as curvas se comportam como descrito anteriormente.

A figura 6.17 (c), a corrente é aplicada a 90° em relação ao campo de deposição. Nesse caso a resistência é mínima a 0° , pois a corrente está sendo aplicada perpendicularmente à direção da magnetização. As curvas apresentam comportamento semelhante ao descrito para as outras amostras 1913, 1927 e 1928.

Nas medidas de AMR das amostras em $\theta = 0^\circ$, geralmente para baixos valores de campo aplicado, podemos observar que os máximos da AMR em $\theta_H = 0$ ou 360° são maiores do que em 180° . Essas características estão relacionadas ao processo de magnetização (LEIGHTON et al., 2000), e à dispersão nos eixos de anisotropia (SPENATO; POGOSSIAN; GALL, 2003), (HOU et al., 2001). No ajuste, o parâmetro σ_B é responsável pela redução no valor da resistência em $\theta_H = 180^\circ$ em comparação com os valores em $\theta_H = 0$ ou 360° , como descrito na seção 4.3 e ilustrado na figura 4.7.

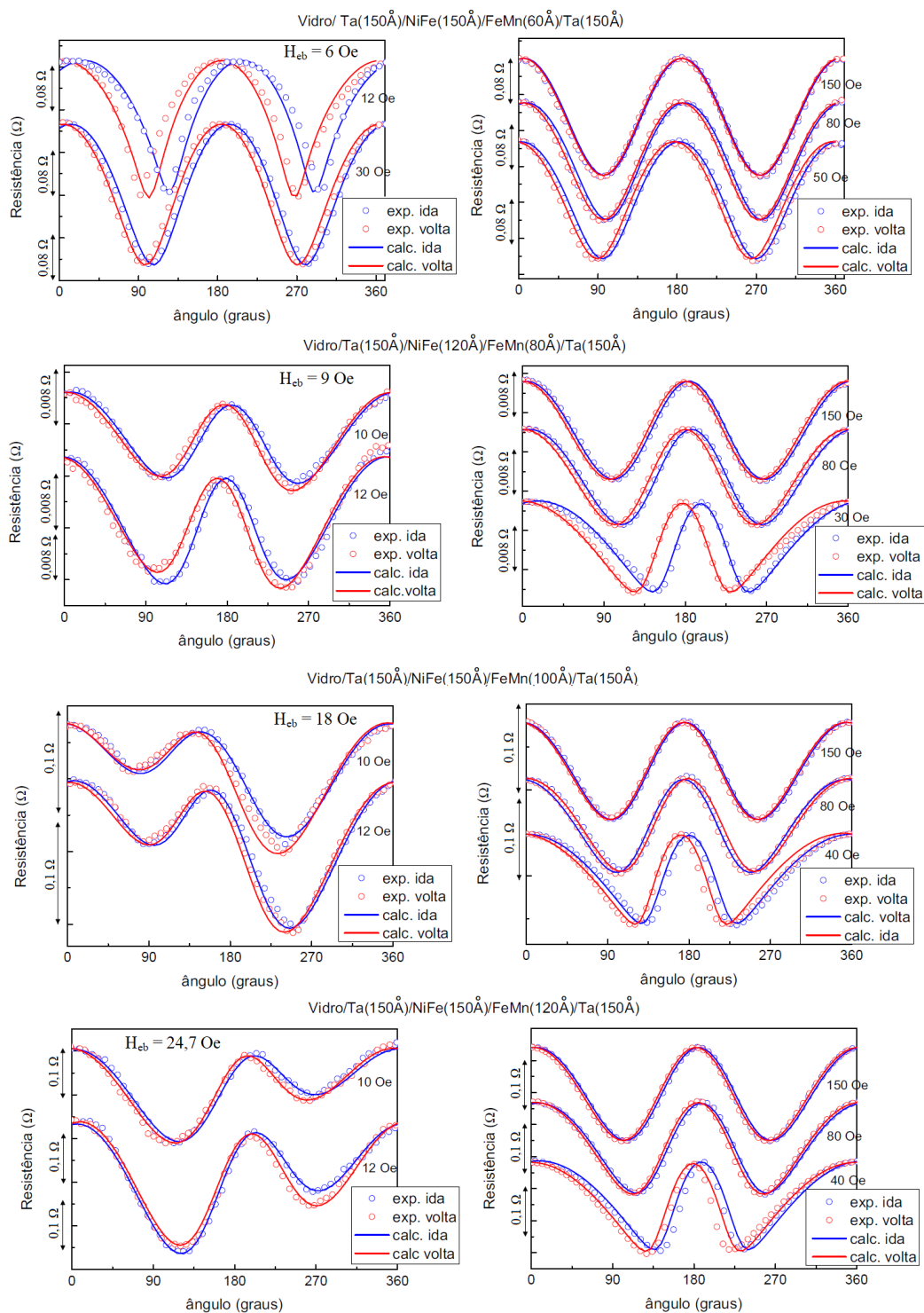
Importante ressaltar que para uma mesma amostra foi possível fazer os ajustes para os diferentes campos aplicados com os mesmos parâmetros, ou seja, mesmos valores para o H_K , H_{eb} , H_{rot} , ϕ_{eb} , ϕ_K e σ_B . Isso mostra que o modelo usado é adequado para a obtenção dos parâmetros das amostras. As tabelas 6.10, 6.11 e 6.12 apresentam os valores desses parâmetros usados para cada amostra no ajuste. As curvas foram ajustadas ida e volta separadamente, mas com os mesmos parâmetros.

Figura 6.19 – Medidas de AMR e ajustes da amostra do conjunto variando a espessura da camada FM (1927), para diferentes valores de campos aplicados. As curvas a diferentes campos foram deslocadas verticalmente para melhor comparação.



Fonte: Autora.

Figura 6.20 – Medidas de AMR e ajustes da amostra do conjunto variando a espessura da camada AFM(1928), para diferentes valores de campos aplicados. As curvas a diferentes campos foram deslocadas verticalmente para melhor comparação.



Fonte: Autora.

Nas medidas de AMR realizadas é possível perceber também a presença de histe-

Tabela 6.10 – Parâmetros usados para ajustar as curvas de AMR da amostra 1913 (1,5 mTorr).

Amostra	H_{eb} (Oe)	H_K (Oe)	H_{rot} (Oe)	$\phi_{eb} - \phi_K$ ($^\circ$)	σ_B ($^\circ$)
1913	7,0	10,3	0,0	8,0	6,0

Tabela 6.11 – Parâmetros usados para ajustar as curvas de AMR do conjunto de amostras variando a espessura da camada FM (vidro/Ta(150Å)/NiFe(x)/FeMn(120Å)/Ta(150Å)).

Amostra	H_{eb} (Oe)	H_K (Oe)	H_{rot} (Oe)	$\phi_{eb} - \phi_K$ ($^\circ$)	σ_B ($^\circ$)
30Å NiFe	0,0	2,0	0,0	0,0	0,0
60Å NiFe	20,8	9,2	2,0	0,5	9,0
120Å NiFe	15,2	12,2	3,0	1,2	9,0
240Å NiFe	15,0	8,5	3,5	2,0	11,0

Tabela 6.12 – Parâmetros usados para ajustar as curvas de AMR do conjunto de amostras variando a espessura da camada AFM (vidro/Ta(150Å)/NiFe(150Å)/FeMn(x)/Ta(150Å)).

Amostra	H_{eb} (Oe)	H_K (Oe)	H_{rot} (Oe)	$\phi_{eb} - \phi_K$ ($^\circ$)	σ_B ($^\circ$)
60Å FeMn	3,0	13,0	10,0	0,2	10,0
80Å FeMn	16,8	7,0	5,0	0,8	12,0
100Å FeMn	22,5	11,0	3,5	4,5	8,5
120Å FeMn	24,3	12,2	2,0	2,5	8,0

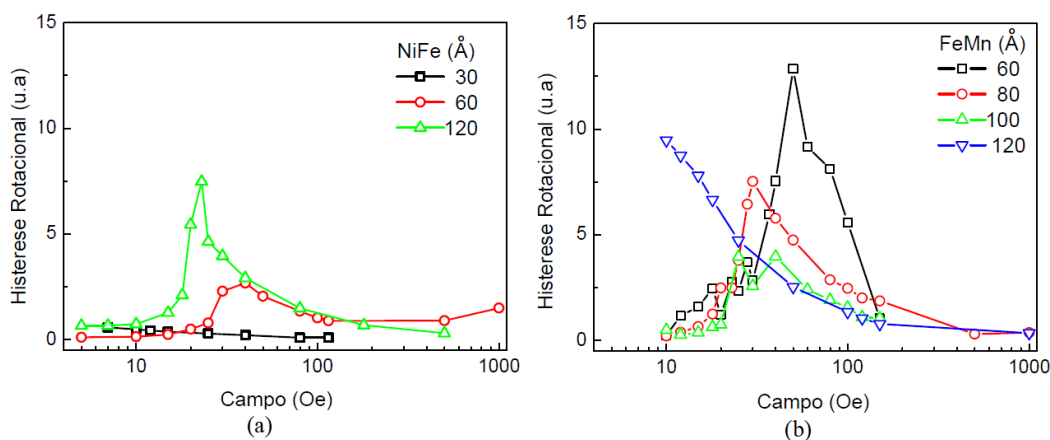
rese rotacional (HR), ou seja, as curvas de AMR medidas no sentido horário e anti-horário não são coincidentes. A HR está associada às perdas de energia devido a efeitos histeréticos, efeitos ligados tanto a histerese magnética convencional como também à anisotropia rotável. A origem da HR em $H > H_{sat}$ está relacionada a presença de grãos instáveis na interface FM/AFM. Como já foi abordado na seção 3.4, a interface está dividida em dois tipos de grãos: instáveis e estáveis, que se comportam de maneira diferente quando a magnetização gira no plano da amostra (H_{rot}). Os grãos estáveis são mantidos alinhados com a camada AFM, enquanto os instáveis giram irreversivelmente e com uma mudança de fase em relação à camada FM (ϕ_{rot}). A reversão da magnetização desses grãos dá origem a HR (RIGUE et al., 2015).

A HR é definida como sendo a metade da área envolvida pela diferença das curvas de torque medidas no sentido horário e anti-horário. Para calcular a HR por AMR, usamos a analogia com as curvas de torque, definindo como a metade da área envolvida pela diferença das curvas de AMR medidas no sentido horário e anti-horário.

A histerese é bem percebida para valores de campos aplicados menores que o H_{eb} . A HR nas medidas de AMR está associada principalmente à histerese convencional que ocorre na maioria dos materiais FM (SILVA et al., 2018). Para campos baixos, a magnetização da camada FM é presa pela anisotropia e quase imóvel quando o campo é girado em torno da amostra. Em campos altos, a magnetização da camada FM segue o campo

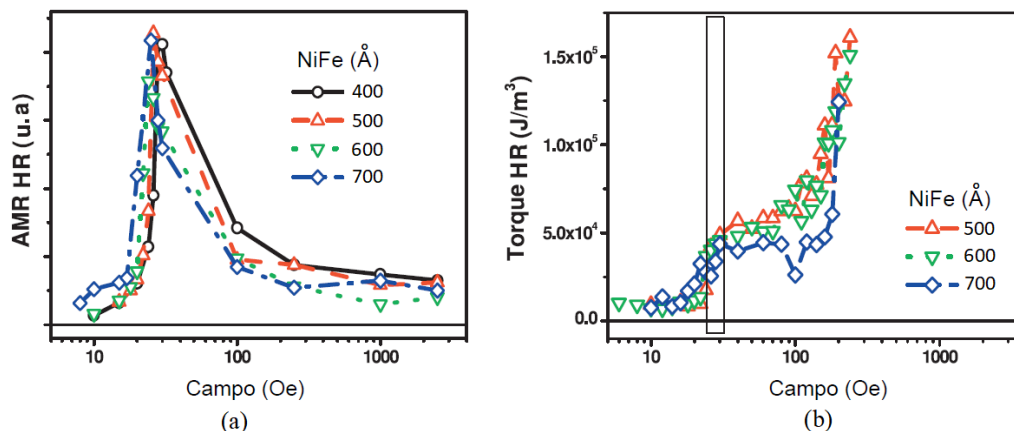
aplicado e em ambos os limites os processos são reversíveis, não produzindo quase nenhuma histerese. Em campos intermediários, a magnetização "salta" irreversivelmente de uma posição próxima da anisotropia para uma posição próxima do eixo do campo aplicado, produzindo assim a HR (YOSHIDA; TEMPLETON; ARROTT, 1994). Na figura 6.21, pode-se observar o comportamento da HR em relação ao campo aplicado para os conjuntos de amostras 1927 e 1928. A HR aumenta até aproximadamente o H_{eb} de cada amostra. Para campos próximos ou maiores que a saturação a HR se mantém praticamente constante e próxima de zero nas medidas de HR por AMR.

Figura 6.21 – Histerese rotacional em relação ao campo aplicado. (a) Conjunto variando a espessura da camada FM (1927) e (b) variando a espessura da camada AFM (1928).



Fonte: Autora.

Figura 6.22 – Histerese rotacional em relação ao campo aplicado referentes ao primeiro conjunto de amostras variando a espessura da camada FM (Ta(150Å)/NiFe(x)/FeMn(200Å)/Ta(150Å)), cujos resultados foram publicados (SILVA et al., 2018). (a) HR por medidas de AMR e (b) HR obtida pelas medidas de torque.



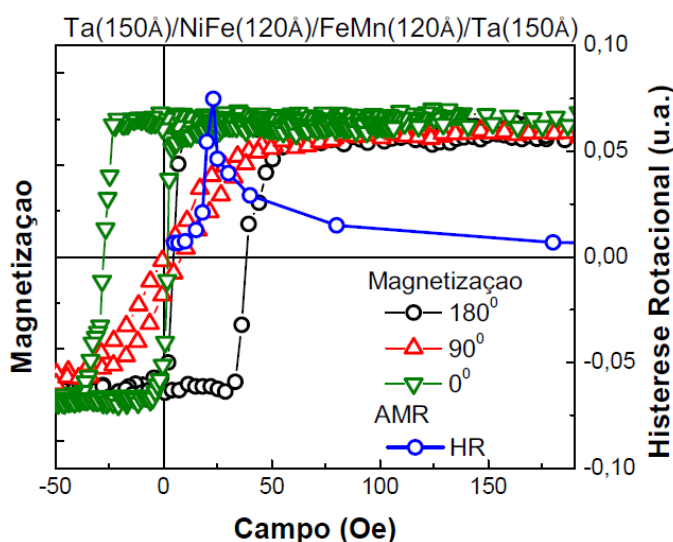
Fonte: (SILVA et al., 2018).

O conjunto 1927 (variando a espessura da camada FM), foi produzido com espessura da camada FM mais fina na tentativa de fazer a corrente elétrica passar na interface nas medidas de AMR, e observar o comportamento da HR. Como podemos observar na figura 6.21 (a), o comportamento obtido para esse conjunto foi semelhante ao já observado por outro conjunto de amostras com o NiFe mais espesso, figura 6.22 (a). Os resultados obtidos para o conjunto 1928 (variando a espessura da camada AFM), também são semelhantes ao conjunto 1927, figura 6.21 (b).

De acordo com os dados obtidos e comparados com os já existentes, figura 6.22 (a), não conseguimos observar a HR por AMR, pois como observamos no gráfico da figura 6.21, a HR medida está associada principalmente à histerese convencional que ocorre na maioria dos materiais FM, pois a corrente é desviada para o centro da camada FM onde a resistência é menor, não passando pela interface onde há rugosidade, imperfeições na superfície fazendo a resistência aumentar. Por esse motivo, ela aumenta na região próxima ao H_{eb} e logo após, tem um pequeno decréscimo. Para campos próximos ou maiores que a saturação, a HR se mantém praticamente constante e próxima de zero. Ao contrário do que observamos na AMR, de acordo com o estudo feito no trabalho (SILVA et al., 2018), a HR nas medidas de torque continua aumentando mesmo para campos altos. Isso ocorre devido ao fato que no torque é feita uma análise do volume de toda amostra, inclusive da interface, figura 6.22 (b). A parte assinalada no gráfico, corresponde a região de crescimento da HR nas medidas de AMR.

Observando a figura 6.21 (a), notamos que a amostra depositada com 60 Å de NiFe se comporta de maneira um pouco diferente, podendo apresentar HR por AMR, pois ela apresenta uma tendência a aumentar com o campo, ao contrário das demais que decrescem. Não podemos afirmar, pois não temos medidas a valores de campos mais altos.

Figura 6.23 – Superposição das curvas de magnetização com HR.



Na figura 6.23, podemos observar através da superposição da curva de magnetização com a curva de HR, que o aumento da HR ocorre no ponto de inversão das medidas de magnetização. Esse ponto é onde ocorre a maior perda de energia por HR. Seria o ponto crítico, onde temos a maior quantidade de momentos magnéticos invertendo ao mesmo tempo. Se eles invertessem coerentemente não teríamos praticamente HR, mas como há um atraso de alguns, essa histerese aparece na forma de um pico. Esse ponto reforça a HR associada a histerese convencional da camada FM, pois ela está relacionada ao giro do campo em torno da amostra em cada ponto.

7 CONCLUSÕES E PERSPECTIVAS

Nesse trabalho foi apresentado um estudo do comportamento magnético de bicamadas FM/AFM (NiFe/FeMn) que apresentam o fenômeno de Exchange Bias (EB). As amostras foram produzidas via magnetron sputtering e feita sua caracterização estrutural, magnética e elétrica.

Primeiramente, foram produzidas bicamadas variando a espessura da camada FM, depositadas a pressão de Ar de 2,1 mTorr. Nas medidas de magnetização foi verificado um decréscimo no H_{eb} com o aumento na espessura da camada FM, mas tal decréscimo não foi como esperado, ou seja, $H_{eb} \propto \frac{1}{t_{FM}}$. Essa diferença está associada em termos do aumento do número de spins AFM não-compensados, devido ao decréscimo do tamanho de grão do FeMn, como verificado nas medidas de raios X. Verificou-se também que a histerese rotacional do sistema saturado, analisada por torque, não se manifestava na AMR. Concluiu-se, preliminarmente, o que já se tinha conhecimento, ou seja, que o EB depende da interface. Todo esse estudo detalhado encontra-se na referência (SILVA et al., 2018).

No segundo momento, foram produzidas bicamadas depositadas a diferentes valores de pressão de Ar (1,5; 3 e 6 mTorr), conjunto 1819. Foram usadas máscaras durante a deposição das amostras a fim de definir a direção da corrente em relação à direção de anisotropia. Foi feita a caracterização estrutural, magnética e elétrica desse conjunto, obtendo os resultados mais satisfatórios para a mostra depositada com menor pressão (1,5 mTorr). Na difratometria de raios X, o crescimento preferencial do NiFe e do FeMn foi na direção (111), o que possivelmente favoreceu o aparecimento do fenômeno EB. A intensidade do pico do NiFe diminui com o aumento no valor da pressão de Ar. Esse conjunto de amostras nos trouxe resultados satisfatórios, pois devido aos cortes feitos através do uso das máscaras podemos ter certeza da direção de aplicação da corrente em relação a direção de anisotropia, provando que a assimetria presente nas curvas de AMR para valores de campo aplicados menores que H_{eb} , é devido à um desalinhamento entre os eixos de anisotropias (uniaxial e unidirecional) (RIGUE et al., 2015), (GRAET et al., 2009), (POGOSSIAN et al., 2006), (SPENATO; POGOSSIAN; GALL, 2003), (BARRETO et al., 2014), (DEKADJEVI et al., 2011), (SILVA et al., 2018), (SIQUEIRA et al., 2019).

Ainda no segundo momento, foram produzidas outras bicamadas onde manteve-se fixa a pressão de Ar na deposição da camada AFM (1,5 mTorr) e variou-se seu valor na deposição da camada FM (0,7; 1,5; 3,0 e 6,0 mTorr), conjunto 1913. Na difratometria de raios X nota-se o crescimento preferencial do NiFe e do FeMn na direção (111), o que deve ter favorecido o aparecimento do fenômeno de EB. A intensidade dos picos de difração do NiFe são mais intensos para valores de pressões de Ar mais baixos, apresentando uma melhor textura cristalográfica. Apesar da melhor textura ser para a pressão de 0,7 mTorr,

assim como a sua curva de magnetização apresentar anisotropia melhor definida, foi escolhida a pressão de 1,5 mTorr para a deposição dos demais conjuntos. Isso devido ao fato, da pressão de 0,7 mTorr não se manter estável durante o processo de deposição. Outro fator que levou a escolha da pressão de 1,5 mTorr foi fato que nesse valor de pressão o H_{eb} e H_K têm valores próximos, uma contribuição que facilita a identificação do desalinhamento nas medidas de AMR.

No terceiro momento, foram produzidos dois conjuntos de amostras, um variando a espessura da camada FM e outro variando a espessura da camada AFM, depositadas com pressão de Ar de 1,5 mTorr. As amostras com a espessura da camada FM mais fina serviram também para tentar verificar se daria para observar a histerese rotacional por AMR, já que no primeiro conjunto, o NiFe mais espesso promovia um caminho com menor resistência para a corrente.

Na difratometria de raios X para o conjunto variando a espessura da camada FM (1927), nota-se o crescimento preferencial do NiFe e do FeMn na direção (111). Observa-se que o pico referente ao NiFe aumenta sua intensidade, conforme aumenta sua espessura. A amostra depositada com espessura de 30Å de NiFe, não apresentou o fenômeno de EB, contrapondo a relação $H_{eb} \propto \frac{1}{t_{FM}}$ (NOGUES; SCHULLER, 1999). Talvez essa espessura do NiFe seja muito fina, tornando essa camada descontínua. Percebe-se pelas medidas de AFM, que a rugosidade na superfície dessa amostra é comparável com a espessura do NiFe da amostra.

Na difratometria de raios X para o conjunto variando a espessura da camada AFM (1928), nota-se o crescimento preferencial do NiFe e do FeMn na direção (111). Observa-se que a intensidade do pico do NiFe se mantém aproximadamente a mesma, diminuindo apenas para a espessura maior do FeMn. Para esse conjunto de amostras o valor do H_{eb} teve um acréscimo com o aumento da espessura, verificada nas três técnicas de medida.

O modelo fenomenológico considerando a energia livre magnética composta pela energia Zeeman, uniaxial, unidirecional e rotável ajusta com boa concordância às curvas de AMR em função do ângulo do campo obtidas experimentalmente. Pelo modelo e pelos cortes feitos através das máscaras usadas durante a deposição, conseguimos mostrar que a assimetria presente nas curvas de AMR medidas em valores de campos aplicados menores do que H_{eb} , é devido a um desalinhamento entre os eixos de anisotropia (uniaxial e unidirecional). As máscaras tinham por objetivo definir a direção da corrente em relação à direção de anisotropia.

Nas medidas de AMR realizadas é possível perceber também a presença de histerese rotacional (HR). A HR está associada às perdas de energia devido a efeitos histeréticos, efeitos ligados à anisotropia rotável. A origem da HR está relacionada à presença de grãos instáveis na interface FM/AFM. A interface está dividida em dois tipos de grãos: instáveis e estáveis, que se comportam de maneira diferente quando a magnetização gira no plano da amostra (H_{rot}). Os grãos estáveis são mantidos alinhados com a camada AFM,

enquanto os instáveis giram irreversivelmente e com uma mudança de fase em relação à camada FM (ϕ_{rot}). A reversão da magnetização desses grãos dá origem a HR (RIGUE et al., 2015).

O conjunto variando a espessura da camada FM, foi produzido com espessura da camada FM mais fina na tentativa de fazer a corrente elétrica passar na interface nas medidas de AMR, e observar o comportamento da HR. De acordo com os dados obtidos não conseguimos observar a HR por AMR, pois ela está associada principalmente à histerese convencional que ocorre na maioria dos materiais FM. A corrente é desviada para o centro da camada FM onde a resistência é menor, não passando pela interface onde há rugosidade, imperfeições na superfície fazendo a resistência aumentar. Por esse motivo, ela aumenta na região próxima ao H_{eb} e logo após, tem um pequeno decréscimo. Para campos próximos ou maiores que a saturação, a HR se mantém praticamente constante e próxima de zero. A amostra depositada com espessura de 60Å de NiFe, apresentou uma tendência a mostrar HR por AMR. De acordo com a medida a histerese aumentou discretamente com o campo aplicado.

Observando o EB através de diferentes técnicas, obtém-se valores de H_{eb} diferentes, sugerindo uma mudança na participação dos grãos estáveis e instáveis da interface FM/AFM (LI et al., 2017).

Tendo em vista o conjunto de dados apresentados nessa tese, pensando em perspectivas futuras, pretende-se completar a análise de um conjunto de amostras já produzidos, depositadas de forma que os contatos nas medidas de AMR sejam colados diretamente na interface, "forçando" a corrente elétrica a percorrer esse caminho ao invés de ser desviada para a camada FM.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

ALI, M. et al. Antiferromagnetic layer thickness dependence of the IrMn/Co exchange-bias system. **Physical Review B**, v. 68, p. 2144201–2144207, 2003.

ALLEGGRANZA, O.; CHEN, M. M. Effect of substrate and antiferromagnetic film's thickness. **Journal of Applied Physics**, v. 73, p. 6218–6222, 1993.

ARAUJO, C. I. L. D. **Magnetorresistência em ligas ferro-níquel eletrodepositadas em silício tipo-N**. 2007. Tese (Doutorado) — Programa de PG em Física, UFSC, 2007.

BARHOLZ, K. U.; MATHEIS, R. M. Exchange bias field strength and direction in ferromagnetic/antiferromagnetic system. **IEEE Transactions on Magnetics**, v. 38, n. 5, p. 2767–2769, 2002.

BARRETO, P. G. et al. Ferromagnetic resonance study of the misalignment between anisotropy axes in exchange-biased *NiFe/FeMn/Co* trilayers. **Applied Physics Letters**, v. 104, p. 202403, 2014.

BAZONI, R. F. **Caracterização de camadas de $\text{TiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ por refletividade de raios-X**. 2013. Dissertação (Mestrado) — Programa de PG em Física Aplicada, UFV, 2013.

BERKOWITZ, A.; TAKAMO, K. Exchange anisotropy - a review. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 200, p. 552–570, 1999.

BITERNAS, A. G.; NOWARK, U.; CHANTRELL, R. W. Training effect of exchange bias bilayers within the domain state model. **Physics Review B**, v. 80, p. 134419, 2009.

BLUNDELL, S. **Magnetism in Condensed Matter**. [S.l.]: Oxford, New York, 2001.

CASTRO, I. L. et al. The role of the (1 1 1) texture on the exchange bias and interlayer coupling effects observed in sputtered *NiFe/irMn/Co* trilayer. **Journal of Applied Physics**, v. 113, n. 20, p. 203903, 2013.

CHEN, Y. T. The effect of interface texture on exchange biasing in $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Ir}_{20}\text{Mn}_{80}$ system. **Nanoscale Research Letters**, v. 4, n. 1, p. 90–93, 2009.

CHIKAZUMI, S. **Physics of Ferromagnetism**. [S.l.]: Oxford University Press, New York, 1997.

CHOI, H. C. et al. Antiferromagnetic layer thickness dependence of noncollinear uniaxial and unidirectional anisotropies in *NiFe/FeMn/CoFe* trilayers. **Physical Review B**, v. 81, p. 224410, 2010.

COEY, J. M. D. **Magnetism and Magnetic Materials**. [S.l.]: Cambridge University Press, 2009.

CULLITY, B. D. **Elements of X-ray Diffraction**. [S.l.]: Addison-Wesley Publishing Company, 1956.

CULLITY, B. D.; GRAHAM, C. D. **Introduction to Magnetic Materials**. [S.l.]: Wiley, 2009.

DEKADJEVI, D. T. et al. Experimental evidences and driving mechanism for anisotropic misalignments in exchange coupled systems. **The European Physical Journal B**, v. 80, p. 121–125, 2011.

DEVASAHAYAM, A. J.; SIDES, P. J.; KRYDER, M. H. Magnetic, temperature, and corrosion properties of the NiFe/IrMn exchange couple. **Journal of Applied Physics**, v. 83, p. 7216, 1988.

DIENY, B. et al. Magnetotransport properties of magnetically soft spin-valve structures (invited). **Journal of Applied Physics**, v. 69, p. 4774–4779, 1991.

DRIEL, J. V.; BOER, F. D.; LENSSEN, K. Exchange biasing by Ir₁₉Mn₈₁: Dependence on temperature, microstructure and antiferromagnetic layer thickness. **Journal of Applied Physics**, v. 88, n. 2, p. 975, 2000.

FERMIN, J. R. et al. Measurements of exchange anisotropy in *NiFe/NiO* films with different techniques. **Journal of Applied Physics**, v. 87, p. 6421–6423, 2000.

FERNANDEZ-OUTON, L. et al. Thermal instabilities in exchange biased materials. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 303, p. 296–301, 2006.

FLEISCHMANN, C. et al. The influence of interface roughness on the magnetic properties of exchange biased CoO/Fe thin films. **Journal of Applied Physics**, v. 107, p. 1139071–1139077, 2010.

FUJIWARA, H. et al. Effect of exchange coupling of polycrystalline antiferromagnetic layers on the magnetization behavior of soft magnetic layers. **IEEE TRANSACTIONS ON MAGNETICS**, v. 35, p. 3082–3087, 1999.

_____. Effect of direct exchange coupling between antiferromagnetic grains on magnetic behavior of ferro/antiferromagnetic exchange coupled polycrystalline layer system. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 235, p. 319–328, 2001.

FULCOMER, E.; CHARAP, S. H. Thermal fluctuation aftereffect model for some system with ferromagnetic-antiferromagnetic coupling. **Journal of Applied Physics**, v. 43, p. 4190–4199, 1972.

FULCOMER, E.; CHARAP, S. P. Temperature and frequency dependence of exchange anisotropy effects in oxidized nife films. **Journal of Applied Physics**, v. 43, p. 4184, 1972.

GETZLAFF, M. **Fundamentals of Magnetism**. [S.l.]: Springer, Berlin, 2008.

GRAET, C. L. et al. Probing misalignment in exchange biased systems: A dynamic approach. **Applied Physics Letters**, v. 94, p. 262502, 2009.

GUANGHUA, Y. et al. Magnetic property and interlayer segregation in spin valve metal multilayers. **Science in China**, v. 45, n. 2, p. 140–145, 2002.

HAN, D. et al. Texture and surface/interface topological effects on the exchange and coercive fields of NiFe/NiO bilayers. **Journal of Applied Physics**, v. 81, p. 340, 1997.

HARRES, A.; GESHEV, J. Athermal training due to exchange and dipolar coupling within a granular model for exchange bias. **Journal Physics: Condense Matter**, v. 23, n. 21, p. 216003, 2011.

_____. A polycrystalline model for magnetic exchange bias. **Journal Physics: Condense Matter**, v. 24, p. 32004, 2012.

- HOFFMANN, A. Symetric driven irreversibilities at ferromagnetic-antiferromagnetic interfaces. **Physics Review Letters**, v. 93, p. 097203, 2004.
- HOU, C. et al. Dispersion of the pinning field direction of a ferromagnet/antiferromagnet coupled system. **Applied Physics Letters**, v. 78, n. 2, p. 237–239, 2001.
- HU, Y. et al. Role of ferromagnetic spin structure in magnetization reversal and exchange bias phenomena. **Journal of Physics D: Applied Physics**, v. 51, p. 055001, 2018.
- JUNGBLUT, R. et al. Orientational dependence of the biasing in molecular - beam - epitaxy - grow $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$ bilayers. **Journal of Applied Physics**, v. 75, p. 6659–6664, 1994.
- KERN, P. R. **Exchange Bias em Bicamadas de NiFe/FeMn: Um Estudo em Função da Espessura da Camada Antiferromagnética**. 2018. Tese (Doutorado) — Programa de PG em Física, UFSM, 2018.
- KHANAL, S. et al. Exchange bias in $(\text{FeNi}/\text{IrMn})_n$ multilayer films evaluated by static and dynamic techniques. **Journal of Physical D: Applied Physics**, v. 47, p. 255002, 2014.
- KITTEL, C. **Introduction to Solid State Physics**. [S.l.]: John Wiley, 2005.
- KIWI, M. Exchange bias theory. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 234, p. 584–595, 2001.
- KIWI, M. et al. Exchange-bias systems with compensated interfaces. **Journal of Physics D: Applied Physics**, v. 75, p. 3995–3997, 1999.
- KOON, N. C. Calculations of exchange bias in thin films with ferromagnetic/antiferromagnetic interfaces. **Physical Review Letters**, v. 78, n. 25, p. 4865–4868, 1997.
- KRONMULLER, H.; PARKIN, S. **Handbook of Magnetism and Advanced Magnetic Materials**. [S.l.]: Wiley, 2007.
- LEIGHTON, C. et al. Using magnetoresistance to probe reversal asymmetry in exchange biased bilayers. **Journal of Applied Physics**, v. 88, p. 344, 2000.
- LI, J. et al. Measurement of exchange anisotropy in NiFe/FeMn bilayers using different methods. **J Matter Sci: Mater Electron**, v. 28, p. 15313–15318, 2017.
- MALINOWSKI, G. et al. Magnetic origin of enhanced top exchange biasing in $\text{Py}/\text{IrM}/\text{Py}$ multilayers. **Physical Review B**, v. 68, p. 184404, 2003.
- MALOZEMOFF, A. P. Random-field model of exchange anisotropy at rough ferromagnetic-antiferromagnetic interfaces. **Physical Review B**, v. 35, p. 3679–3682, 1987.
- MAURI, D. et al. Simple model for thin ferromagnetic films exchange coupled to an antiferromagnetic substrate. **Journal of Applied Physics**, v. 62, p. 3047–3049, 1987.
- MEIKLEJOHN, W. H. Exchange anisotropy - a review. **Journal of Applied Physics**, v. 33, p. 1328–1335, 1962.
- MEIKLEJOHN, W. H.; BEAN, C. P. New magnetic anisotropy. **Physical Review**, v. 102, n. 5, p. 1413–1414, 1956.
- _____. New magnetic anisotropy. **Physical Review**, v. 105, n. 3, p. 904–913, 1957.

MOTT, N. F. The electrical conductivity of transition metals. **H. H Will Physical Laboratory, University of Bristol**, 1935.

NASCIMENTO, V. P. et al. Clarifying roughness and atomic diffusion contributions to the interface broadening in exchange-biased nife/femn/nife heterostructures. **Thin Solid Films**, v. 542, p. 360–367, 2013.

NÉEL, L. **Annals of Physics**. [S.I.]: Paris, 1967. v. 2.

NOGUES, J.; SCHULLER, I. Exchange bias. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 192, p. 203–232, 1999.

NOGUES, J. et al. Exchange bias in nanostructures. **Physics Reports**, v. 442, p. 65–117, 2005.

O'GRADY, K.; FERNANDEZ, L.; VALLEJO, G. A new paradigm for exchange bias in polycrystalline thin films. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 322, p. 883–899, 2010.

OKSUZOGLU, R. M. et al. Effect of ta buffer and nife seed layers on pulsed-dc magnetron sputtered $\text{Ir}_{20}\text{Mn}_{80}/\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ exchange bias. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 323, p. 1827–1834, 2011.

PACCARD, D. et al. A new property of ferromagnetic-antiferromagnetic coupling. **Physical States Solidis**, v. 16, p. 301, 1966.

PAKALA, M. et al. Effect of underlayer roughness, grain size, and crystal texture on exchange coupled IrMn/CoFe thin films. **Journal of Applied Physics**, v. 87, p. 6653–6655, 2000.

PARK, C. M.; MIN, K. I.; SHIN, K. H. Effect of surface topology and texture on exchange anisotropy in NiFe/Cu/NiFe/FeMn spin valves. **Journal of Applied Physics**, v. 79, p. 6228, 1996.

POGOSSIAN, S. P. et al. Experimental method to determine the misalignment of the easy axis of ferromagnetic and antiferromagnetic films in exchange biased bilayers. **Physical Review B**, v. 73, p. 174414, 2006.

RADU, F.; ZABEL, H. Exchange bias effect of ferro-/antiferromagnetic heterostructures. **Advances and Perspectives in Spinstructures and Spintransport**. Berlin/Heidelberg and Springer-Verlag, 2008.

REZENDE, S. M. **Materiais e Dispositivos Eletrônicos**. [S.I.]: Livraria da Física, 2012.

RIGUE, J. N. **Anisotropias magnéticas em filmes finos de Co: Uma análise por magnetometria de torque**. 2010. Dissertação (Mestrado) — Programa de PG em Física, UFSM, 2010.

RIGUE, J. N. **Estudo da Anisotropia Inidirecional e da Histerese Rotacional em Sistemas com Exchange Bias**. 2014. Tese (Doutorado) — Programa de PG em Física, UFSM, 2014.

RIGUE, J. N. et al. Exchange bias in bilayer and multilayer NiFe/IrMn. **IEEE Magnetism Letters**, v. 6, p. 3800204, 2015.

SAMPAIO, L. C. et al. Técnicas de magnetometria. **Revista Brasileira de Ensino de Física**, v. 22, p. 406–410, 2000.

- SANKARANARAYANAN, V. K. et al. Exchange bias in *NiFe/FeMn/NiFe* trilayers. **Journal of Applied Physics**, v. 96, n. 12, p. 7428–7434, 2004.
- SEU, K. A. et al. Co layer thickness dependence of exchange bias for IrMn/Co and FeMn/Co. **Journal of Applied Physics**, v. 93, n. 10, p. 6611–6613, 2003.
- SHULTHESS, T. C.; BUTLER, W. H. Consequences of spin-flop coupling in exchange biased films. **physical Review Letters**, v. 81, n. 20, p. 4516–4519, 1998.
- SILVA, O. E. D. **Estudo do Exchange Bias em Filmes Finos NiFe/FeMn (bicamadas) e NiFe/IrMn (multicamadas)**. 2016. Dissertação (Mestrado) — Programa de PG em Física, UFSM, 2016.
- SILVA, O. E. D. et al. Magnetic anisotropies and rotational hysteresis in $Ni_{81}Fe_{19}/Fe_{50}Mn_{50}$ films: A study by torque magnetometry and anisotropic magnetoresistance. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 451, p. 507–514, 2018.
- SIQUEIRA, J. V. D. et al. Obtaining the anisotropy axes misalignment and dispersion in exchange bias systems by magnetoresistance. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 478, p. 6–11, 2019.
- SOUSA, M. A. **Estudo do Fenômeno de Exchange Bias em Bicamadas de NiFe/IrMn e Tricamadas de NiFe/IrMn/Co**. 2013. Tese (Doutorado) — Instituto de Física, UFG, 2013.
- SPALDIN, N. A. **Magnetic Materials Fundamentals and Applications**. [S.l.]: Cambridge University Press, New York, 2010.
- SPENATO, D.; POGOSSIAN, S. P.; GALL, H. L. Asymmetric magnetization reversal in exchange-biased polycrystalline f/af bilayers. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 262, p. 294–301, 2003.
- SPONG, J. K.; SPERIOSU, V. S.; FONTANA, R. E. Giant magnetoresistive spin valve bridge sensor. **IEEE Transactions on Magnetics**, v. 32, n. 2, p. 366–371, 1996.
- STILES, M. D.; MCMICHAEL, R. D. Model for exchange bias in polycrystalline ferromagnet-antiferromagnetic bilayers. **Physical Review B**, v. 59, p. 3722–3733, 1999.
- TAKEUCHI, A. Y. **Técnicas de Medidas Magnéticas**. [S.l.]: Livraria da Física, 2010.
- TANG, X. L. et al. Ultra-low-pressure sputtering to improve exchange bias and tune linear range in spin valves. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 429, p. 65–68, 2017.
- TONG, H. C. et al. Studies on antiferromagnetic/ferromagnetic interfaces. **Journal of Magnetic Materials**, v. 209, p. 56–60, 2000.
- TSUNODA, M. et al. Effect of surface cleanig of substrate on the exchange coupling field in Ni-Fe/25at Ni-Mn films. **IEEE Transactions on Magnetics**, v. 33, n. 5, p. 3688–3690, 1997.
- UYAMA, H. et al. Effect of antiferromagnetic grain size on exchange coupling field $Cr_{70}Al_{30}/Fe_{19}Ni_{81}$ bilayers. **Journal of Physics D: Applied Physics**, v. 71, p. 1258, 1997.
- WAINFAN, N.; PARRATT, L. G. X-ray reflection studies of the anneal and oxidation of some thin solid films. **Journal Applied Physics**, v. 31, n. 8, p. 1331–1337, 1960.

WALTER, R. et al. Revisiting galvanomagnetic effect in conducting ferromagnets. **Journal of Physics**, v. 26, p. 432201, 2014.

XI, H.; WHITE, R. M. Antiferromagnetic thickness dependence of exchange biasing. **Physical Review B**, v. 61, n. 1, p. 80–83, 2000.

XI, H. et al. Low-frequency dynamic hysteresis in exchange-coupled $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}/\text{Ir}_{22}\text{Mn}_{78}$ bilayers. **Physical Review B**, v. 64, p. 184416, 2001.

YOSHIDA, Y.; TEMPLETON, T. L.; ARROTT, A. S. Model calculations of rotational hysteresis for ferromagnetic particles with competing anisotropies. **Journal Applied Physics**, v. 10, p. 5695–5697, 1994.

YUAN, F. T. et al. Ta/nife/femn thin films with enhanced exchange bias prepared at room temperature by rotational deposition. **Thin Solid Fims**, v. 536, p. 244–248, 2013.

ZHANG, S. et al. Coercivity induced by random field at ferromagnetic and antiferromagnetic interfaces. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 198, p. 468–470, 1999.

ANEXO A – ARTIGOS PUBLICADOS

Artigos publicados durante o período do doutorado.



Research articles

Obtaining the anisotropy axes misalignment and dispersion in exchange bias systems by magnetoresistance

J.V. de Siqueira^a, O.E. da Silva^a, P.R. Kern^a, J.P. Gazola^a, M. Carara^{a,*}, J.N. Rigue^b^a Departamento de Física, Universidade Federal de Santa Maria, Santa Maria 97105-900, RS, Brazil^b Coordenadoria Acadêmica, Universidade Federal de Santa Maria Campus Cachoeira do Sul, Cachoeira do Sul 96506-302, RS, Brazil

ARTICLE INFO

Keywords:

Exchange bias
Anisotropy axes misalignments
Anisotropies dispersion
Anisotropic magnetoresistance

ABSTRACT

We have studied the dispersion in the anisotropy fields axes and the misalignment between the uniaxial and unidirectional anisotropy axes in exchange bias (EB) systems by angular anisotropic magnetoresistance measurements (AMR). We present here how these two important parameters affect the AMR curves. The EB field dispersion results in different resistance values when measured with the magnetic field applied along or opposed to the average bias field direction. We found that a misalignment between the anisotropy axes produces an asymmetry in the angular AMR curves, similar to the asymmetry caused by the misalignment between the anisotropy axes and the current directions. Careful control on the current direction enable us to identify the origin of the measured asymmetry. In addition, we presented the model and protocol used to perform the calculations and obtain the main parameters related to EB.

1. Introduction

The exchange bias effect (EB) arises in systems with interfacial coupling, generally, between a ferromagnetic (F) and an anti-ferromagnetic (AF) material [1,2]. This kind of system has been studied for more than sixty years due to their possibilities on technological applications [3,4], however the phenomenon is not completely understood [2,4–8].

Different models have been developed, aiming to include specific characteristics of the EB for distinct systems [9,10]. Two important considerations were made in different models: a misalignment between the uniaxial and unidirectional anisotropy axes of the magnetic layers (F and AF) and a dispersion of the anisotropies [11–16]. However, it is not common to find both considerations in the models to explain the angular evolution of magnetoresistance.

Previously, our group investigated EB systems by different experimental techniques, for example: magnetization, torque magnetometry, ferromagnetic resonance and anisotropic magnetoresistance (AMR). We realized that each technique reveals different and complimentary aspects of the EB effect [13,16]. Here we report a study that shows how to identify (i) the dispersion of the anisotropy fields and (ii) the misalignment between the anisotropy axes of the F and AF layers. Our study is based on AMR measurements. More specifically, we have evaluated the field angle dependence of AMR in EB systems, compared

experimental data to calculated ones and obtained parameters describing the EB phenomena in such samples.

Hou and co-workers [17] reported a study on how to obtain the distribution of the local pinning fields, a hard to measure parameter, by AMR measurements. Besides that, they reported that an asymmetry in the AMR curves is due to a misalignment between the current and the pinning field. We have found that a similar asymmetry can be produced by a misalignment between the uniaxial and unidirectional anisotropies. Considering this, we have carefully prepared samples that enable us to determine which is the misalignment responsible for the asymmetry in the AMR curves.

The model to calculate AMR curves and to obtain the EB parameters is based on the free magnetic energy minimization and finding the F magnetization equilibrium angle, considering coherent magnetization rotation. Just below the sample's saturation field, such hypothesis is strictly valid, because no jumps in the magnetization or domain growth occurs.

It is worth noting that resistance measurements are generally simpler and cheaper to do on samples with low magnetic momentum compared to magnetization or ferromagnetic resonance. In addition, obtaining and discussing the misalignment between the anisotropy axes in this kind of samples may help to understand why different experimental techniques produce different results.

* Corresponding author.

E-mail address: marcos.carara@ufsm.br (M. Carara).

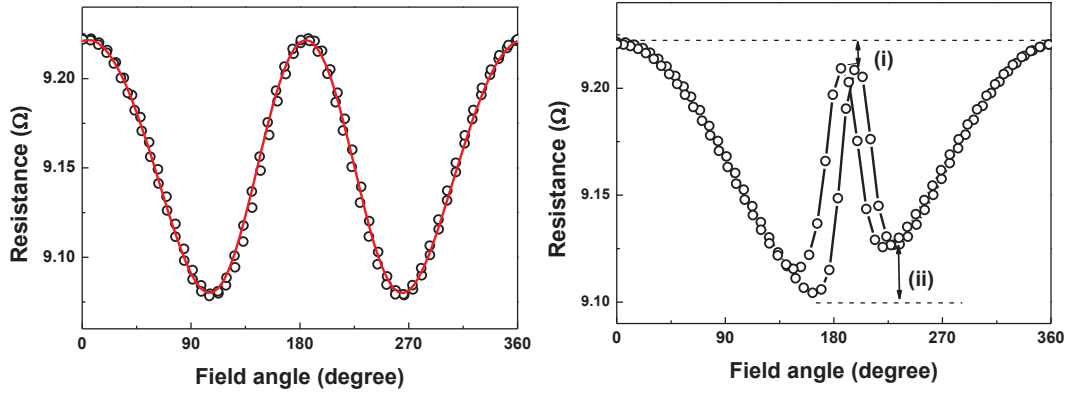


Fig. 1. (a) Symbols are the angular dependence of high field AMR measurements and the line is the fitting made using the model described in the text. (b) AMR measurement showing the signatures of (i) anisotropy dispersion and (ii) misalignments between the anisotropies axes or current direction.

2. The AMR model

It is well known that the magnetoresistance arises from the spin-orbit interaction and depends on the relative orientation between the measuring current and the magnetic moment [18]. The following equation relates the sample's resistance (R) to the measuring current (ϕ_I) and the magnetic moment (ϕ_M) directions,

$$R = R_{90} + \Delta R \cos^2(\phi_M - \phi_I) \quad (1)$$

where R_{90} and ΔR are the sample's resistance measured at $\phi_M - \phi_I = 90^\circ$ and the magnetoresistance, respectively.

This equation fits very well the angular behavior of the magnetoresistance measured at applied fields (H) greater than the saturation one (H_S). Fig. 1(a) presents a typical angular evolution of the resistance of a sample presenting exchange bias, measured at $H > H_S$. In general, the curves are harmonic with two maxima/minima separated by 180° with no hysteresis between the curves measured in the clockwise (CW) and counterclockwise (CCW) directions. Despite the good agreement between experimental and calculated curves, such fitting just give us information of ΔR and R_{90} .

While for applied fields higher than H_S the general shape of the measured curves do not change from that depicted in the Fig. 1(a), for fields above the anisotropy field (H_K) and lower than the saturation one ($H_K \leq H \leq H_S$) the experimental $R \times \phi_H$ curves present some peculiarities, as can be seen by comparing the panels (a) and (b) in Fig. 1. In this field range, the rotational hysteresis appears [16] and the symmetry of the curve is lost.

In order to describe the experimental AMR curves and to obtain the parameters governing the angular behavior of magnetoresistance curves, we have considered a phenomenological model for the samples' magnetic free energy composed by Zeeman, uniaxial, unidirectional and rotatable anisotropies energies, respectively, the first to fourth terms in Eq. (2). Anisotropies and applied fields were considered to be in the plane of the film. The angles in expression (2) are drawn in the Fig. 2. The AF layer was considered as being granular [19] with a distribution of easy axis directions of the AF grains around the direction of the applied field during the samples' growth (H_{dep}) [17,19–21]. The energy density of each grain (E_i) is quantified in the expression (2).

$$E_i = HM_S \cos(\phi_H - \phi_{Mi}) - H_K M_S \sin^2(\phi_{Mi} - \phi_K) + M_S H_B \cos(\phi_{Mi} - \phi_{Bi}) - H_{Rot} M_S \sin^2(\phi_H - \phi_{Mi} \pm \phi_{Rot}) \quad (2)$$

In the above equation, H_B is the exchange bias field, observed as a field displacement of the magnetization curve [1]. H_{Rot} is the rotatable anisotropy field and reflects the irreversible transitions of the AF grains. It was introduced by Stiles and McMichael [22] to explain the enhancement of the coercivity and exchange bias field in F/AF system. The average easy directions of these AF grains will always stay close to

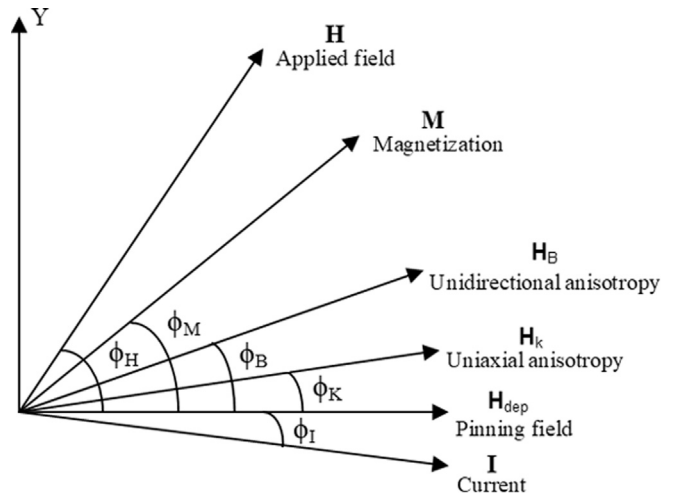


Fig. 2. Axes system showing the fields and angles used in the Eq. (2).

the F magnetization direction [21,23] with a phase lag represented by ϕ_{Rot} .

The routine to calculate AMR curves consists to find the equilibrium magnetization angle ϕ_{Mi} , by numerical minimization of E_i , considering coherent rotation of the magnetization. The $R \times \phi_H$ curves, for fixed H , are calculated by summing the contribution of each grain weighted by a Gaussian probability distribution (P_i) of the ϕ_{Bi} within a standard deviation σ as in Ref. [17]

$$R = R_{90} + \Delta R \sum_i P_i \cos^2(\phi_{Mi} - \phi_I) \quad (3)$$

In the following it is discussed the effects of varying each parameter in the Eqs. (2) and (3). The first case analyzed is that when the anisotropy axes and current direction are all aligned ($\phi_K = \phi_B = \phi_{Rot} = \phi_I = 0$). In this case the angular evolution of the resistance is that shown in the Fig. 3(a). It can be seen that the two minima in the AMR are separated by an angle smaller than 180° and such separation increase until $H = H_S$, when the separation becomes 180° and do not change, even increasing H . The amplitudes of these minima are equal in both sides of the curves and are maxima when $H \sim H_S$.

The second case is that where the measuring current is not aligned to the anisotropy fields ($\phi_K = \phi_B = \phi_{Rot} = 0$, $\phi_I = 5^\circ$). Here, some features observed in the first case are also present. However, an additional one appear, an asymmetry in the valleys amplitude at left and right of $\phi_H = 180^\circ$, as can be seen in the Fig. 3(b). Such asymmetry is proportional to the misalignment between the current and the anisotropies axis, verified by calculations at additional ϕ_I angles but not shown in

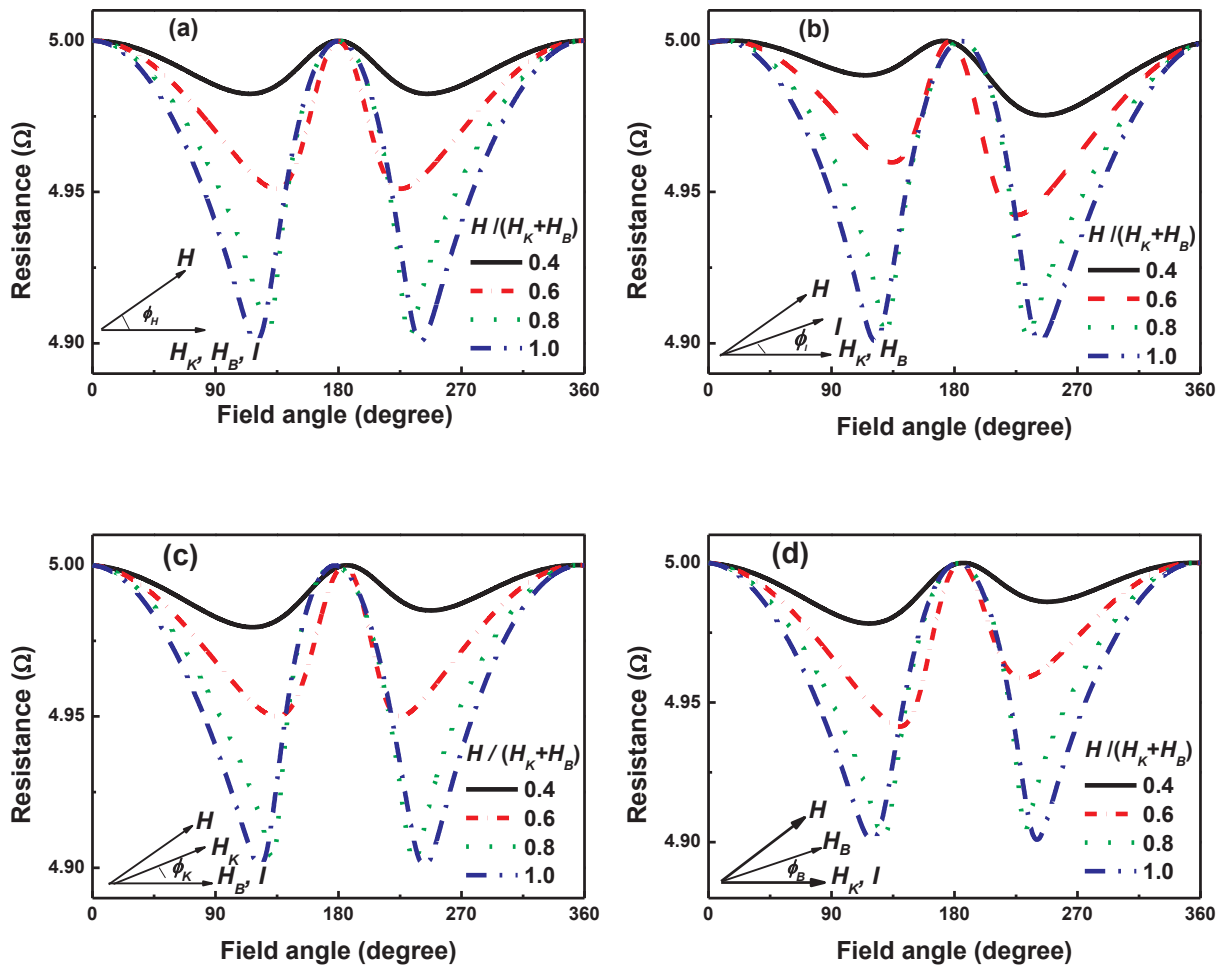


Fig. 3. Calculated AMR curves at different fields. (a) $\phi_K = \phi_B = \phi_{Rot} = \phi_I = 0$, (b) $\phi_K = \phi_B = \phi_{Rot} = 0, \phi_I = 5^\circ$, (c) $\phi_I = \phi_B = \phi_{Rot} = 0, \phi_K = 5^\circ$, (d) $\phi_K = \phi_{Rot} = \phi_I = 0, \phi_B = 5^\circ$.

the figure. Note that the considered misalignment of the current is just 5° .

Next, the case with the uniaxial anisotropy (H_K) not aligned to the other ones ($\phi_K = 5^\circ, \phi_B = \phi_{Rot} = \phi_I = 0$). Here the same features presented in the above described case do appear and are more visible at the lower fields, as can be seen for $H/(H_K + H_B) = 0.4$ in the Fig. 3(c). However, if the bias field angle is misaligned to the others ($\phi_B = 5^\circ, \phi_K = \phi_{Rot} = \phi_I = 0$), the $R \times \phi_H$ evolution cannot be distinguished from the other cases, as seen in the Fig. 3(d), although the effect of ϕ_K is lower to produce the asymmetry when compared to ϕ_I or ϕ_B .

As can be seen from the Fig. 3(b to d), careful must be taken in order to define the current direction, as the angular evolution of AMR measured at different applied fields cannot be distinguished from the anisotropy fields misalignment.

Considering the sample as granular and presenting some anisotropy dispersion, as for example in the bias direction from grain to grain, the effect in the AMR measurements is to reduce resistance level at $\phi_H = 180^\circ$ as can be seen in the Fig. 4(a) which shows calculated AMR curves for three different values of σ . Fig. 4(b) presents the effect on the calculated AMR curves when the H_{Rot} and ϕ_{Rot} is considered in the calculations. For CW and CCW calculated curves the sign of ϕ_{Rot} is inverted and the final effect is to produce the hysteresis.

3. Experimental

Samples with nominal composition: Ta (15 nm)/Ni₈₁Fe₁₉ (50 nm)/

Fe₅₀Mn₅₀(12 nm)/Ta(15 nm) were grown onto glass substrate by magnetron sputtering. All films were deposited with a base pressure of less than 10^{-7} Torr. The argon partial pressure was kept at 1.5 mTorr during the deposition by an Ar flow of 32 SCCM. A pair of permanent magnets produced a field ($H_{dep} \sim 1$ kOe) in the samples' plane in order to define the exchange bias direction during the deposition. No temperature control was made during the samples growth.

The structural character of the samples was checked by X-ray diffraction with Cu K_α radiation, using a diffractometer in Bragg-Brentano geometry ($\theta-2\theta$). The diffractograms indicate an (1 1 1) preferential growth for both the NiFe and FeMn layers.

As stated above, the definition of the direction of the measuring current is crucial in order to differentiate the anisotropies misalignment from that eventually produced by a current misalignment. To avoid this experimental problem, masks (1.5×11 mm²) were used during the films' growth [24] in order to define such direction. Three samples were grown in the same batch and were differentiated by the angle between the long dimension of the samples and the H_{dep} . Fig. 5(a) present the mask scheme used to produce samples with $\varphi = 0^\circ, 45^\circ$ e 90° , named as A, B and C, respectively.

The magnetization measurements were performed in an alternating gradient field magnetometer with an applied magnetic field maximum of 750 Oe at the samples' plane. No training effect was detected on all samples. Fig. 5(b) presents normalized magnetization loop obtained for our samples in two H directions, along (open black circles) and perpendicular (red closed circles) to the deposition field. As expected, the magnetization curves of the samples A, B and C are very similar in

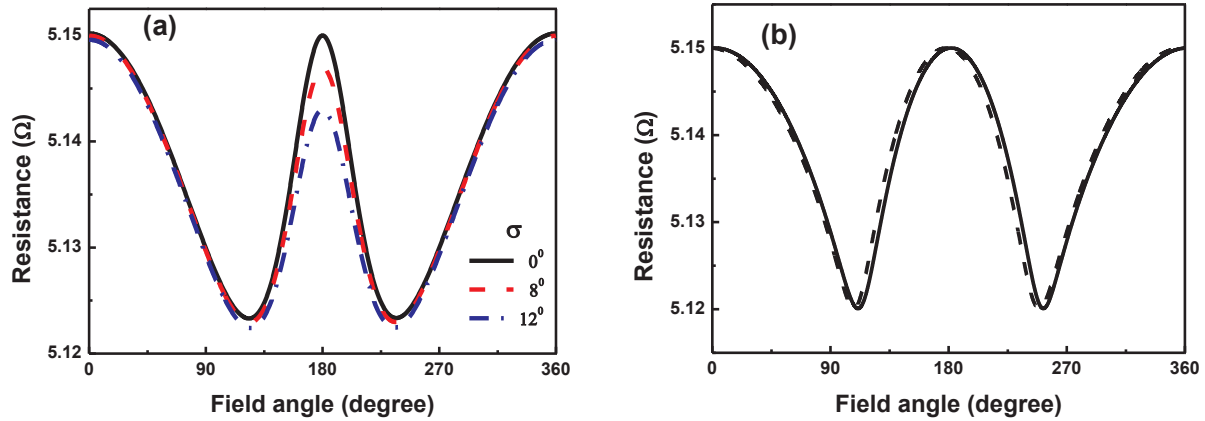


Fig. 4. (a) Calculated AMR curves with the unidirectional anisotropy dispersion σ indicated in the panel. (b) CW (solid line) and CCW (dashed line) AMR curves calculated with $\phi_{Rot} = 10^\circ$.

terms of the coercive (H_C) and bias field. Compared to the others, sample B present a rounded approach to saturation, probably due to demagnetization effects.

The AMR measurements were obtained by means of a standard four-probe configuration and the electrical contacts were made using silver paint. It is worth to note that silver pads were painted in the contacts region, transversally to the longer dimension of the samples, in order to define potential planes and the current direction. A DC current of 4 mA was supplied by a current source and the voltage produced on the sample was measured with a millivoltmeter. In order to change ϕ_H , the sample was set to rotate in a pair of Helmholtz coils by a computer controlled step-motor. ϕ_H is determined by counting the steps from the step-motor.

Before each $R \times \phi_H$ measurement, the samples were submitted to the maximum magnetic field available (~ 280 Oe) along the pinning

field direction then the field was reduced to the measurement one and made to rotate in the magnetic field.

All experimental data were obtained at room temperature.

4. Results and discussion

Fig. 6 presents the field angle dependence of the magnetoresistance in the CW (closed symbols) and CCW (open symbols) measurement directions for samples A, B and C. $\phi_H = 0$ in the Fig. 6 means that the H is applied along the H_{dep} . The measuring fields (H) are shown in the proper panel, ranging from high fields ($H \sim H_K + H_B$) to low ones ($H \sim H_K$).

For H values near and smaller than H_S , ΔR is smaller when compared to the measurements obtained at the higher fields and the angular separation of the minima is also smaller than 180° . In this case the

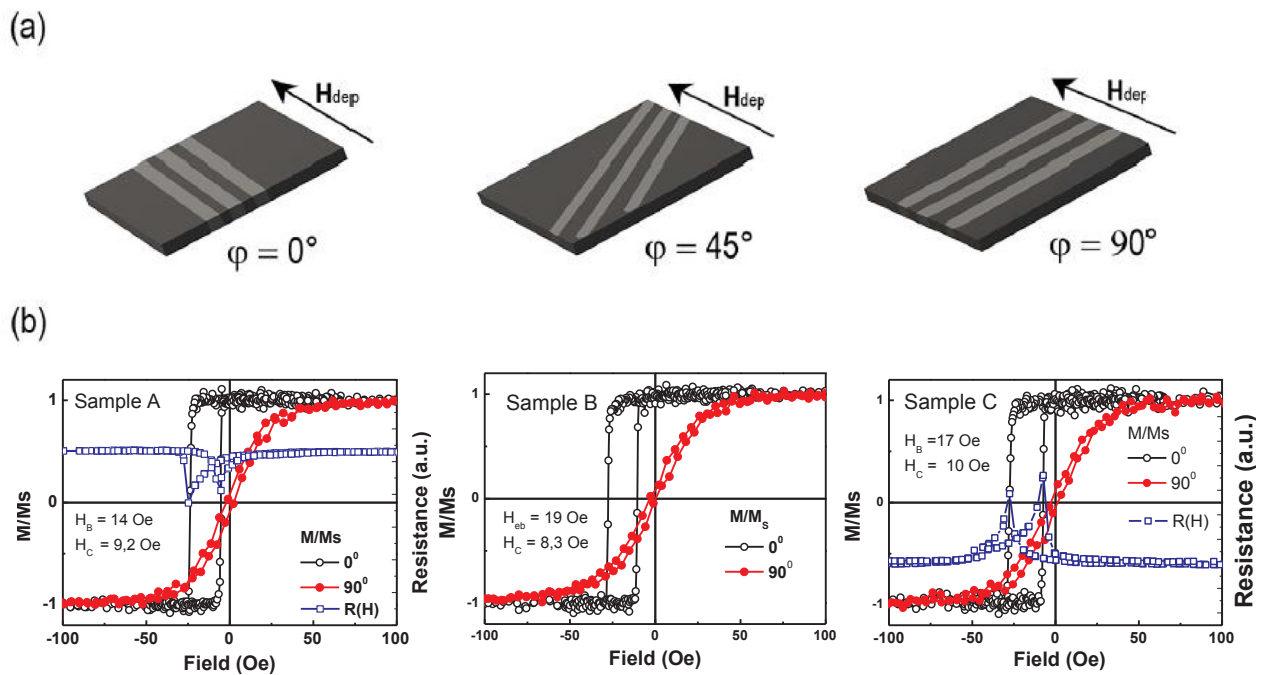


Fig. 5. (a) Samples' scheme showing the orientation between the measuring current (samples' long direction) and the deposition field. (b) Normalized magnetization loop obtained from the samples and measured along (open black circles) and perpendicular (closed red circles) to the direction defined by the deposition field. The blue open squares are the $R \times H$, measured along de pinning direction. (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

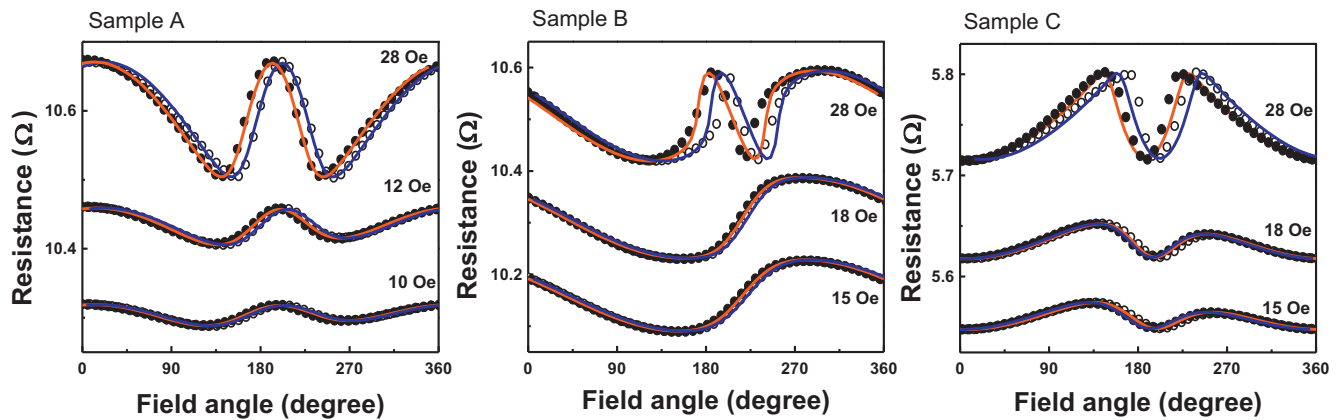


Fig. 6. Symbols present the angular evolution of the samples’ resistance, measured at different applied field (shown next to the proper curve), closed and open circles refers to measurements at the CW and CCW direction, respectively. Solid lines were calculated using the procedure and model discussed in the text. Red (blue) line calculated at the CW (CCW) direction. The curves are vertically shifted in order to properly present the AMR curves. (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

samples are not fully saturated, however, this field range is useful to fit the experimental data, as the calculated curves show visible variations for different anisotropies parameters.

5. AMR adjust protocol

In order to start the fittings, the R_{90} and ΔR values can be extracted directly from the AMR curves measured at $H \gg H_S$ and must be unchanged during the fitting procedure, as well as the ϕ_l value, known from the samples’ geometry.

An estimative of H_B can be obtained from a magnetization curve or even from a $R \times H$ one, as shown in the Fig. 6. Magnetic systems with just uniaxial anisotropy present, $H_K = H_C$ when measured along the easy axis, in view of this, the measured H_C obtained from a $M \times H$ or $R \times H$ curve can be the initial value for H_K .

The first testing parameters are H_{Rot} and ϕ_{Rot} . The combination of these parameters would produce the hysteresis in the $R \times \phi_H$ curves. In order to fit these parameters, a curve measured at a field just below the H_S is the appropriated one. In this field range, the H_B and H_K values do not have much influence on the calculated curves. The considered value of H_{Rot} is that who fits the measured curve at this field. It is worth to note that in order to find the other parameters, which are made by fitting the curves measured at lower fields, H_{Rot} must be reduced proportionally to H with ϕ_{Rot} remaining unchanged.

The next testing parameters are H_K and ϕ_K . The main feature to observe in order to obtain the correct value of H_K is the amplitude of AMR at the measuring field. When the correct H_K value is obtained, the calculated curves at different H have the AMR variations well fitted. If the experimental curves do present different resistance at the left and right minima, ϕ_B must be varied in order to obtain the final fit. In fact, as discussed in the Section II, it is not possible to differentiate the ϕ_K from ϕ_B . In this way, the misalignment between the uniaxial and unidirectional anisotropies was found.

Finally, if the experimental curves present any difference on the resistance measured at zero (or 360°) and 180°, the dispersion in ϕ_B will account for it, by changing the σ parameter.

The solid lines shown in the Fig. 6, superposed to the experimental one, were made (for each sample) with the same set of parameters which are shown in the Table 1.

The samples’ parameters are resumed in the Table 1. It would be expected that these values do not differentiate so much within this set of samples, as they were grown on the same batch with the same deposition parameters. However, as can be seen from the magnetization curves, Fig. 5, they are not identical, having some difference in H_B and H_C . Such difference in the shape of the hysteresis curves are probably

Table 1

Fitting parameters used to calculate the curves shown in the Fig. 6.

	ϕ_l (deg)	H_B (Oe)	H_K (Oe)	H_{Rot} (Oe)	$\phi_B \cdot \phi_K$ (deg)	ϕ_{Rot} (deg)	σ (deg)
Sample A	0	14.5	13.0	13.0	1.4	10	6
Sample B	-45	19.0	12.0	15.0	0	13	6
Sample C	90	17.5	13.5	15.0	2.7	12	6

due to different demagnetizing fields promoted by the use of masks during the samples deposition, used to define the current direction. Nevertheless, the fitted H_B is very near from that of the magnetization loops and the fitted H_K is roughly proportional to the H_C value.

In a polycrystalline sample, as that here discussed, the grains follow certain distribution of size. At a given temperature, the magnetizations of the smaller grains are oriented along the applied field H , thus producing the rotatable anisotropy sensed by the F layer [22,23]. As it is used to model irreversible magnetization processes, the magnetization direction of the F layer and H may differ and it is considered here by ϕ_{Rot} . The larger grains, however, remain pinned roughly along the deposition field direction within a standard deviation described by the σ parameter. These grains are responsible by the unidirectional anisotropy. It is a striking feature that is the value of the dispersion on the unidirectional anisotropy (σ) which is equal to all samples, as expected, as the growing condition of the three samples were the same. On the other hand, the difference on the H_{Rot} and ϕ_{Rot} observed in this set of samples may reflect a slightly difference on the grains size distribution.

It is worth to note that the same routine could be used to calculate the $R \times H$ curves at fixed ϕ_H and to obtain the samples’ parameters. However, the magnetization jumps and domain growth are not contemplated by the coherent rotation of the magnetization.

6. Conclusions

According to the measurements here presented and the paper of Hou and co-workers [17], the anisotropy dispersion (σ in the described model) can account for the reduced resistance in central peak of the curve when compared to the sides’ ones. Also the right and left minima levels difference in the samples’ resistance is due to the misalignment of the anisotropies axis. The careful definition of the current direction, here taken by using long samples with H_{dep} well established, has permitted to confirm such hypothesis. The use of the phenomenological energy model, including Zeeman, uniaxial, unidirectional and rotatable energies and considering coherent rotation of the magnetization has proved to be satisfactory to obtain the parameters governing the EB

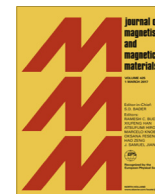
phenomenon.

Acknowledgments

We would like to thanks to Prof. Artur Harres for valuable suggestions and the critical reading the manuscript. This work was partially supported by the Brazilian agencies CNPq, CAPES and FAPERGS.

References

- [1] W.H. Meiklejohn, C.P. Bean, New magnetic anisotropy, *Phys. Rev.* 105 (1957) 904–913.
- [2] K. O'Grady, L.E. Fernandez-Outon, G. Vallejo-Fernandez, A new paradigm for exchange bias in polycrystalline thin films, *J. Magn. Magn. Mater.* 322 (2010) 883–889.
- [3] P. Savian, J. Guzmán, V. Lepalovskij, A. Svalov, G. Kuriyandskaya, A. Asenjo, V. Vas'kovskiy, M. Vazquez, Exchange bias in sputtered FeNi/FeMn systems: effect of short low-temperature heat treatments, *J. Magn. Magn. Mater.* 402 (2016) 49–54.
- [4] S. Sahoo, S. Polisetty, Y. Wang, T. Mukherjee, X. He, S.S. Jaswal, C. Binek, Asymmetric magnetoresistance in an exchange bias Co/CoO bilayers, *J. Phys.:Condens. Matter.* 24 (2012) 096002.
- [5] P.K. Manna, S.M. Yusuf, Two interface effects: exchange bias and magnetic proximity, *Phys. Rep.* 535 (2014) 61–69.
- [6] J. Nógues, I.K. Schuller, Exchange bias, *J. Magn. Magn. Mater.* 192 (1999) 203–232.
- [7] S.H. Chung, A. Hoffmann, M. Grimsditch, Interplay between exchange bias and uniaxial anisotropy in a ferromagnetic/antiferromagnetic exchange-coupled system, *Phys. Rev. B* 71 (2005) 214430.
- [8] Y. Hu, Prediction of reentering and switching ferromagnet/antiferromagnet exchange bias by antiferromagnetic proximity effect, *Nanotechnology* 30 (2019) 025708.
- [9] I.K. Schuller, R. Morales, X. Batlle, U. Nowak, G. Guntherodt, Role of the antiferromagnetic bulk spins in exchange bias, *J. Magn. Magn. Mater.* 416 (2016) 2–9.
- [10] J.K. Kim, S.W. Kim, K.A. Lee, B.K. Kim, J.H. Kim, S.S. Lee, D.G. Hwang, C.G. Kim, C.O. Kim, Determination of rotatable anisotropy in exchange-biased bilayers using anisotropic magnetoresistance technique, *J. Appl. Phys.* 93 (2003) 7714.
- [11] S.P. Pogossian, D. Spenato, D.T. Dekadjevi, J.B. Youssef, Experimental method to determine the misalignment of the easy axis of ferromagnetic and antiferromagnetic films in exchange biased bilayers, *Phys. Rev. B* 73 (2006) 174414.
- [12] E. Jiménez, J. Camarero, J. Sort, J. Nógues, N. Mikuszeit, J.M. García-Martín, A. Hoffmann, B. Dieny, R. Miranda, Emergence of noncollinear anisotropies from interfacial magnetic frustration in exchange-bias systems, *Phys. Rev. B* 80 (2009) 014415.
- [13] J.N. Rigue, F. Beck, A.M.H. de Andrade, P.R. Kern, J.V. Siqueira, M. Carara, Exchange bias in bilayer and multilayer NiFe/IrMn, *IEEE Magn. Lett.* 6 (3800204) (2015) 1–4.
- [14] Y. Hu, X. Wang, N. Jia, Y. Liu, A. Du, Effect of misaligned unidirectional and uniaxial anisotropies on angular dependence of exchange bias, *J. Magn. Magn. Mater.* 374 (2015) 388–393.
- [15] H. Fujiwara, K. Zhang, T. Kai, T. Zhao, Effect of direct exchange coupling between antiferromagnetic grains on magnetic behavior of ferro/antiferromagnetic exchange coupled polycrystalline layer systems, *J. Magn. Magn. Mater.* 235 (2001) 319–328.
- [16] O.E. da Silva, J.V. de Siqueira, P.R. Kern, W.J.S. Garcia, F. Beck, J.N. Rigue, M. Carara, Magnetic anisotropies and rotational hysteresis in Ni₈₁Fe₁₉/Fe₅₀Mn₅₀ films: a study by torque magnetometry and anisotropic magnetoresistance, *J. Magn. Magn. Mater.* 451 (2018) 507–514.
- [17] C. Hou, J. Chen, M.T. Kief, Z. Gao, S. Mao, T. Pokhil, Dispersion of the pinning field direction of a ferromagnetic/antiferromagnetic coupled system, *Appl. Phys. Lett.* 78 (2001) 237–239.
- [18] M. Getzlaff, *Fundamentals of Magnetism*, Springer, Berlin, 2008.
- [19] K. Nishioka, C. Hou, H. Fujiwara, R.D. Metzger, Grain size effect on ferroantiferromagnetic coupling of NiFe/FeMn systems, *J. Appl. Phys.* 80 (1996) 4528–4533.
- [20] H. Fujiwara, C. Hou, M. Sun, H.S. Cho, Effect of exchange coupling of polycrystalline antiferromagnetic layers on the magnetization behavior of soft magnetic layers, *IEEE Trans. Mag.* 35 (1999) 3082–3087.
- [21] T. Zhao, H. Fujiwara, K. Zhang, C. Hou, T. Kai, Enhanced uniaxial anisotropy and two-step magnetization process along the hard axis of polycrystalline NiFe/NiO bilayers, *Phys. Rev. B* 65 (1999) 014431.
- [22] M.D. Stiles, R.D. McMichael, Model for exchange bias in polycrystalline ferromagnet-antiferromagnet bilayers, *Phys. Rev. B* 59 (1999) 3722.
- [23] J. Geshev, L.G. Pereira, J.E. Schmidt, Rotatable anisotropy and coercivity in exchange-bias bilayers, *Phys. Rev. B* 66 (2002) 134432.
- [24] K.U. Barholz, R. Mattheis, MOKE and AMR investigations on exchange bias field strength and direction in ferromagnet/antiferromagnet systems, *IEEE Magn. Lett.* 38 (2002) 2767.



Research articles

Magnetic anisotropies and rotational hysteresis in Ni₈₁Fe₁₉/Fe₅₀Mn₅₀ films: A study by torque magnetometry and anisotropic magnetoresistance

O.E. da Silva^a, J.V. de Siqueira^a, P.R. Kern^a, W.J.S. Garcia^a, F. Beck^b, J.N. Rigue^b, M. Carara^{a,*}^aDepartamento de Física, Universidade Federal de Santa Maria, Santa Maria 97105-900, RS, Brazil^bCoordenadoria Acadêmica, Universidade Federal de Santa Maria – Campus Cachoeira do Sul, Cachoeira do Sul 96506-302, RS, Brazil

ARTICLE INFO

Article history:

Received 10 July 2017

Received in revised form 21 September 2017

Accepted 10 October 2017

Available online 21 November 2017

Keywords:

Exchange bias

Rotational hysteresis

Torque measurements

Anisotropic magnetoresistance

Magnetic anisotropies

ABSTRACT

Exchange bias properties of NiFe/FeMn thin films have been investigated through X-ray diffraction, hysteresis loops, angular measurements of anisotropic magnetoresistance (AMR) and magnetic torque. As first predicted by Meiklejohn and Bean we found a decrease on the bias field as the NiFe layer thickness increases. However such reduction is not as strong as expected and it was attributed to the increase on the number of uncompensated antiferromagnetic spins resulting from the increase on the number of FeMn grains at the interface as the thickness of the NiFe layer is increased. The angular evolution of AMR and the magnetic torque were calculated and compared to the experimental ones using the minimization of the free magnetic energy and finding the magnetization equilibrium angle. The free energy, for each grain of the polycrystalline sample, is composed by the following terms: Zeeman, uniaxial, unidirectional and the rotatable energies. While from the AMR curves we obtain stable anisotropy fields independently on the measuring fields, from the torque curves we obtain increasing values of the uniaxial and rotatable fields, as the measuring field is increased. These results were attributed to the physical origin and sensitivity of the two different techniques. Magnetoresistance is mainly sensitive to the inner portion of the ferromagnetic layer, and the torque brings out information of the whole ferromagnetic layer including the interface of the layers. In this way, we believe that the increase in the uniaxial and rotatable values were due to an increase on the volume of the ferromagnetic layer, near the interfaces, which is made to rotate with the measuring field. Studying the rotational hysteresis by both techniques allows to separately obtain the contributions coming from the inner portion of ferromagnetic layer and from the interface.

© 2017 Published by Elsevier B.V.

1. Introduction

The exchange bias phenomenon (EB) occurs due to the interfacial coupling of a ferromagnet (F) to an antiferromagnet (AF) [1,2]. The main features observed and studied in such systems are the shift of the magnetization curve by an exchange bias field (H_B) [1,9], the increase in the coercive field (H_C), the existence of the training effect, which is especially important for polycrystalline films [3,4] and the rotational hysteresis in the angular magnetic torque measurements [5,6].

The EB has been studied for 60 years due to its important technological drive [see for ex. [7] and references therein]. The phenomenon has already been verified in different systems within

a plentiful diversity of materials, adding difficulties to achieve its total comprehension [2,8–10].

Different models have been developed, aiming to including specific characteristics of the EB in different systems [11,12]. Important hypotheses have been made in different models, for example: the splitting of the interfacial structures in stable and unstable [6,8]; the existence of a rotatable anisotropy associated to the unstable grains [13,14]; domain wall formation at the interfaces [15–17]; angular distribution on the anisotropy of interfacial grains [18]; misalignment between the unidirectional (AF – F coupling) and uniaxial anisotropies (F layer) [19–21].

The main techniques used to the study of EB systems are magnetometry (VSM, vector VSM, MOKE) and ferromagnetic resonance. Other techniques capable to provide additional information on the subject, but used less, are the torque magnetometry and anisotropic magnetoresistance (AMR).

* Corresponding author.

E-mail address: carara@smail.ufsm.br (M. Carara).

In an angular torque curve, the half of the area enclosed between the clockwise (CW) and counterclockwise (CCW) measurements is the energy lost in the cycle, the rotational hysteresis (RH) [1,22,23]. In ferromagnetic samples the RH depends on the degree of magnetic saturation [24]. In coupled F/AF bilayer systems, even in a saturated state, RH depends on the details of the interaction between layers: AF grain structure, coupling strength and others [23,25]. Similarly to AMR, we can define a RH, however the amplitude and field evolutions are different from that observed in a torque curve.

In this work we study the RH from torque and AMR measurements. We fitted a phenomenological model [26,33] to the AMR and the torque curves, extracting the parameters governing the studied magnetic system: the uniaxial, unidirectional and rotatable anisotropy fields, the misalignment between the anisotropy axes and the dispersion on the unidirectional anisotropy axis. The use of these two experimental techniques has shown to be fruitful to the study of exchange bias systems as their physical origin are different, while AMR arises from the spin-orbit interaction and gives the information on the relative orientation between the measuring current and the magnetic moment, the torque magnetometry gives the profile of anisotropic field and rotational hysteresis by mapping the relationship of external field and sample's magnetization. Also, considering that the measurement current is strongly scattered by the interfaces, AMR is mainly sensitive to the inner portion of the F layer and the torque brings out information of the whole F layer. This feature was confirmed by the differences on the rotational hysteresis measured by both techniques.

2. Experimental

The studied set of F/AF bilayer films were deposited onto glass substrate by magnetron sputtering. The nominal composition and thickness (in nm) of the samples were glass/Ta(15)/Ni₈₁Fe₁₉(x)/Fe₅₀Mn₅₀(20)/Ta(15) with $x = 40, 50, 60$ and 70 nm. All samples were grown with a base pressure in the sputtering chamber of less than 10^{-7} Torr. The argon partial pressure was kept at 2.1 mTorr during the deposition by an Ar flow of 32 SCCM. A pair of permanent magnets applied a field ($H \sim 1$ kOe) in the samples' plane in order to define the pinning direction during the deposition. No temperature control was made during the samples growth.

The structural character of the samples was checked via X-ray diffraction with Cu K α radiation, using a diffractometer in Bragg-Brentano geometry (θ - 2θ). The diffractograms indicate an (111) out-of-plane preferential growth for both the Permalloy and FeMn layers.

The magnetization measurements were performed in an Alternating Gradient Field Magnetometer with an applied magnetic field maximum of 350 Oe. After 10 magnetizing cycles, no training effect was detected on all samples.

The in-plane torque curves were obtained using the torque magnetometer described in the Ref. [27]. In order to guarantee the same magnetic state of the samples at the beginning of the measurements, the following procedure was used: (a) the maximum negative field (-240 Oe) was applied along the easy axis of the sample by a pair of Helmholtz coils. (b) The field was reduced to zero and then (c) the positive measuring field (H) was applied and rotated in the clockwise (CW) and counterclockwise (CCW) directions and collected the torque versus field angle, returning to the initial position. This procedure was followed for each field measurement. Unfortunately, due to the torquemeter sensitivity limit, it was not possible to obtain reliable measurements from the sample with 40 nm of Permalloy.

The AMR measurements were obtained by means of a standard four-probe configuration with the in-plane magnetic field angle

applied in a similar procedure used for the torque measurements. The electrical contacts on the samples were made using silver paint. The DC current of 2 mA was supplied by a current source and applied along the samples' easy axis. The voltage produced on the sample was measured with a nanovoltmeter.

3. Results and discussion

3.1. Magnetization measurements

As it can be seen on the Fig. 1(a), the samples present different interfacial F-AF coupling due to the Permalloy thickness and this is more pronounced in the bias field (H_B) than in the coercive field (H_C), inset of the Fig. 1. Also, the saturation field (H_S), measured along the hard axis, decreases linearly with the Permalloy thickness from 130 Oe to 80 Oe.

It can be observed on the easy axis magnetization curves, Fig. 1(a), a rounding shape in the approach to saturation, independent of the sample. This can be an indication of a system with an anisotropy axis not very well defined. The same curves present an asymmetry between the increasing and decreasing field branches of the magnetization loops. The increasing branch has a higher inclination compared to the decreasing one. Also, at the middle of the decreasing branches it can be seen a small change in the inclination, as indicated by the arrows in the Fig. 1(a). While the first feature may be intrinsic to exchange bias systems as described by Camarero et al. [28] which has used the Stoner-Wohlfarth model with the astroid center dislocated by H_B from the origin, the second feature is resultant of a complex interface

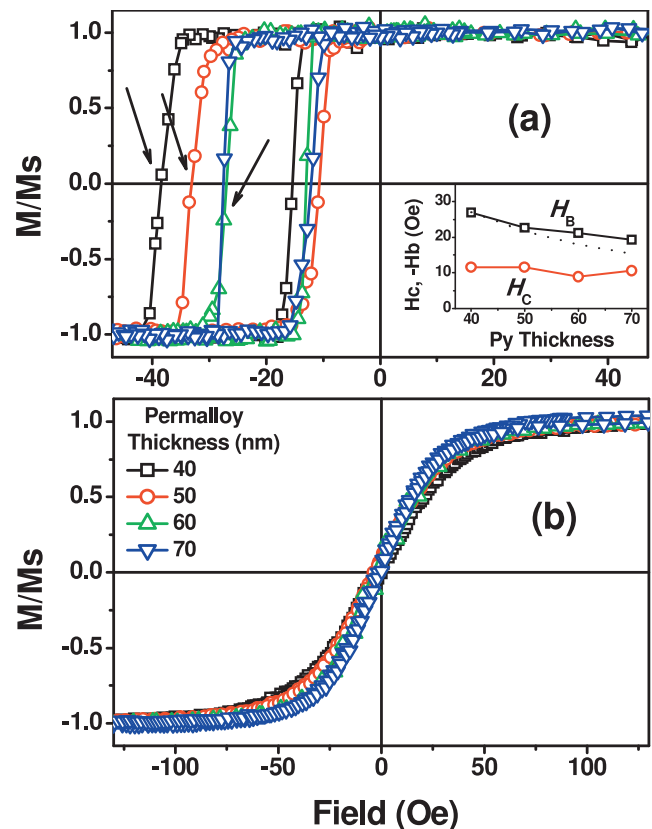


Fig. 1. Normalized magnetization loops measured along the easy (a) and hard axis (b). Symbols in the inset present the evolution with the samples' thickness of the coercive and bias field, measured along the easy axis. The dashed line in the inset presents the usually expected evolution of H_B with the FM layer thickness, meaning $H_B \propto 1/t_F$.

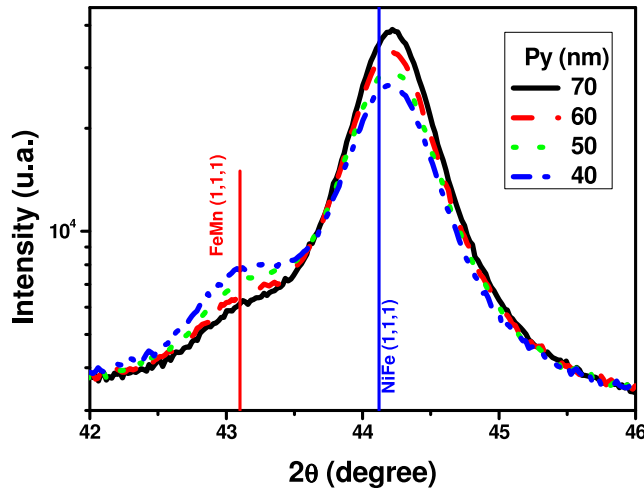


Fig. 2. X-ray diffractograms of the studied samples. Vertical lines indicate the angle position of the (1 1 1) peak of the Permalloy and FeMn layers.

in polycrystalline samples. In order to describe this feature, Spinato et al. [29] have considered a distribution of easy axis of different grains with respect to the magnetization direction of the F layer, which would reflect on the local coupling between the layers in such a way that the mean easy axis of AF grains may deviate from that of the F layer. They have also considered high order term in the exchange energy in order to properly describe the asymmetry on the magnetization curves.

The H_B reduction with F layer thickness is slower than proposed by the original work of Meiklejohn and Bean [1] for samples with very similar interfaces (dashed line in the inset of Fig. 1(a)). It is possible that the interface is getting better for the exchange bias coupling as the Py thickness is increased. A closer look to the X-ray diffraction plot, at the Fig. 2, can help to explain the above mentioned behavior.

The diffractograms of all samples were made at the same experimental conditions, meaning the same samples' size and position, X-ray filament current and measuring time. In view of this, and considering that the Py layer is under the FeMn one and that the peak intensity relative to the FeMn decrease as the Py thickness increases, it can be concluded that the grain sizes of the FeMn layer decrease as the Py thickness increasing.

In order to obtain the exchange coupling between the F (with magnetization M_F) and AF layers, the FeMn must be deposited onto an fcc seed layer, Py in our case. In this way the antiferromagnetic γ -fcc phase of the FeMn is crystallized [30,31]. On the other hand, the interfacial unidirectional energy density, $\Delta\kappa$, is commonly defined by

$$H_B = \frac{\Delta\kappa}{M_F t_F} \quad (1)$$

Assuming that the uncompensated AF spins at the interface give rise to the exchange biasing, the increase on the FeMn number of grains would increase $\Delta\kappa$ as the Py layer thickness is increased, resulting in a H_B evolution with the Py thickness different from the expected.

3.2. Magnetoresistance measurements and fittings

Fig. 3 presents the field angle dependence of the magnetoresistance in the CW and CCW directions measured in the sample with 40 nm of Py. The general behavior of the angular dependence of AMR is similar for the other samples. Zero degree in the Fig. 3 means that the field is applied along the pinning direction. Three

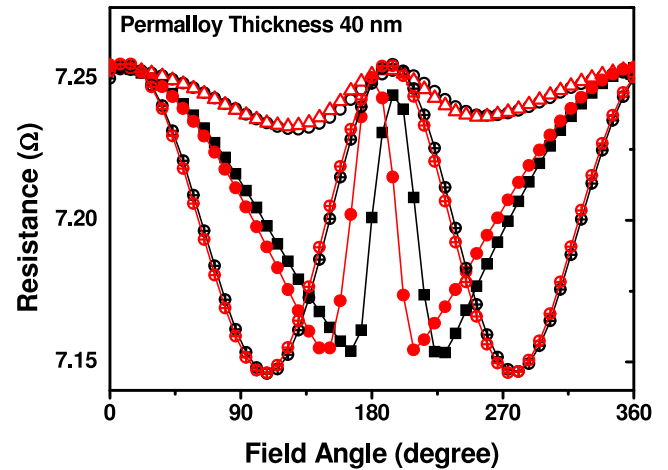


Fig. 3. Examples of angular evolution of the magnetoresistance, measured on the sample with 40 nm of Permalloy. Black and red symbols stands for the clockwise and counterclockwise directions, respectively. Open, closed and cross-open symbols represent measurements made with $H = 15$ Oe, 28 Oe and 250 Oe, respectively.

representative measurement fields were chosen, $H = 15$ Oe, 28 Oe ($\sim H_B$), and 250 Oe. The AMR measurements made with $H = 15$ Oe present the smaller magnetoresistance. This field is just above the uniaxial anisotropy field (H_K), the samples are not saturated and the magnetization direction does not deviate much from its equilibrium position while the external field direction is changed in the sample's plane. When $H = 250$ Oe, the samples are already saturated, the magnetoresistance presents the maximum change with the field angle (ϕ_H) and all curves present the same general shape: a $\cos^2\phi_H$ behavior, with two AMR minima displaced by 180° . For both measuring field range ($H \leq H_K$ and $H > H_S$), the rotational hysteresis is small for all samples.

The angular evolution of the AMR is complex when the measuring field is close to H_B , as can be seen by data represented by the closed symbols in the Fig. 3. The two AMR minima are separated by an angle less than 180° and the rotational hysteresis is clearly seen at the central portion of the curves. The maxima in the AMR values at $\phi_H = 0^\circ$ or 360° are larger than that at 180° . As will be discussed, these features are related to the magnetization process [32] and the dispersion in the anisotropy axis [29,33].

In order to obtain the parameters describing the angular behavior of magnetoresistance curves we have considered a phenomenological model for the samples' magnetic free energy composed by Zeeman, uniaxial, unidirectional and rotatable anisotropies energies. Also, the AF layer was considered as granular [34]. A distribution of easy axis directions of the AF grains around a preferential orientation along the direction of the applied field during the samples' growth [33,35,36] is assumed. The energy density of each grain (E_i) is quantified in the expression (2) with the energy contributions from Zeeman, uniaxial, unidirectional and rotatable, respectively.

$$E_i = HM_S \cos(\varphi_H - \varphi_{Mi}) - H_K M_S \sin^2(\varphi_{Mi} - \varphi_K) + -M_S H_B \times \cos(\varphi_{Mi} - \varphi_{Bi}) - H_{Rot} M_S \sin^2(\varphi_H - \varphi_{Mi} - \varphi_{Rot}) \quad (2)$$

In expression (2) it is considered that the field H is applied in the film's plane at an angle φ_H with a fixed direction in the sample. All anisotropies directions are in the film's plane. φ_K is the uniaxial anisotropy direction and φ_{Bi} is the pinning field direction of the i -th grain. The routine to calculate the AMR curves consists into find the equilibrium magnetization direction φ_{Mi} which is obtained by a numerical minimization of E_i considering coherent rotation of the magnetization. H_{Rot} is the rotatable anisotropy field and reflects

the irreversible transitions of the AF grains. It was introduced by Stiles and McMichael [37] to explain the enhancement of the coercivity and exchange bias field in F/AF system. The average easy directions of these AF grains will always stay close to the F magnetization direction [38] and such phase lag is represented by φ_{Rot} .

The AMR vs. φ_H curves, for each H , are calculated as a sum of the contribution of each grain with a weigh using a Gauss distribution of probability (P_i) of the φ_{Bi} within a standard deviation σ_B as in Ref. [33].

$$R = R_{90} + \Delta R \sum_i P_i \cos^2(\varphi_{Mi} - \varphi_I) \quad (3)$$

where φ_I is the direction of the measuring, R_{90} is the sample's resistance measured at the hard axis and ΔR the magnetoresistance measured with $H = 1$ kOe or $R(\varphi_H = 0, H = 1 \text{ kOe}) - R(\varphi_H = 90^\circ, H = 1 \text{ kOe})$.

The field range used to fit the AMR curves was from 10 Oe to 30 Oe and the fitting parameters were the anisotropy fields (H_K , H_B and H_{Rot}), their directions (φ_K , φ_B and φ_{Rot}) and the standard deviation in the bias direction σ_B . The choice for this field range was because it encloses H_K and H_B . Also within this field range, relatively small changes in the fitting parameters produce visible changes in the calculated AMR curves. For fields higher than 50 Oe the AMR curves behave like a $\cos^2 \varphi_H$ with almost no variation on the calculated curve for very different fitting parameters. During the fitting procedure, for each applied field H , R_{90} and ΔR were kept fixed and equal to that of the measurement for each sample.

The misalignment between φ_K and φ_B is the responsible by the resistance difference at the valleys of the AMR curves. The σ_B parameter is responsible for the reduction on the resistance value at $\varphi_H = 180^\circ$ compared to the values at $\varphi_H = 0^\circ$ or 360° . Despite the AMR measurements being made in both directions, CW and CCW, this is not considered in the fitting. In fact, the fitted curves represent some kind of average of both measuring directions.

Fig. 4 presents the angular evolution of AMR for different samples measured at the field values indicated in the figure. It is worth to note that the fitting parameters for each sample were the same, independent of the measuring field. Fig. 5(a) summarizes the anisotropy field values obtained from the fitting routine. H_K (~ 7 Oe) is almost independent of the Py thickness and H_B presents the same decreasing trend with Py thickness observed in the magnetization loops (inset in the Fig. 1). $H_{Rot} = 0$ for all samples and applied field values. This feature will be discussed further when torque results are presented.

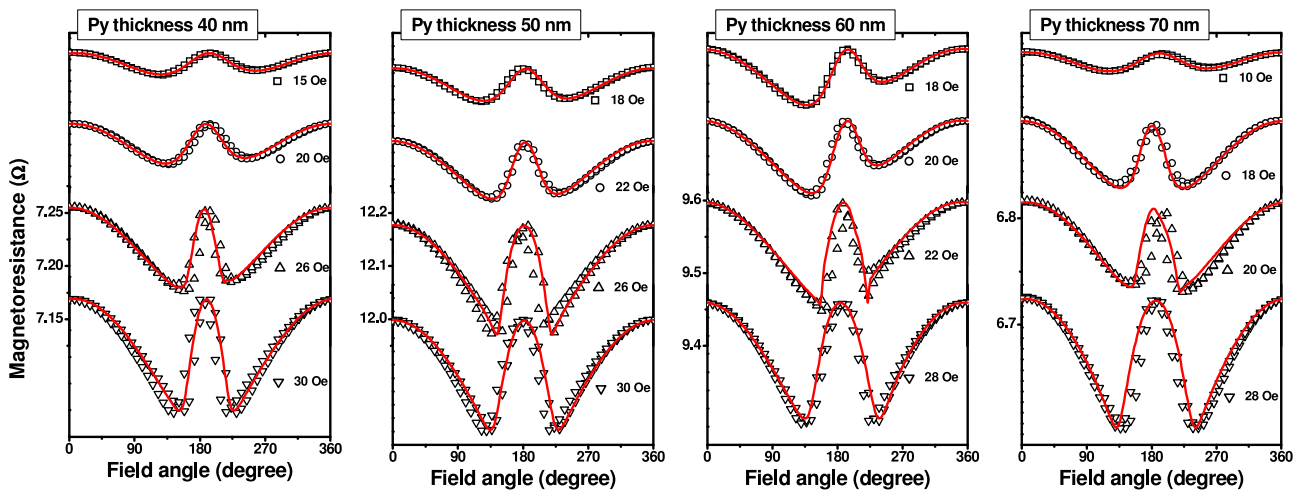


Fig. 4. Symbols are the angular dependence of the AMR measured at the fields and samples as indicated at the panels. Lines represent the fitting to the Eq. (3). The measurement and fitting data were vertically shifted.

Fig. 5(b) presents the misalignment between the anisotropy axis ($\varphi_K - \varphi_B$) and the standard deviation σ_B as function of the Py thickness; while the misalignment presents a tendency to decrease, σ_B increases with the Py thickness. The misalignment is relatively low when compared to that obtained by the fitting of the torque curves as will be seen.

3.3. Torque measurements and fittings

The field angle evolution of the average torque curves are that shown in Fig. 6. At low applied fields (up to 20 Oe), as the magnetization remains oriented along the easy axis, the torque curves present a $\sin \varphi_H$ character. At higher applied field values a twofold symmetry starts to contribute to the torque. The average torque can be described by a sum of $\sin \varphi_H$ and $\sin 2\varphi_H$ terms, coming from the unidirectional and uniaxial anisotropies, respectively. The relative amplitudes of the harmonic terms evolve as the applied field intensity is modified.

From the average torque curves it is possible to obtain the parameters describing the internal energy of the samples H_B , H_K and H_{Rot} , as well as the misalignment between the anisotropies axes.

The torque curves $L(\varphi_H)$, for each H , were calculated using the definition of magnetic torque, meaning the first derivative of the internal energy E_{int} ($=E_{total} - Zeeman$) relative to the magnetization angle

$$L(\varphi_H) = -V \frac{\partial E_{int}}{\partial \varphi_M} \quad (4)$$

where V is the F layer volume.

Different from the case of the AMR, to fit the average torque curves one does **not** need the Gaussian distribution. In fact it was observed that for the relatively low misalignment needed to fit the AMR curves, the influence of the distribution of φ_B in the average torque curves was null. To considering a deviation of φ_{Bi} in opposed directions relative to the main one and then summing it over all grains according to a Gaussian distribution would result in a curve equal to that calculated for a the samples composed of just one grain with φ_B oriented along the main direction.

The effect of the rotatable anisotropy on the torque curves is to add a constant torque in the whole curve. As both parameters H_{Rot} and φ_{Rot} would contribute to this constant torque, we have assumed $\varphi_{Rot} = 45^\circ$ and used H_{rot} as the fitting parameter.

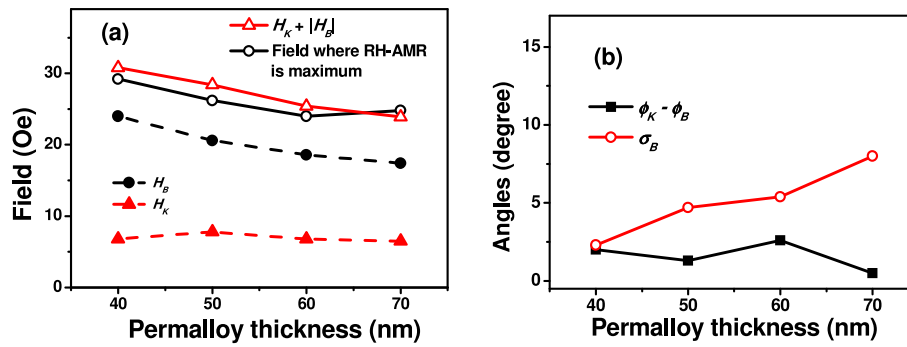


Fig. 5. (a) Solid symbols represent the uniaxial anisotropy and bias fields obtained with the fitting of the AMR data to the expression (2). Open symbols are the sum of the uniaxial and unidirectional anisotropies and the field in which the AMR Rotational Hysteresis is maximum. (b) Closed squares represent the misalignment between the uniaxial and unidirectional anisotropy axis obtained from the fitting to the expression (3) to the AMR data. Open circles represent the standard deviation in the unidirectional anisotropy axis used to fit the AMR data. In both panels, lines are just guide to the eyes.

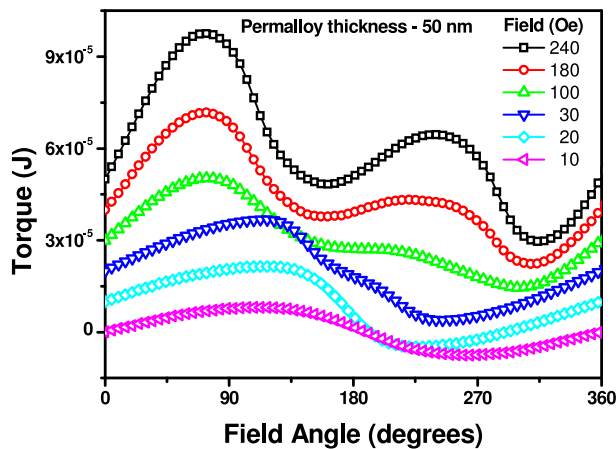


Fig. 6. Angular dependence of the average torque obtained at the applied fields indicated in the figure. Data were vertically shifted to a better view of the angular evolution of the torque measured at different fields.

Fig. 7(a), (b) and (c) present the angular evolution of the average torque curves measured at the indicated fields superposed to the calculated curves. In Fig. 7 (d) to (f) are presented the fitting parameters as a function of the measuring field for each sample.

H_B values (red circles in the Fig. 7(d) to (f)) are almost independent of the measuring field for all the studied samples, close to the ones obtained from magnetization loops and from AMR curves. The other parameters values, however, are very different from the ones obtained from the other techniques.

The misalignment values between the uniaxial and unidirectional anisotropies (blue stars in the Fig. 7(d) and (f)) are higher than the ones obtained from AMR. The obtained angles from torque were around 15° for the samples with 50 nm and 60 nm of Py and 5° for the sample with 70 nm of Py; from AMR, the misalignment angle is not higher than 6° for all samples.

The rotatable anisotropy (green triangles in Fig. 7 (d) to (f)) presents a low value ($H_{Rot} < 5$ Oe) up to $H \sim 100$ Oe then increase linearly, except for the sample with 70 nm Py, whose H_{Rot} value remain near zero independent of the measuring field. Such low values of H_{Rot} at the lower measuring fields can explain why H_{Rot} does not contribute to the AMR curves in the fitted field range ($H < 30$ Oe).

The most intriguing feature is the evolution of the fitted H_K (black squares in the Fig. 7 (d) to (f)). It presents a linear increase with the measuring field. By comparing the measuring field to H_S , Fig. 1, it can be seen that all samples are saturated at $H > 130$ Oe and the region where linear increase in H_K is observed, surpass

H_S . It is worth to note that for the fitting of the torque curve, the whole volume of the F layer was considered. On the other hand, the amplitude of each torque component is determined by the product of the considered volume and the proper anisotropy field. In other words, the resulting increase (and presented in Fig. 7) in the H_K and H_{Rot} with the measuring field may represent, in fact, the increase in the product between the volume and the respective anisotropy field. Finally, the correct interpretation for the evolution of the anisotropy fields with H would be related to an increase of the portion of the F layer which rotates with the applied field, being greater with the increase of H .

3.4. Rotational hysteresis – torque \times AMR measurements

Fig. 8 presents the magnetic torque versus field angle from the samples with 50 nm, 60 nm and 70 nm, measured at the fields indicated, in both directions CW and CCW. Different from the AMR measurement, the rotational hysteresis can be observed on all measurements independently of the sample and the field intensity. The existence of the RH, for measuring fields above the saturation field is an indication that the AF moments are not completely stationary [39] and jump irreversibly. Since these measurements are done in magnetic fields high enough to saturate the F layer, these irreversible processes must occur in the AF layer. In fact, these irreversible processes imply that the coupling must be strong enough in some antiferromagnetic grains to reverse the order far from the interface [37].

Fig. 9 presents a comparison between the RH measured by AMR (RH-AMR) in 9(a) and by torque (RH-Torque) in 9(b). For both techniques and all samples, it can be seen that the RH hysteresis present, at low fields, a rapid increase with the measuring field up to $H = 50$ Oe, near the saturation field for all samples. In the Fig. 9(b) the vertical bar indicates, the measuring field region where the maximum in RH-AMR happens. Also, when comparing the results of both techniques, this initial increase of the RH presents the very same field dependence. However, while the RH-AMR presents a maximum, the RH-Torque continues to grow, at least within the measured field range. The fields where the maximum in RH-AMR occur are plotted in the Fig. 5(a) and, as it can be seen, such values are very close to the sum $H_K + H_B$ or close to H_S .

The field evolution of the RH-AMR curves is similar to that produced by particles with uniaxial anisotropies in a rotating magnetic field. In other words, at low fields the magnetization of the F layer is pinned by the anisotropies and almost immobile as H is rotated around the sample. At high fields the magnetization of the F layer follows the rotating field and in both limits the processes are reversible, producing almost no RH. At the intermediate

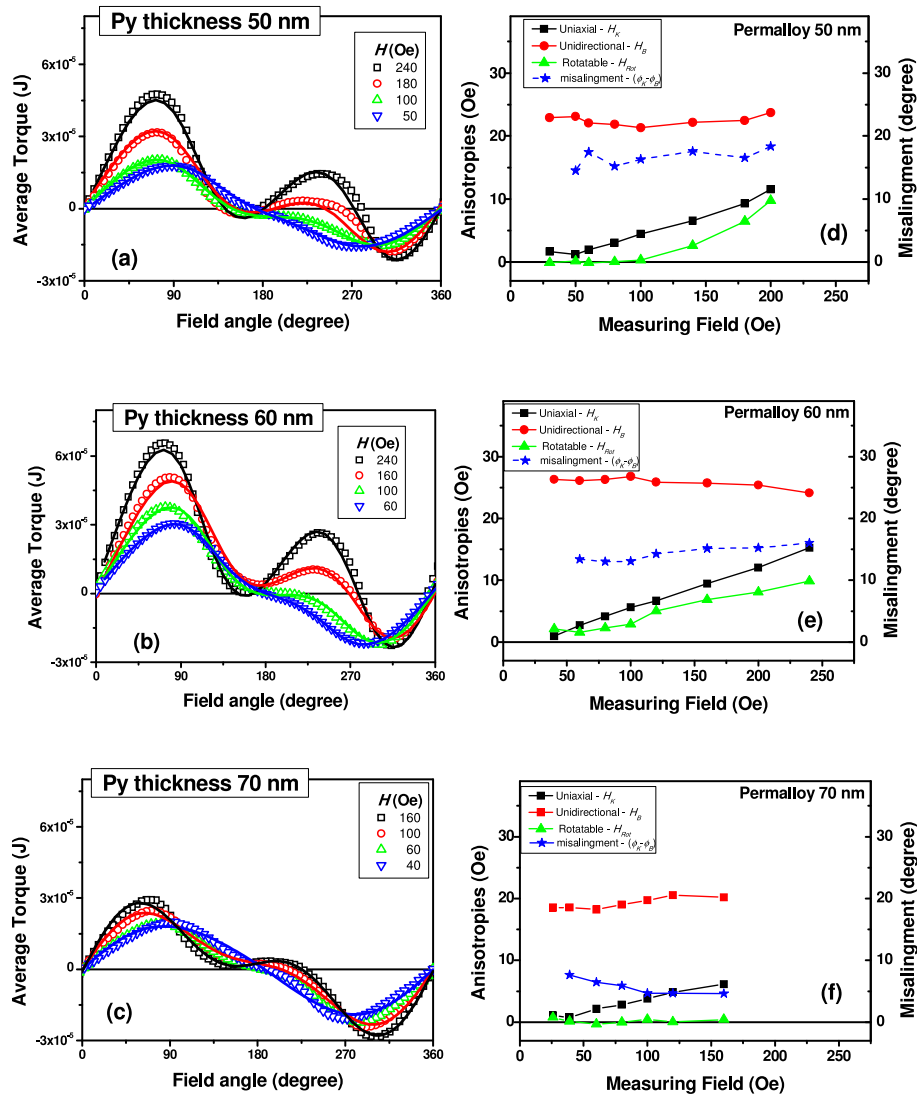


Fig. 7. Left panels (a-c), average torque curves of the studied samples measured at the fields indicated in the proper panels. Solid lines are the fitting to the expression (4). Right panels (d-f), present the parameters used to fit the average torque curves as function of the measuring field.

applied fields the magnetization jumps irreversibly from a position near the anisotropy to that of the rotating field axis, and thus producing the rotational hysteresis [40,41]. Certainly the current passes through all the layers of the samples, however, due to the spin-orbit origin of the AMR and the higher scattering of the current at the interfaces, the main contribution to the changes in the measured resistance comes from the F layer. This fact, reveals that the RH-AMR is mainly associated to the conventional hysteresis which occur in most ferromagnetic materials.

When comparing the difference in the RH field growth regime, observed by both techniques, it becomes clear that different portions of the samples are being tested by the different techniques. When RH is measured by torque magnetometry, both regions contributes to the total torque; the “bulk” of the F layer and its interfaces.

The interface contribution to the torque comes from the unstable grains, which start to rotate as the torque over them is higher enough, such energetic situation may occur at some field or an orientation between the magnetic moment and applied field [18] resulting in a continuous growing of the RH-Torque until stabilization. Unfortunately, at this moment we

are not able to measure torque at higher fields to certificate such stabilization, but this feature is typical of exchange bias systems [18,42]. The same unstable grains contributes to the increase of the twofold symmetry component in the torque versus angle curves, which were interpreted as coming from uniaxial anisotropy (Fig. 8).

These results can explain the differences on H_K , obtained from the different techniques. While the H_K from AMR is stable at different measuring fields, the H_K from torque increases as the measuring field is increased. This H_K evolution means that, as the measuring field is increased and rotated around the sample, a greater portion of the F layer is depined then contributing to the volume of the uniaxial anisotropy component.

The fitting to the AMR and torque curves have shown that it is necessary to consider a misalignment between the uniaxial and unidirectional anisotropy axis, as shown in the Fig. 5(b) and 7(d) to (f). Also the misalignment decreases with F layer thickness increasing and the misalignment observed by torque is higher than that by AMR, which can be explained by the higher sensitivity of AMR to the inner part of the F layer, while the torque results is due to the whole sample, that means “bulk” and interface.

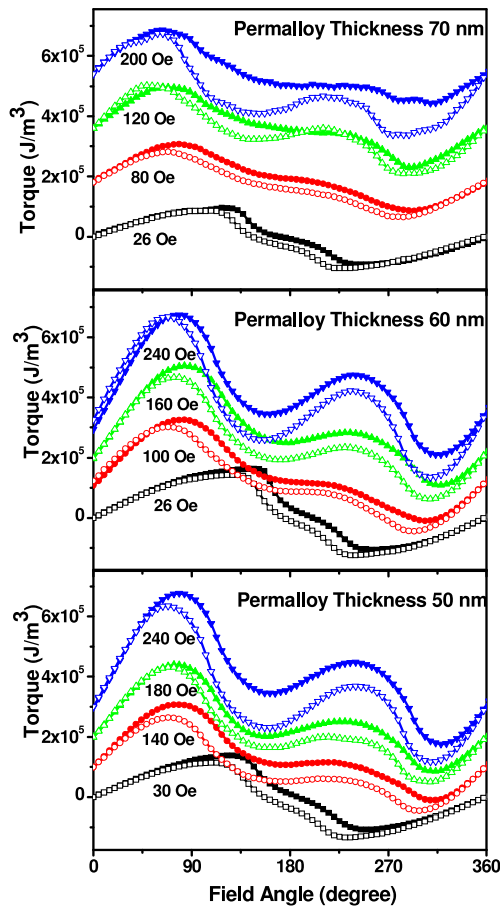


Fig. 8. Angular dependence of the magnetic torque obtained at different applied fields. Closed and open symbols are relative to measurements in the clockwise and counterclockwise directions, respectively. The measured data at the higher fields were vertically shifted.

The Fig. 5(a) presents the values of H_K and H_B as function of the F layer thickness obtained from the AMR curves. It can be seen that while the H_B decreases, H_K it is almost constant upon the F layer thickness increasing. This explain the decrease on the misalignment of the anisotropy directions with the F layer thickness that means, the H_K/H_B ratio increases with the F layer thickness, resulting in anisotropies better aligned as the F layer increase.

On the other hand, the spreading on the unidirectional direction, σ_B , do increase as the F layer thickness is increased. The

increase of the number of grains in the AF layer, as discussed above, explains the increase in σ_B . The spreading on the unidirectional anisotropy axis, σ_B , used to fit the AMR curves, do increase as the F layer thickness is increased. As the net magnetic moment of the AF film at the interface depends on grain-size, also the orientation the coupling can be different from grain to grain in magnitude and direction [21], the increase of the number of grains in the AF layer reflects on the F layer resulting in the increase in σ_B .

4. Conclusions

In this work we have investigated a set of Py/FeMn samples. The main parameters related to the exchange bias effect were evaluated as a function of the ferromagnetic layer thickness using X-ray diffraction, magnetization curves and angular measurements of anisotropic magnetoresistance and magnetic torque.

It was verified a decrease on the bias field as the Py layer thickness increases, but such reduction is not as strong as expected. Such difference was explained in terms of the relative increase on the number of uncompensated antiferromagnetic spins due to the decrease on the grain size of the FeMn layers, as verified by X-ray diffraction measurements.

A phenomenological model [26,33] was fitted to the angular evolution of anisotropic magnetoresistance and magnetic torque. The fitting parameters were the uniaxial, unidirectional and rotatable anisotropic fields and their relative angles related to the sample's axis. Comparing the results from the different techniques it was seen that while the fitting parameters are stable under different measuring fields when obtained from the AMR curves, the H_K and H_{Rot} values, obtained from torque, do increase as the measuring field increases. Such difference was attributed to the sensitivity to the AMR to the "bulk" of the F layer while the torque measurements represent an average over the whole sample. The increase on the fitted H_K and H_{Rot} values were probably due to an increase on the volume of the samples which is made to rotate with the measuring field.

Another result which corroborates the complementarities of AMR and torque is the RH. When the RH is measured by both techniques it is possible to split the contributions coming from the "bulk" of the F layer and from the interface. This conclusion comes from the fact that the initial increase of RH with the measuring field is equal when measured with the different techniques. But for higher fields, $H > H_S$, just the torque still presents RH. This combination of techniques permits a better evaluation of the interface properties as well as a better comprehension of the exchange bias phenomenon.

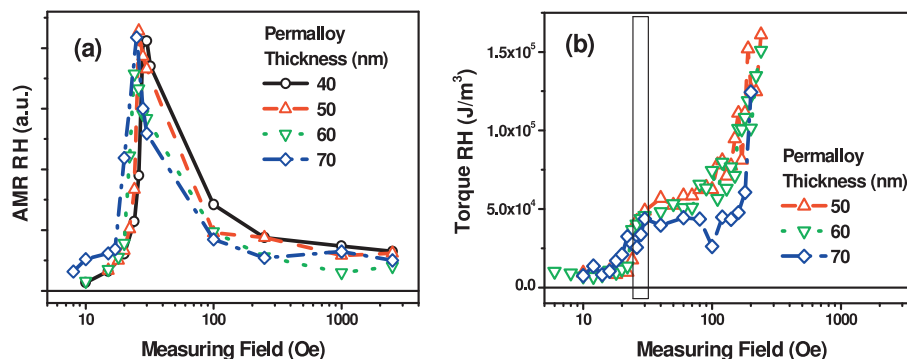


Fig. 9. Rotational hysteresis as function of the measuring field of the studied samples obtained from (a) anisotropic magnetoresistance and (b) from torque measurements. In (b) the vertical bar indicates the field region where the maximum in AMR RH occurs.

Acknowledgments

We would like to thanks to Prof. Lucio S. Dorneles for valuable suggestions and the critical reading the manuscript. This work was partially supported by the Brazilian agencies CNPq, CAPES and FAPERGS.

References

- [1] W.H. Meiklejohn, C.P. Bean, New magnetic anisotropy, *Phys. Rev.* 105 (1957) 904–913.
- [2] K. O'Grady, L.E. Fernandez-Outon, G. Vallejo-Fernandez, A new paradigm for exchange bias in polycrystalline thin films, *J. Magn. Magn. Mater.* 322 (2010) 883–899.
- [3] K. Zhang, T. Zhao, H. Fujiwara, Training effect in ferro/antiferromagnetic exchange coupled systems: Dependence on AF thickness, *J. Appl. Phys.* 91 (2002) 6902.
- [4] S. Brems, K. Temst, C. van Haesendonck, Origin of the training effect and asymmetry of the magnetization in polycrystalline exchange bias systems, *Phys. Rev. Lett.* 99 (2007) 067201.
- [5] K. Zhang, T. Kai, T. Zhao, H. Fujiwara, C. Hou, M.T. Kief, Rotational hysteresis of torque curves in polycrystalline ferro/antiferromagnetic systems, *J. Appl. Phys.* 89 (2001) 7546.
- [6] J. Rigue, F. Beck, P. Kern, J. Siqueira, A.M. de Andrade, M. Carara, Study of exchange bias effect in bilayer and multilayer of NiFe/IrMn, *IEEE Magn. Lett.* 6 (3800204) (2015) 1–4.
- [7] J. Nogués, J. Sort, V. Langlais, V. Skumryev, S. Suriñach, J.S. Muñoz, M.D. Baró, Exchange bias in nanostructures, *Phys. Rep.* 422 (2005) 65.
- [8] P.K. Manna, S.M. Yusuf, Two interface effects: Exchange bias and magnetic proximity, *Phys. Rep.* 535 (2014) 61–99.
- [9] J. Noguees, I. Schuller, Exchange bias, *J. Magn. Magn. Mater.* 192 (1999) 203–232.
- [10] S.H. Chung, A. Hoffmann, M. Grimsditch, Interplay between exchange bias and uniaxial anisotropy in a ferromagnetic_antiferromagnetic exchange-coupled system, *Phys. Rev. B* 71 (2005) 214430.
- [11] I.K. Schuller, R. Moreles, X. Battle, U. Nowak, G. Güntherodt, Role of the antiferromagnetic bulk spins in exchange bias, *J. Magn. Magn. Mater.* 416 (2016) 2–9.
- [12] C.O. Kim, C.G. Kim, D.G. Hwang, J.H. Kim, B.K. Kim, K.A. Lee, S.W. Kim, J.K. Kim, Determination of rotatable anisotropy in exchange-biased bilayers using anisotropic magnetoresistance technique, *J. Appl. Phys.* 93 (10) (2003) 7714.
- [13] H. Ohldag, A. Scholl, F. Nolting, E. Arenholz, S. Maat, A.T. Young, M. Carey, Stöhr, Correlation between Exchange Bias and Pinned Interfacial Spins, *Phys. Rev. Lett.* 91 (2003) 017203.
- [14] J. Geshev, S. Nicolodi, L.G. Pereira, L.C.C.M. Nagamine, J.E. Schmidt, C. Deranlot, F. Petroff, R.L. Rodríguez-Suárez, A. Azevedo, Exchange bias through a Cu interplay in an IrMn/Co system, *Phys. Rev. B* 75 (2007) 214402.
- [15] D. Mauri, H.C. Siegmans, P.S. Bagus, E. Kay, Simple model for thin ferromagnetic films exchange coupled to an antiferromagnetic substrate, *J. Appl. Phys.* 62 (1987) 3047.
- [16] A. Scholl, M. Liberati, E. Arenholtz, H. Ohldag, J. Stöhr, Creation of an antiferromagnetic exchange spring, *Phys. Rev. Lett.* 92 (2004) 247201.
- [17] J.-V. Kim, R.L. Stamps, Hysteresis from antiferromagnet domain-wall processes in exchange biased systems: magnetic defects and thermal effects, *Phys. Rev. B* 71 (2005) 094405.
- [18] H. Fujiwara, K. Zhang, T. Kai, T. Zhao, Effect of direct exchange coupling between antiferromagnetic grains on magnetic behavior of ferro/antiferromagnetic exchange coupled polycrystalline layer systems, *J. Magn. Magn. Mater.* 235 (2001) 319–328.
- [19] S.P. Pogossian, D. Spenato, D.T. Dekadjevi, J. Ben Youssef, Experimental method to determine the misalignment of the easy axis of ferromagnetic and antiferromagnetic films in exchange biased bilayers, *Phys. Rev. B* 73 (2006) 174414.
- [20] E. Jiménez, J. Camarero, J. Sort, J. Nogués, N. Mikuszeit, J.M. García-Martín, A. Hoffmann, B. Dieny, R. Miranda, Emergence of noncollinear anisotropies from interfacial magnetic frustration in exchange-bias systems, *Phys. Rev. B* 80 (2009) 014415.
- [21] O. Hass, R. Schäfer, L. Schultz, K.-U. Barholz, R. Mattheis, Rotational magnetization processes in exchange biased Ni₈₁Fe₁₉/Fe₅₀Mn₅₀ bilayers, *J. Magn. Magn. Mater.* 260 (2003) 380–385.
- [22] M. Tsunoda, M. Takahashi, Field independent rotational hysteresis loss on exchange coupled polycrystalline Ni-Fe/Mn-Ir bilayers, *J. Appl. Phys.* 87 (2000) 6415.
- [23] M. Tsunoda, M. Takahashi, Exchange anisotropy of ferromagnetic/antiferromagnetic bilayers: intrinsic magnetic anisotropy of antiferromagnetic layer and single spin ensemble model, *Magn. Magn. Mater.* 239 (2002) 149–153.
- [24] W.F. Archonhold, H.F. Sandhan, J.E. Thompson, Rotational hysteresis loss in grain-oriented silicon-iron, *British J. Appl. Phys* 11 (1960) 46–49.
- [25] K. Steenbeck, R. Mattheis, Coupling strength distribution in ferromagnetic/antiferromagnetic film systems, *Phys. Rev. B* 75 (2007) 134419.
- [26] F. Radu, A. Westphalen, K. Theis-Bröhl, H. Zabel, “Quantitative description of the azimuthal dependence of the exchange bias effect, *J. Phys.: Condens. Matter* 18 (2006) L29–L36.
- [27] J. Rigue, D. Chrischon, A.M.H. Andrade, M. Carara, A torque magnetometer for thin films applications, *J. Magn. Magn. Mater.* 324 (2012) 1561–1564.
- [28] J. Camarero, J. Sort, A. Hoffmann, J.M. García-Martín, B. Dieny, R. Miranda, J. Nogués, Origin of the asymmetric magnetization reversal behavior in exchange-biased systems: competing anisotropies, *Phys. Rev. Lett.* 95 (2005) 057204.
- [29] D. Spenato, S.P. Pogossian, H. Le Gall, Asymmetric magnetization reversal in exchange-biased polycrystalline F/AF bilayers, *J. Magn. Magn. Mater.* 262 (2003) 294.
- [30] K.T.-Y. Kung, K. Loula, G.L. Gorman, MnFe structure-exchange anisotropy relation in the NiFe/MnFe/NiFe system, *J. Appl. Phys.* 69 (1991) 5634–5636.
- [31] A.E. Berkowitz, K. Takano, Exchange anisotropy—a review, *J. Magn. Magn. Mater.* 200 (1999) 552–570.
- [32] C. Leighton, M. Song, J. Nogués, M.C. Cyrille, I. Schuller, Using magnetoresistance to probe reversal asymmetry in exchange biased bilayers, *J. Appl. Phys.* 88 (2000) 344–347.
- [33] C. Hou, J. Chen, M.T. Kief, Z. Gao, S. Mao, T. Pokhil, Dispersion of the pinning field direction of a ferromagnet/antiferromagnet coupled System, *Appl. Phys. Lett.* 78 (2001) 237–239.
- [34] K. Nishioka, C. Hou, H. Fujiwara, R.D. Metzger, Grain size effect on ferroantiferromagnetic coupling of NiFe/FeMn systems, *J. Appl. Phys.* 80 (1996) 4528–4533.
- [35] H. Fujiwara, C. Hou, M. Sun, H.S. Cho, Effect of exchange coupling of polycrystalline antiferromagnetic layers on the magnetization behavior of soft magnetic layers, *IEEE Trans. Magn.* 35 (1999) 3082–3087.
- [36] T. Zhao, H. Fujiwara, K. Zhang, C. Hou, T. Kai, Enhanced uniaxial anisotropy and two-step magnetization process along the hard axis of polycrystalline NiFe/NiO bilayers, *Phys. Rev. B* 65 (2001) 014431.
- [37] M.D. Stiles, R.D. McMichael, Model for exchange bias in polycrystalline ferromagnet-antiferromagnet bilayers, *Phys. Rev. B* 59 (1999) 3722.
- [38] J. Geshev, L.G. Pereira, J.E. Schmidt, Rotatable anisotropy and coercivity in exchange-bias bilayers, *Phys. Rev. B* 66 (2002) 134432.
- [39] J. Olamit, K. Liu, Rotational hysteresis of the exchange anisotropy direction in Co Fe Mn thin films, *J. Appl. Phys.* 101 (2007) 09E508.
- [40] Y. Yoshida, T.L. Templeton, A.S. Arrot, Model calculations of rotational hysteresis for ferromagnetic particles with competing anisotropies, *J. Appl. Phys.* 75 (1994) 5695–5697.
- [41] S.S. Lehrer, Rotatable Anisotropy in negative magnetostriction Ni-Fe Films, *J. Appl. Phys.* 34 (1963) 1207–1208.
- [42] T.R. Gao, Z. Shi, S.M. Zhou, R. Chantrell, P. Asselin, X.J. Bai, J. Du, Z.Z. Zhang, Exchange bias, training effect, hysteric behavior of angular dependence, and rotational hysteresis loss in NiFe/FeMn bilayer: effect of antiferromagnet layer thickness, *J. Appl. Phys.* 105 (2009) 053913.

ANEXO B – MAPLE

```

> restart:
> with(plots):
  with(linalg):
> Volume := 1·10-4:
> numAngulos := 7: numColunas := 60:
ia do AF; H - Campo aplicado (Oe)
>
> dfiM :=  $\frac{120 \cdot \text{Pi}}{180}$  : fihR :=  $\frac{0 \cdot \text{Pi}}{180}$  :
> fiK :=  $\frac{0 \cdot \text{Pi}}{180}$  : fiB :=  $\frac{2.6 \cdot \text{Pi}}{180}$  : desvio :=  $\frac{8.2 \cdot \text{Pi}}{180}$  : dfiB := 1
  .  $\frac{2 \cdot \text{desvio}}{\text{numAngulos} - 1}$  : fiI :=  $\frac{0 \cdot \text{Pi}}{180}$  : offsetAng :=  $\frac{13.0 \cdot \text{Pi}}{180}$  :
> Ms := 10000 : Hk := 12.2 : Hb := 24.3 : H := 15.0 : Hr := 2.0 :
> for n from 1 by 1 to (2*numAngulos-1) do
  fiBn:=evalf((-2*desvio-dfiB+n*dfiB)):
  unassign('fiH'):
  Zeeman:=(fiH, fiM) -> -Ms*H*cos(fiH-fiM):
  Uniaxial:=(fiM) -> Hk*Ms/2*(sin(fiM-fiK))^2:
  Unidirecional:=(fiM) -> -Hb*Ms*cos(fiM-fiB-fiBn):
  Rotavel:=(fiHR) -> Hr*Ms/2*(sin(fiH-fiM-fiHR))^2:
  Etot:= Zeeman(fiH, fiM)+Uniaxial(fiM)+Unidirecional(fiM)+Rotavel
  (fiHR):
  print(Etot):
  fiBN[n]:=fiBn:
  print("fiBn =",evalf(fiBn*180/Pi));
  dEfiM:=diff(Etot(fiM), fiM)=0:
  fiMeq:=fiBn/8:
  for s from 0 by 1 to numColunas do
    fiH:=s*360/numColunas*Pi/180-offsetAng:
    AngEq:=fsolve({dEfiM}, {fiM=(fiMeq-dfiM)..(fiMeq+dfiM)}):
    fiMeq:=eval(fiM, AngEq):
    fiHm[s]:=evalf((fiH+offsetAng)*180/Pi):
    Angulos[n,s]:=fiMeq:

```


end do:

end do:

$$\begin{aligned} & -1.500000 \cdot 10^5 \cos(fiH - fiM) + 61000.00000 \sin(fiM)^2 - 2.430000 \cdot 10^5 \cos(fiM \\ & \quad - 0.014444444444 \pi + 0.2862339974) + 10000.00000 \cos\left(fiH - fiM + \frac{17}{36} \pi\right)^2 \\ & \quad \text{"fiBn =", -16.40000000} \\ & -1.500000 \cdot 10^5 \cos(fiH - fiM) + 61000.00000 \sin(fiM)^2 - 2.430000 \cdot 10^5 \cos(fiM \\ & \quad - 0.014444444444 \pi + 0.2385283311) + 10000.00000 \cos\left(fiH - fiM + \frac{17}{36} \pi\right)^2 \\ & \quad \text{"fiBn =", -13.66666666} \\ & -1.500000 \cdot 10^5 \cos(fiH - fiM) + 61000.00000 \sin(fiM)^2 - 2.430000 \cdot 10^5 \cos(fiM \\ & \quad - 0.014444444444 \pi + 0.1908226649) + 10000.00000 \cos\left(fiH - fiM + \frac{17}{36} \pi\right)^2 \\ & \quad \text{"fiBn =", -10.93333333} \\ & -1.500000 \cdot 10^5 \cos(fiH - fiM) + 61000.00000 \sin(fiM)^2 - 2.430000 \cdot 10^5 \cos(fiM \\ & \quad - 0.014444444444 \pi + 0.1431169987) + 10000.00000 \cos\left(fiH - fiM + \frac{17}{36} \pi\right)^2 \\ & \quad \text{"fiBn =", -8.200000001} \\ & -1.500000 \cdot 10^5 \cos(fiH - fiM) + 61000.00000 \sin(fiM)^2 - 2.430000 \cdot 10^5 \cos(fiM \\ & \quad - 0.014444444444 \pi + 0.09541133242) + 10000.00000 \cos\left(fiH - fiM + \frac{17}{36} \pi\right)^2 \\ & \quad \text{"fiBn =", -5.466666665} \\ & -1.500000 \cdot 10^5 \cos(fiH - fiM) + 61000.00000 \sin(fiM)^2 - 2.430000 \cdot 10^5 \cos(fiM \\ & \quad - 0.014444444444 \pi + 0.04770566618) + 10000.00000 \cos\left(fiH - fiM + \frac{17}{36} \pi\right)^2 \\ & \quad \text{"fiBn =", -2.733333330} \\ & -1.500000 \cdot 10^5 \cos(fiH - fiM) + 61000.00000 \sin(fiM)^2 - 2.430000 \cdot 10^5 \cos(fiM \\ & \quad - 0.014444444444 \pi + 3.141592654 \cdot 10^{-11}) + 10000.00000 \cos\left(fiH - fiM + \frac{17}{36} \pi\right)^2 \\ & \quad \text{"fiBn =", -1.800000000 \cdot 10^{-9}} \\ & -1.500000 \cdot 10^5 \cos(fiH - fiM) + 61000.00000 \sin(fiM)^2 - 2.430000 \cdot 10^5 \cos(fiM \\ & \quad - 0.014444444444 \pi - 0.04770566621) + 10000.00000 \cos\left(fiH - fiM + \frac{17}{36} \pi\right)^2 \\ & \quad \text{"fiBn =", 2.733333332} \\ & -1.500000 \cdot 10^5 \cos(fiH - fiM) + 61000.00000 \sin(fiM)^2 - 2.430000 \cdot 10^5 \cos(fiM \\ & \quad - 0.014444444444 \pi - 0.09541133249) + 10000.00000 \cos\left(fiH - fiM + \frac{17}{36} \pi\right)^2 \end{aligned}$$

```

"fiBn =", 5.466666669
-1.500000 105 cos(fiH - fiM) + 61000.00000 sin(fiM)2 - 2.430000 105 cos(fiM
  - 0.014444444444 π - 0.1431169988) + 10000.00000 cos(fiH - fiM +  $\frac{17}{36} \pi$ )2
"fiBn =", 8.200000004
-1.500000 105 cos(fiH - fiM) + 61000.00000 sin(fiM)2 - 2.430000 105 cos(fiM
  - 0.014444444444 π - 0.1908226650) + 10000.00000 cos(fiH - fiM +  $\frac{17}{36} \pi$ )2
"fiBn =", 10.933333334
-1.500000 105 cos(fiH - fiM) + 61000.00000 sin(fiM)2 - 2.430000 105 cos(fiM
  - 0.014444444444 π - 0.2385283313) + 10000.00000 cos(fiH - fiM +  $\frac{17}{36} \pi$ )2
"fiBn =", 13.666666667
-1.500000 105 cos(fiH - fiM) + 61000.00000 sin(fiM)2 - 2.430000 105 cos(fiM
  - 0.014444444444 π - 0.2862339976) + 10000.00000 cos(fiH - fiM +  $\frac{17}{36} \pi$ )2
"fiBn =", 16.40000001

```

(1)

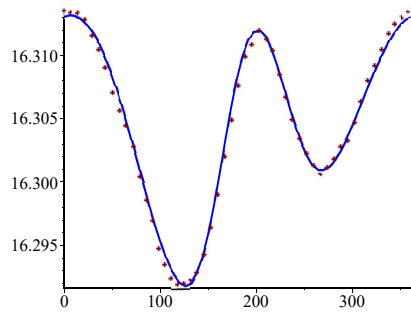
```

> for l from 1 by 1 to (2 · numAngulos - 1) do
  for n from 0 by 1 to numColunas do
    AMR[l, n] := evalf  $\left( \frac{(\cos(\text{evalf}(\text{Angulos}[l, n] - fiI)))^2 \cdot \exp\left(-\frac{(fiBN[l] - fiB)^2}{2 \cdot desvio^2}\right)}{desvio \cdot \text{sqrt}(2 \cdot \text{Pi})} \cdot dfiB \right)$ ;
  end do;
end do;
>
> for n from 0 by 1 to numColunas do
  AMRc[n] := 0;
  for l from 1 by 1 to (2 · numAngulos - 1) do
    AMRc[n] := AMRc[n] + evalf(AMR[l, n]);
  end do;
end do;
>
> Ro := 16.317; dR := 0.092;
> AMRcalc := seq([(fiHm[i]), (Ro - dR + dR * AMRc[i])], i = 0 .. numColunas);
Dados := fopen("1928D_15 Oe __2_0mA_ida.dat", READ, TEXT);
AMRmedido := readdata(Dados, 2);
fclose(Dados);
> Saida := fopen("1928D_15 Oe __2_0mA_calc_ida.dat", WRITE, TEXT);

```

```
for i from 0 by 1 to numColumnas do
  fprintf(Saida, "%e %e %e\n", fHm[i], AMRc[i], (Ro - dR + dR·AMRc[i]))
end do:
fclose(Saida);
```

```
> AMRgraf:=plot([AMRmedido], style=point):AMRcalc:=plot([AMRcalc],
color=blue):display({AMRgraf,AMRcalc});
```



```
>
> print(AMRc[1]);
```

0.9588033146

(2)

```
>
>
>
```