

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

Danian Alexandre Dugato

**EFEITOS INTERFACIAIS NA FORMAÇÃO DE DOMÍNIOS MAGNÉTICOS
E SKYRMIONS EM MULTICAMADAS COM ANISOTROPIA MAGNÉTICA
PERPENDICULAR**

Santa Maria, RS
2021

Danian Alexandre Dugato

**EFEITOS INTERFACIAIS NA FORMAÇÃO DE DOMÍNIOS MAGNÉTICOS E
SKYRMIONS EM MULTICAMADAS COM ANISOTROPIA MAGNÉTICA
PERPENDICULAR**

Tese de Doutorado apresentada ao Programa de Pós-Graduação 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 **Doutor em Física.**

ORIENTADOR: Prof. Thiago José de Almeida Mori

COORIENTADOR: Prof. Lucio Strazzabosco Dorneles

Santa Maria, RS
2021

©2021

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

End. Eletr.: dgt.danian@gmail.com

Dugato, Danian Alexandre
Efeitos interfaciais na formação de domínios magnéticos
e skyrmions em multicamadas com anisotropia magnética
perpendicular / Danian Alexandre Dugato.- 2021.
143 p.; 30 cm

Orientador: Thiago José de Almeida Mori
Coorientador: Lucio Strazzabosco Dorneles
Tese (doutorado) - Universidade Federal de Santa
Maria, Centro de Ciências Naturais e Exatas, Programa de
Pós-Graduação em Física, RS, 2021

1. Efeitos interfaciais; 2. Domínios magnéticos; 3.
Skyrmions; 4. Anisotropia magnética perpendicular; 5.
Interação Dzyaloshinskii-Moriya; I. Mori, Thiago José de
Almeida II. Dorneles, Lucio Strazzabosco 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.

DANIAN ALEXANDRE DUGATO, para os devidos fins e sob as penas que a pesquisa constante neste trabalho de conclusão de curso foi por mim elaborada e que as informações necessárias objeto de em literatura e outras fontes estão devidamente referenciadas. ainda, que este trabalho ou parte dele não foi apresentado mente para obtenção de qualquer outro grau acadêmico, estando le que a inveracidade da presente declaração poderá resultar na da titulação pela Universidade, entre outras consequências

©2021

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

End. Eletr.: dgt.danian@gmail.com

Danian Alexandre Dugato

**EFEITOS INTERFACIAIS NA FORMAÇÃO DE DOMÍNIOS MAGNÉTICOS E
SKYRMIONS EM MULTICAMADAS COM ANISOTROPIA MAGNÉTICA
PERPENDICULAR**

Tese de Doutorado apresentada ao Programa de Pós-Graduação 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 **Doutor em Física.**

Aprovado em 29 de outubro de 2021:

Thiago José de Almeida Mori, Dr. (CNPq)
(Presidente/Orientador)

Lucio Strazzabosco Dorneles, Dr. (UFSM)
(Coorientador)

Juliano Casagrande Denardin, Dr. (USACH)

Clodoaldo Irineu Levartoski de Araujo, Dr. (UFV)

Flávio Garcia, Dr. (CBPF)

Ricardo Barreto da Silva, Dr. (UFSM)

NUP: 23081.097636/2021-41

Prioridade: Normal

Homologação de ata de banca de defesa de pós-graduação

134.332 - Bancas examinadoras: indicação e atuação

COMPONENTE

| Ordem | Descrição | Nome do arquivo |
|-------|---|--------------------------------|
| 1 | Ata de defesa de dissertação/tese (134.332) | Ata defesa Danian aprovado.pdf |

Assinaturas

01/11/2021 11:00:08

RICARDO BARRETO DA SILVA (PROFESSOR DO MAGISTÉRIO SUPERIOR)

02.32.00.00.0.0 - DEPARTAMENTO DE FÍSICA - DFSC

01/11/2021 16:06:11

THIAGO JOSÉ DE ALMEIDA MORI (DOCENTE DE OUTRA IES)

02.32.00.00.0.0 - DEPARTAMENTO DE FÍSICA - DFSC

03/11/2021 10:06:11

JULIANO CASAGRANDE DENARDIN (Pessoa Física)

Usuário Externo (587.***.***_**)

03/11/2021 14:21:57

flavio garcia (Pessoa Física)

Usuário Externo (006.***.***_**)

03/11/2021 14:56:38

Clodoaldo Irineu Levartoski de Araujo (Pessoa Física)

Usuário Externo (252.***.***_**)

Código Verificador: 966348

Código CRC: 3ba56cce

Consulte em: <https://portal.ufsm.br/documentos/publico/autenticacao/assinaturas.html>



AGRADECIMENTOS

- À Universidade Federal de Santa Maria (UFSM), pela oportunidade da matrícula no curso de doutorado em Física.
- Ao Laboratório de Magnetismo e Materiais Magnéticos (LMMM) da UFSM por disponibilizar sua estrutura para a realização da parte inicial desta pesquisa.
- Ao Centro Nacional de Pesquisa em Energia e Materiais (CNPEM) por permitir o desenvolvimento da maior parte desta pesquisa. Em especial ao "grupo PGM" do antigo Laboratório Nacional de Luz Síncrotron (UVX) pela disponibilidade de equipamentos e pela receptividade.
- À Universidade Estadual de Campinas, especialmente ao Laboratório de Materiais e Baixas Temperaturas, por abrir suas portas para a utilização de seus equipamentos. Um especial agradecimento a professora Fanny e ao Marcos.
- Ao Laboratório Nacional de Nanotecnologia, especialmente o Laboratório de Microfabricação, por disponibilizarem equipamentos para a produção das amostras desta tese. Um especial agradecimento ao seu Ângelo, ao Rui e ao Luizão pelo apoio e amizade.
- À CAPES, pela disponibilização de bolsa de pesquisa durante todo o período desta pesquisa. Um agradecimento também ao CNPQ, a FAPERGS e a FAPESP que indiretamente contribuíram para o desenvolvimento deste projeto.
- A todos os coautores dos artigos apresentados nesta tese, pelas contribuições nas discussões, escrita e caracterizações das amostras: Jeovani Brandão, Rafael Seeger, Fanny Béron, Ricardo Barreto, Samuel Flewett, David Shapiro, Julio Criginski, Lucio Dorneles e Thiago Mori.
- À minha banca de qualificação, pelas contribuições no direcionamento deste projeto: professora Fanny Béron (UNICAMP), Paulo Pureur (UFRGS), professor Jonas Maziero (UFSM) e professor Artur Harres (UFSM).
- À minha banca de defesa desta tese, pelas discussões e pelo aceite do convite: professor Juliano Denardin (USASC-Chile), professor Clodoaldo Araujo (UFV), professor Flávio Garcia (CBPF) e professor Ricardo Barreto (UFSM).

- *A todos os professores que fizeram parte da minha formação, em especial aos professores do LMMM: professor Shelp, professor Carara, professor Lucio, professor Artur, professor Juliano e professor Ricardo. Agradeço também aos professores/pesquisadores do CNPEM que de alguma forma contribuíram para o meu aprendizado.*
- *Às secretárias Saionara e Carla Moro, pelo apoio e paciência no desenvolvimento das burocracias necessárias.*
- *Aos meus amigos e colegas do LMMM pelas discussões, conversas e companhia: Angélica, Gazola, Paula, Junara, Caleggari, Diego, Oreci, Rafael, Wagner, Pedro, Dieivase, entre outros.*
- *Aos meus amigos e colegas do CNPEM, pelas discussões, conversas e companhia: Leandro, Vitor, José, Marina, Pedro, Robert, Karine, Isabela, Lucas, Felipe, entre outros.*
- *Ao Jeovani Brandão, pela amizade, apoio e discussões desta tese.*
- *Ao grupo da linha de luz IPE do Sirius, o qual fiz parte.*
- *Um especial agradecimento ao meu orientador Thiago, pela paciência, pelos ensinamentos, pela disponibilidade e principalmente por abrir as portas do CNPEM para realização deste trabalho. Ao meu coorientador professor Lucio, pelas discussões e disponibilidade em sempre ajudar.*
- *Um muito obrigado aos meus familiares, em especial ao meu pai Ademir e a minha mãe Amália, por sempre me incentivarem a estudar.*
- *Por fim, um agradecimento geral a todos que de alguma forma contribuíram para que este trabalho pudesse ser desenvolvido.*

RESUMO

EFEITOS INTERFACIAIS NA FORMAÇÃO DE DOMÍNIOS MAGNÉTICOS E SKYRMIONS EM MULTICAMADAS COM ANISOTROPIA MAGNÉTICA PERPENDICULAR

AUTOR: Danian Alexandre Dugato

ORIENTADOR: Thiago José de Almeida Mori

COORIENTADOR: Lucio Strazzabosco Dorneles

Multicamadas com interfaces ferromagneto/metalo pesado podem apresentar anisotropia magnética perpendicular (AMP), formação de alta densidade de domínios magnéticos e skyrmions. Estas estruturas possuem grande potencial de aplicações em mídias de gravação magnética e portas lógicas. As características dos domínios magnéticos e dos skyrmions depende das propriedades magnéticas, as quais podem ser ajustadas através de modificações estruturais das amostras. As propriedades das multicamadas são dependentes principalmente dos efeitos interfaciais que ocorrem entre o ferromagneto e o metal pesado. Dentre os efeitos mais relevantes estão a AMP, a interação Dzyaloshinskii-Moriya (DM) e o efeito de proximidade magnético (EPM). O objetivo geral desta tese é analisar o papel destes efeitos nas propriedades magnéticas e na formação de domínios magnéticos, buscando melhorias para a obtenção de domínios e skyrmions com potencial de aplicação tecnológica. Através de engenharia de interfaces, ajustamos as amplitudes e sentidos destes efeitos. Desenvolvemos três estudos sistemáticos independentes em multicamadas baseadas em Co e metais pesados como Pt, W e Hf. Observamos que altos valores de interação DM, juntamente com a redução da AMP e da magnetização de saturação (M_s), proporcionam a formação de padrões com alta densidade de domínios magnéticos. Para o caso de multicamadas de espessuras sub-nanométricas, ocorre uma alta polarização magnética do metal pesado por EPM devido à presença de alta desordem interfacial. Esta condição também resulta em uma interação DM não-nula, permitindo a estabilização de skyrmions isolados em campo magnético zero em multicamadas nominalmente simétricas. Utilizando materiais com EPM negativo, conseguimos reduzir a M_s em até 70 % mantendo a AMP e a formação de domínios magnéticos perpendiculares e skyrmions. Concluímos que o ajuste dos efeitos interfaciais é necessário e decisivo para o aperfeiçoamento das propriedades magnéticas e a formação de domínios magnéticos e skyrmions.

Palavras-chave: Efeitos interfaciais. Domínios magnéticos. Skyrmions. Anisotropia magnética perpendicular. Interação Dzyaloshinskii-Moriya. Efeito de proximidade magnético. Multicamadas.

ABSTRACT

INTERFACIAL EFFECTS ON THE FORMATION OF MAGNETIC DOMAINS AND SKYRMIONS IN MULTILAYERS WITH PERPENDICULAR MAGNETIC ANISOTROPY

AUTHOR: Danian Alexandre Dugato

ADVISOR: Thiago José de Almeida Mori

CO-ADVISOR: Lucio Strazzabosco Dorneles

Ferromagnet/heavy metal multilayers can exhibit perpendicular magnetic anisotropy (AMP), high density of magnetic domain, and skyrmions. These structures have great potential for applications in magnetic recording media and logic gates. The characteristics of the magnetic domains and skyrmions depend on the multilayer magnetic properties, which can be adjusted by modifying the sample structure. The properties of multilayers are mainly dependent on the interfacial effects that occur between the ferromagnet and the heavy metal. Among the most relevant effects are AMP, the Dzyaloshinskii-Moriya interaction (DM) and the magnetic proximity effect (EPM). The general objective of this thesis is to analyze the impact of these effects in the magnetic properties and in the magnetic domain formation, seeking improvements to obtain domains and skyrmions with potential for technological application. We adjusted the amplitudes and directions of these effects through interface engineering. We developed three independent systematic studies on multilayers based on Co and heavy metals such as Pt, W and Hf. We observed that high DM interaction values, together with AMP and saturation magnetization (M_s) reduction, provide the formation of patterns with high density of magnetic domains. In the case of sub-nanometric multilayers, there is a high magnetic polarization of the heavy metal by EPM due to the presence of high interfacial disorder. This also yields to a non-zero DM interaction, allowing the stabilization of isolated skyrmions at zero magnetic field in nominally symmetric multilayers. Using negative EPM materials, we were able to reduce M_s by up to 70 %, preserving the AMP and the magnetic domains and skyrmions formation. We conclude that the adjustment of interfacial effects is necessary and decisive for the improvement of magnetic properties and the formation of magnetic domains and skyrmions.

Keywords: Interfacial effects. Magnetic domains. Skyrmions. Perpendicular magnetic anisotropy. Dzyaloshinskii-Moriya interaction. Magnetic proximity effect. Multilayer.

SUMÁRIO

| | | |
|-----------|---|------------|
| 1 | Apresentação | 8 |
| 1.1 | Objetivos | 10 |
| 1.2 | Referencial teórico | 11 |
| 1.2.1 | Ordenamento magnético e formação de domínios magnéticos | 11 |
| 1.2.1.1 | Interação de troca | 12 |
| 1.2.1.2 | Interação spin-órbita | 15 |
| 1.2.1.3 | Interação dipolar magnética | 16 |
| 1.2.1.4 | Domínios magnéticos | 17 |
| 1.2.1.5 | Dinâmica da magnetização | 20 |
| 1.2.2 | Efeitos interfaciais em multicamadas | 22 |
| 1.2.2.1 | Anisotropia magnética perpendicular | 23 |
| 1.2.2.2 | Interação Dzyaloshiinski-Moriya | 27 |
| 1.2.2.2.1 | Skyrmions | 31 |
| 1.2.2.3 | Efeito de proximidade magnético | 34 |
| 1.3 | Proposição | 37 |
| 1.3.1 | Interação DM e efeitos de proximidade negativo em multicamadas assimétricas com Pd | 37 |
| 1.3.2 | Efeito de proximidade magnético e formação de skyrmions em multicamadas simétricas | 38 |
| 1.3.3 | Interação DM e efeito de proximidade negativo em multicamadas assimétricas com Pt | 40 |
| 2 | ARTIGO 1: Magnetic domain size tuning in asymmetric Pd/C_o/W/Pd multilayers with perpendicular magnetic anisotropy | 42 |
| 3 | ARTIGO 2: Magnetic proximity effect at P_t/C_o interfaces and isolated skyrmions bubbles stabilization at zero field | 56 |
| 3.1 | Supplemental material | 80 |
| 4 | ARTIGO 3: Saturation magnetization reduction in asymmetric P_t/C_o/H_f/P_t multilayers: implications for spintronics devices | 84 |
| 5 | Discussão | 99 |
| 6 | Conclusão | 109 |
| 6.1 | Perspectivas | 110 |
| | Referências Bibliográficas | 111 |
| | Apêndice A – Simulações micromagnéticas | 118 |
| | Apêndice B – Técnicas experimentais | 120 |
| | Apêndice C – Artigos | 137 |

1 APRESENTAÇÃO

Sistemas com anisotropia magnética perpendicular (AMP) tem sido amplamente estudados devido ao grande interesse em aplicações tecnológicas, como portas lógicas e mídias de gravação magnética [1, 2]. Existem grandes vantagens em se utilizar sistemas com AMP em mídias de gravação. Os discos rígidos (HDs) são os principais exemplos de mídias de gravação magnética que utilizam AMP. Domínios magnéticos, que são as regiões utilizadas para gravar os bits nos HDs, são muito menores em sistemas com AMP, o que permite reduzir muito a escala dos dispositivos. Domínios convencionais já foram bastantes estudados, mas reduzir ainda mais seus tamanhos é sempre almejado e benéfico. Isto pode ser conseguido modificando as propriedades físicas da amostra.

A AMP pode ser obtida por diferentes arranjos de materiais, inclusive monocamadas de NiFe [3]. Os sistemas que mais têm sido estudados para aplicações são na forma de ligas de ferromagneto (FM) e metal pesado (MP) [4] e multicamadas de FM/MP [5]. Pela praticidade, o arranjo na forma de multicamadas tem se destacado e inúmeros trabalhos com diferentes materiais tem sido desenvolvidos, como Co/Pd, Co/Pt, Co/Au, Co/Ru, Co/Ir entre outros [6, 7, 8, 9]. A estratégia para a multicamada apresentar a AMP é através de um FM de baixa espessura e um material adjacente com alto acoplamento spin-órbita (ASO). A alta interação spin-órbita do MP faz com que a orientação do FM seja a mesma da estrutura. Isto permite usar como material as várias opções de FM e MP existentes na tabela periódica e obter propriedades específicas para cada caso.

Além de AMP, interfaces FM/MP também podem apresentar outros fenômenos como a interação Dzyaloshinskii-Moriya (DM) [10, 11] e o efeito de proximidade magnético (EPM) [12]. Estes fenômenos influenciam na formação dos domínios magnéticos e serão bastante abordados nesta tese. Por serem interfaciais, variar as espessuras dos materiais envolvidos também afeta as propriedades da amostra, assim sendo uma estratégia que pode ser usada para ajusta-las.

Na última década tem sido estudado um novo tipo de textura magnética, o skyrmion. Esta configuração foi primeiramente observada em amostras de MnSi massivas [13] e possui algumas peculiaridades que a tornam muito promissora para reduzir a escala de mídias de gravação magnética. Dentre as suas características estão o reduzido tamanho ($< 1 \mu m$), o formato circular, a possibilidade de ser movimentado utilizando-se baixas densidades de corrente elétrica e a imunidade a defeitos devido à proteção topológica. Estas características podem tornar viável um dispositivo chamado de "racetrack memory"[14]. Este dispositivo é baseado na movimentação de domínios magnéticos com corrente elétrica em nanofios ou nanofitas. A ideia prevê um incremento de até 1000 vezes na capacidade de armazenamento de informações comparado com as atuais mídias de gravação magnéticas. Quando proposta, há mais de 10 anos, a ideia não foi bem sucedida

devido ao uso de domínios magnéticos convencionais, os quais eram aniquilados quando movimentados em pequenas distâncias, principalmente por defeitos da amostra. Com a descoberta do skyrmion, e sua imunidade a defeitos, este dispositivo pode se tornar viável.

Recentemente, foram observados skyrmions em multicamadas com AMP [15]. A proteção topológica dos skyrmions é dada pela sua estrutura quiral, oriunda da interação DM, a qual em multicamadas ocorre na interface FM/MP. Apesar da observação em sistemas simples como multicamadas e em condições como temperatura ambiente, novos desafios apareceram. A estabilização e manipulação ainda não foram obtidas de maneira eficiente para tornar viável dispositivos do tipo "racetrack memory". Um dos principais problemas a ser resolvido é o efeito Hall de skyrmion [16]. Este efeito é análogo ao efeito Magnus da mecânica clássica, e exerce uma força transversal no skyrmion quando este é movimentado. Desta forma, faz com que o skyrmion se movimente para as bordas da pista de deslocamento, muitas vezes sendo aniquilado.

A formação de domínio magnético perpendicular ou skyrmion depende das propriedades magnéticas e estruturais da amostra. Dentre as principais estão a AMP, magnetização de saturação (M_s), a constante de rigidez de troca (A_{ex}) e a interação DM. Além disso, o tipo de parede de domínio (como Néel ou Bloch, por exemplo), a quiralidade e o tamanho dos domínios magnéticos também depende destas propriedades.

A interação DM ocorre com sinal oposto na interface MP/FM em relação à interface FM/MP, assim, em um sistema idealmente simétrico é cancelada. Sistemas simétricos comumente tem um valor baixo de interação DM, que advém de uma sutil diferença estrutural entre a interface superior e a inferior [17]. Esta interação é a maior responsável pela estabilização de domínios quirais, logo, ajustar a sua amplitude tem sido uma das chaves para a obtenção de skyrmions, por exemplo. A principal estratégia encontrada para modificar a interação DM é criando sistemas não simétricos, ou seja, o MP da interface superior não é o mesmo que o da interface inferior. Arranjos como Pt/Co/Ir, Pt/Co/W, Pt/Co/Ta tem sido desenvolvidos [18, 19, 20]. Ainda, uma outra estratégia para ajustar as interações magnéticas é inserir finas camadas de um novo MP em sistemas nominalmente simétricos como, por exemplo, Pt/Co/Ir/Pt, Pd/Co/Os/Pd e Ru/Co/W/Ru [21, 22, 23]. Esta configuração permite escolher um sistema com domínios magnéticos conhecidos, mas que a amostra tem uma baixa interação DM, e incrementar a interação DM tornando o sistema levemente assimétrico.

Em recente trabalho de minha co-autoria, conseguimos estabilizar skyrmions magnéticos em multicamadas simétricas de Pd/Co/Pd em temperatura ambiente e sem campo magnético externo [24]. Neste trabalho, propomos um diagrama de fases para a formação de domínios magnéticos em função de algumas propriedades das amostras, como a constante de anisotropia, a magnetização de saturação e a interação DM. Podemos observar na Fig. 1.1 que variando os valores destas interações obtemos três diferentes configurações magnéticas, um estado misto, estado com skyrmions e um estado de monodomínio.

Isto mostra que ajustando as propriedades podemos obter diferentes estados magnéticos, domínios convencionais de baixo tamanho e até mesmo skyrmions.

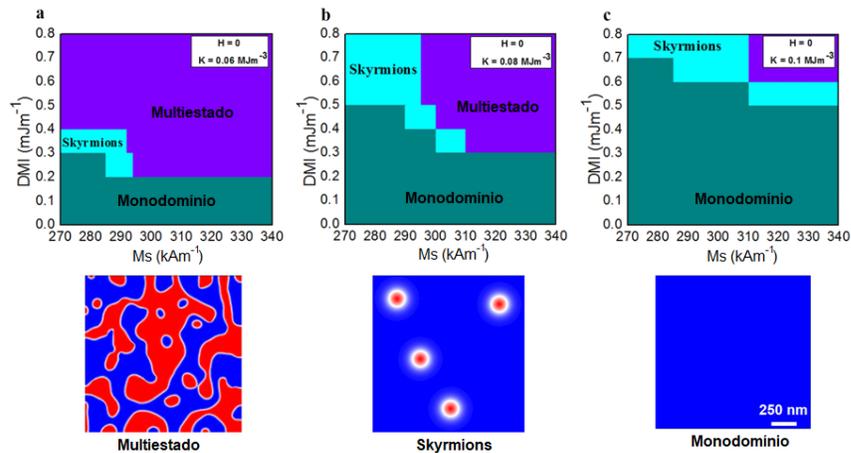


Figura 1.1 – Diagrama de fases (simulado) considerando as propriedades K , M_s e interação DM. a) K fixa em $0,06 \text{ MJ}^{-3}$. b) K fixa em $0,08 \text{ MJ}^{-3}$. c) K fixa em $0,1 \text{ MJ}^{-3}$. Adaptado de [24].

Ao modificar os materiais na interface do FM também alteramos o efeito de proximidade magnético, que é um momento induzido nos MP por proximidade com um FM. Este efeito é pouco estudado, pela baixa influência em sistemas volumétricos, ou pela demanda de técnicas seletivas na sua análise mais criteriosa. Em sistemas de multicamadas ultrafinas, que é o caso deste estudo, este efeito pode modificar significativamente as propriedades magnéticas das amostras, e precisa ser considerado. Nesta tese trabalhamos com 4 materiais que apresentam EPM, o Pd, a Pt, o W e o Hf. Os dois primeiros apresentam EPM positivo e os dois últimos negativo [12]. O EPM negativo pode reduzir principalmente a magnetização de saturação da amostra, o que pode favorecer a velocidade de propagação de paredes de domínio [25] e a minimização do efeito Hall de skyrmion [26, 27], por exemplo. Realizando variações nas espessuras dos materiais em multicamadas, o EPM também pode ser ajustado.

1.1 OBJETIVOS

O objetivo geral desta tese é analisar o papel da anisotropia magnética perpendicular, interação Dzyaloshinskii-Moriya, e efeito de proximidade magnético (os quais são efeitos interfaciais) nas propriedades magnéticas e na formação de domínios magnéticos em multicamadas, buscando melhorias para a obtenção de skyrmions com potencial de aplicação em tecnologias de memória magnéticas.

Objetivos específicos

- Alterar a formação de domínios através da adição sistemática de interação Dzyaloshinskii-Moriya e da diminuição da magnetização de saturação.
- Compreender o papel do efeito de proximidade magnético na Pt para a formação de skyrmions sem campo magnético externo em multicamadas simétricas.
- Analisar a influência do aditivo de interação Dzyaloshinskii-Moriya e efeito de proximidade magnético negativo nas propriedades magnéticas e na formação de domínios magnéticos, explorando a redução da magnetização de saturação e da anisotropia.

Os objetivos específicos são buscados através dos estudos independentes que são apresentados, em formato de artigos, nos capítulos 2, 3 e 4. No capítulo 5 é discutida a correlação entre os três trabalhos apresentados. Abordamos a influência da interação DM na formação dos domínios magnéticos, a influência do EPM nas propriedades magnéticas, o impacto da AMP na formação de domínios magnéticos e os aspectos da interação DM e M_s na dinâmica de domínios magnéticos. Detalhes sobre simulações micromagnéticas encontram-se no apêndice A, enquanto informações detalhadas sobre as técnicas experimentais são descritas no apêndice B.

1.2 REFERENCIAL TEÓRICO

Neste capítulo, apresentamos os principais conceitos físicos necessários para o entendimento desta tese. Inicialmente, são apresentadas a origem do ferromagnetismo, interações magnéticas e a formação de domínios magnéticos. Na sequência, apresentamos três tópicos específicos sobre os efeitos interfaciais presentes nas multicamadas aqui estudadas: anisotropia magnética perpendicular, interação Dzyaloshinskii-Moriya e efeito de proximidade magnético.

1.2.1 Ordenamento magnético e formação de domínios magnéticos

Os materiais da natureza podem apresentar diferentes ordenamentos magnéticos. Dentre eles o diamagnético, o paramagnético, o antiferromagnético, o ferrimagnético e o ferromagnético. Os materiais diamagnéticos são aqueles que respondem a campos magnéticos com magnetização induzida oposta ao sentido do campo magnético aplicado. Os materiais paramagnéticos tem seus momentos de dipolos magnéticos atômicos alinhados

paralelamente a um campo magnético externo, mas o ordenamento é perdido quando o campo é retirado. Materiais antiferromagnéticos são os que apresentam momentos magnéticos alinhados antiparalelamente, como consequência o momento total é zero. Os materiais ferrimagnéticos são similares aos antiferromagnéticos, porém os momentos alinhados antiparalelamente possuem amplitudes diferentes, apresentando assim um momento líquido não nulo. Finalmente, o ordenamento ferromagnético apresenta alinhamento paralelo que é mantido mesmo na ausência de campo magnético externo.

Sistemas ferromagnéticos (FM) são caracterizados por um alinhamento paralelo espontâneo dos momentos magnéticos atômicos. A Fig. 1.2 (esquerda) representa esta orientação. A ordem magnética é dependente da temperatura, e a transição entre as ordens ferromagnética e paramagnética é mediada por uma temperatura crítica (T_c), onde a magnetização é zero. A temperatura crítica também é conhecida como temperatura de Curie e é uma propriedade específica de cada material. A Fig. 1.2 (direita) mostra a dependência do ordenamento ferromagnético em função da temperatura, representado pelo inverso da susceptibilidade magnética (χ^{-1}). O cobalto, por exemplo, deixa de ser ferromagnético em temperaturas superiores a 1127°C . A perda do ordenamento é devido ao alto grau de agitação térmica dos átomos quando estão em temperaturas elevadas. Em temperaturas acima da T_c , a evolução da magnetização é linear com o campo magnético, como mostra a Fig. 1.2 (direita).

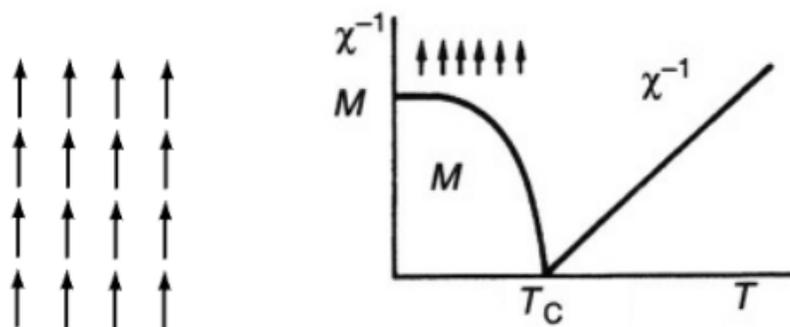


Figura 1.2 – Ilustração da orientação dos spins na ordem ferromagnética (esquerda). Dependência da ordem magnética com a temperatura (direita). Adaptado de [28].

O ordenamento ferromagnético é originado pela interação de troca direta, a qual faz que com que spins vizinhos fiquem alinhados paralelamente.

1.2.1.1 Interação de troca

A energia de troca, que determina o ordenamento magnético, foi proposta por Heisenberg em 1928 [29]. Esta interação ocorre entre elétrons que estejam relativamente

próximos, logo, é uma interação de curto alcance. A interação é descrita pelo Hamiltoniano de Heisemberg [29]:

$$H = -2J_{ij}\vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2, \quad (1.1)$$

onde J_{ij} é a integral de troca e \vec{S}_1 e \vec{S}_2 são dois spins vizinhos. Este Hamiltoniano permite obter o custo energético de uma determinada configuração de spins.

A interação de troca é um efeito puramente quântico e ocorre quando as funções de onda dos elétrons se sobrepõem devido a proximidade. É uma consequência do princípio de exclusão de Pauli, o qual diz que dois férmions (partícula com spin semi-inteiro) idênticos não podem ocupar o mesmo estado quântico simultaneamente [30]. Esta interação liga a interação spin-spin com a interação Coulombiana entre duas partículas [31].

A integral de troca é definida pela diferença de energia entre os estados singleto (estado com spin total zero) e tripleto (estado com spin total 1) [32] :

$$J = \frac{E_S - E_T}{2}, \quad (1.2)$$

sendo E_S energia do estado singleto e E_T a energia no estado tripleto, as quais são obtidas por [32]:

$$E_S = \langle \Psi_S^* | H | \Psi_S \rangle = \int \Psi_S^* H \Psi_S dr_1 dr_2 \quad (1.3)$$

e

$$E_T = \langle \Psi_T^* | H | \Psi_T \rangle = \int \Psi_T^* H \Psi_T dr_1 dr_2 \quad (1.4)$$

onde Ψ_S e Ψ_T são as funções de onda do estado singleto e estado tripleto, respectivamente.

O sinal da integral de troca define se o material tem ordenamento ferromagnético ou antiferromagnético. Para $J > 0$ temos $E_S > E_T$, que favorece o estado tripleto e o ordenamento ferromagnético. Quando $J < 0$ temos $E_S < E_T$, o que favorece o estado singleto e a orientação antiparalela entre os spins (ordenamento antiferromagnético). No caso de $J = 0$ temos um material paramagnético.

A interação de troca é simétrica, ou seja, uma permutação entre os spins não afeta os valores nem o sentido da interação. A Fig. 1.3 apresenta a origem da interação de troca e o sinal da integral de troca conforme a orientação dos spins. O caso da direita caracteriza um material ferromagnético e o caso da esquerda um material antiferromagnético.

A interação é diferente para cada material, a Fig. 1.4 representa qualitativamente a interação de troca em função de alguns materiais 3d. O principal fator que leva a diferentes valores desta interação são a distância interatômica e a o diâmetro orbital.

Notamos que a transição AFM para FM ocorre quando a razão D/d ultrapassa 1,5.

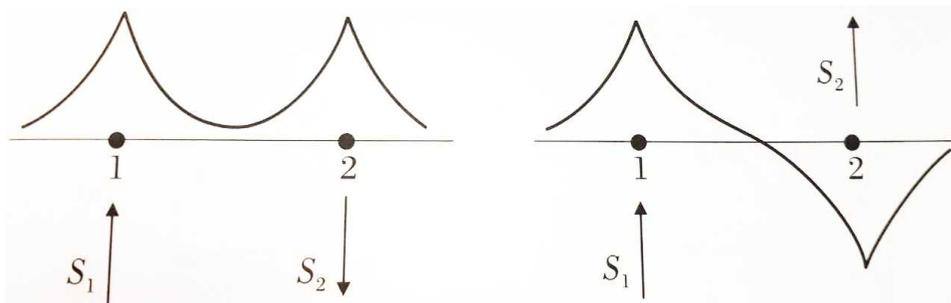


Figura 1.3 – Ilustração da interação de troca. A esquerda corresponde a uma orientação de spins anti-paralelos, onde a integral de troca é máxima. A direita a orientação de spins é paralela e a integral de troca é mínima. Adaptado de [33].

Como exemplo de AFM temos o Mn, que possui diâmetro orbital de 0,171 nm e separação atômica de 0,224 nm, resultando em uma razão de 1,31. Como exemplo de FM temos o Co que possui diâmetro orbital de 0,138 nm e separação atômica de 0,250 nm, resultando em uma razão de 1,81 [34].

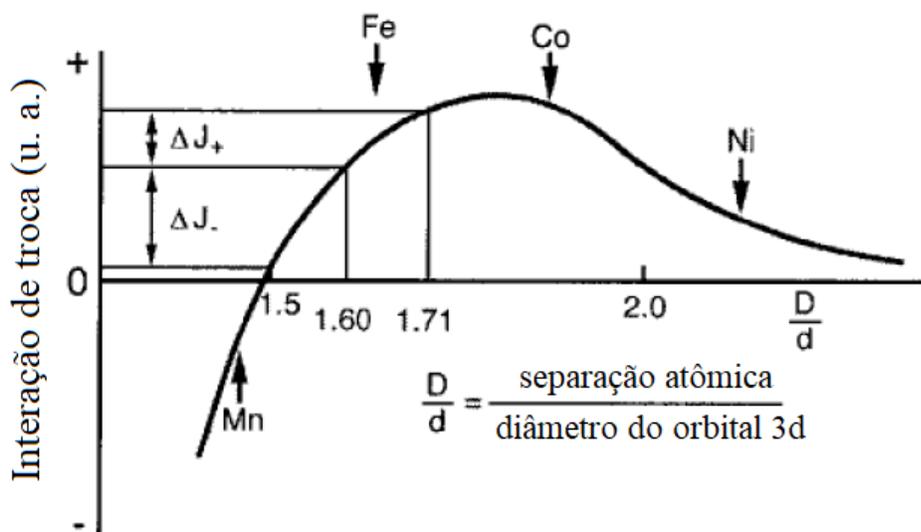


Figura 1.4 – Interação de troca para diferentes materiais 3d. Esta é a chamada curva de Slater-Bethe. Adaptado de [34].

A interação de troca tem relação com outra quantidade característica de cada material, a constante de rigidez de troca (A_{ex}), a qual é obtida do modelo de Heisemberg e expressa por [31]:

$$A_{ex} = \frac{nJ(S)^2}{a} \quad (1.5)$$

onde n é o número de vizinhos mais próximos e a é o parâmetro de rede interatômico. A A_{ex} pode ser obtida experimentalmente através da excitação de ondas de spin pela técnica de espalhamento de luz Brillouin (BLS) [35] ou através de modelagem em curvas de magnetização [36]. A Fig. 1.5 apresenta os valores de A_{ex} para filmes finos de Co e a

dependência com a espessura do material. É possível observar uma variação em função da espessura do Co, principalmente para filmes ultra finos. Para filmes sub-nanométricos é possível observar uma variação de 3 vezes da A_{ex} em função da espessura de Co, como apresentado na Fig. 1.5 (direita).

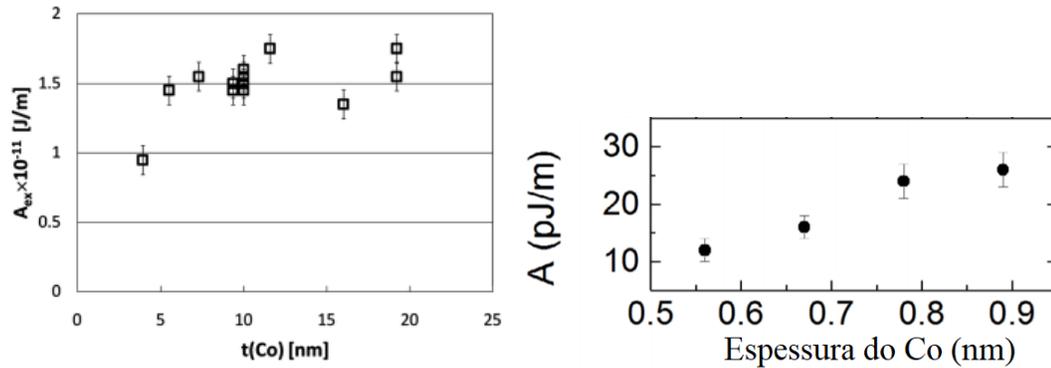


Figura 1.5 – Valores da constante de troca para Co de diferentes espessuras. Adaptado de [36, 37].

1.2.1.2 Interação spin-órbita

O momento magnético total de um átomo é composto pelas contribuições de spin e orbital. O spin é uma propriedade intrínseca do elétron e confere um valor específico para o magnetismo da amostra. A contribuição orbital advém do movimento do elétron em torno do núcleo. Sendo assim, o momento total é dado pelo somatório:

$$\vec{\mu}_{total} = \vec{\mu}_{spin} + \vec{\mu}_{orbital} \quad (1.6)$$

As componentes de momento magnético não são isoladas, os momentos magnéticos de spin e orbital interagem e o quão forte é esta interação é quantificado pela interação spin-órbita, ou acoplamento spin-órbita (ASO). A interação spin-órbita (SO) é descrita pelo seguinte Hamiltoniano [32]:

$$H_{SO} = \frac{Ze^2}{2m_e^2c^2r^3} \vec{S} \cdot \vec{L}, \quad (1.7)$$

onde e é a carga do elétron, m_e é a massa do elétron, c é a velocidade da luz, Z é o número atômico, \vec{S} é o momento de spin, \vec{L} é o momento orbital, r é o raio orbital do elétron. O raio orbital é inversamente proporcional ao número atômico, ou seja, $r^{-3} \propto Z^3$. Desta forma, o acoplamento SO escala com Z^4 , o que justifica a alta amplitude nos MP.

Na Fig. 1.6 são apresentados valores de acoplamento spin-órbita para diferentes materiais 3d, 4d e 5d. É possível observar uma significativa superioridade dos materiais 4d

e $5d$ em relação aos $3d$, o que corrobora com o Hamiltoniano apresentado na Eq. 1.7.

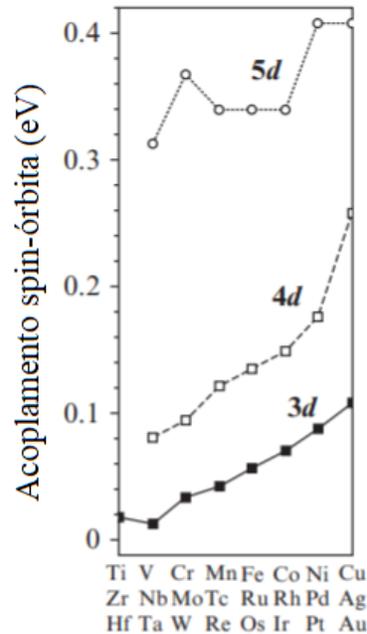


Figura 1.6 – Valores do acoplamento spin-órbita para diferentes materiais $3d$, $4d$ e $5d$. Adaptado de [38, 39].

O alto acoplamento spin-órbita é a condição para que os sistemas apresentem os efeitos interfaciais aqui estudados. A AMP, a interação DM e o EPM são fortemente dependentes do ASO do MP. Estes efeitos e sua relação com o ASO serão apresentados em detalhes na seção 1.2.2.

A soma do momento magnético de spin com o momento magnético orbital dá origem a um momento magnético resultante. Este dipolo interage com outros através da interação dipolar.

1.2.1.3 Interação dipolar magnética

A interação dipolar magnética ocorre entre dois dipolos magnéticos $\vec{\mu}_1$ e $\vec{\mu}_2$. A energia desta interação (E_D) é dependente principalmente da distância (\vec{r}) e do alinhamento entre os dipolos, e é obtida pela seguinte relação [32]:

$$E_D = \frac{\mu_0}{4\pi r^3} [\vec{\mu}_1 \cdot \vec{\mu}_2 - \frac{3}{r^2} (\vec{\mu}_1 \cdot \vec{r})(\vec{\mu}_2 \cdot \vec{r})]. \quad (1.8)$$

Desta forma, dois momentos de $1 \mu_B$ separados por 1 Angstrom tem energia dipolar de aproximadamente 10^{-23} J. A E_D é uma energia de baixa magnitude, o que faz seus efeitos serem fracos em altas temperaturas ou temperatura ambiente, visto que 1 K

corresponde a energia de 10^{-23} J.

A interação entre os dipolos pode formar regiões onde os dipolos estão alinhados paralelamente, mas que tem direções e sentidos diferentes de regiões adjacentes. A estas regiões denominamos domínios magnéticos.

No caso de multicamadas, a interação dipolar é mais intensa quanto espessa é a camada. Desta forma, a energia magnetostática também é alta. Este fato faz com que a amostra apresente a formação de multidomínios com a finalidade de minimizar a energia.

1.2.1.4 Domínios magnéticos

Um domínio ferromagnético é a região onde todos os momentos magnéticos estão alinhados paralelamente. A teoria de domínios foi desenvolvida por Weiss em 1907 [40]. Dentro de um domínio magnético há um momento magnético não-nulo, mesmo na ausência de um campo externo, visto que os spins estão todos paralelos e se somam.

A subdivisão da amostra em domínios menores ocorre porque um sistema de monodomínios tem um custo energético muito alto. A energia magnetostática é dada por [41]:

$$E_{Mag} = -\mu_0 \vec{M}_s \cdot \vec{H}_d, \quad (1.9)$$

onde μ_0 é a permeabilidade magnética no vácuo, \vec{M}_s é a magnetização de saturação e \vec{H}_d é o campo desmagnetizante. A magnetização de saturação é o momento magnético total da amostra saturado no sentido de um campo magnético e normalizado pelo volume da amostra. O campo desmagnetizante é o campo gerado pela não compensação das cargas magnéticas nas bordas. A formação de um único domínio, como na Fig. 1.7 da esquerda, tem um custo energético muito alto, visto que H_d é muito alto. A quebra em domínios faz com que H_d reduza e, por consequência, a energia magnetostática.

A Fig. 1.8 apresenta a evolução de domínios magnéticos, representados por setas, em um ciclo de histerese. Inicialmente, consideramos uma amostra virgem, o centro da curva na Fig. 1.8. Neste ponto os domínios magnéticos encontram-se orientados em diversas direções, e a magnetização líquida é zero. Quando um campo magnético positivo é aplicado, a maior parte dos domínios orientam-se no sentido do campo, conforme o estágio B da Fig. 1.8. Aumentando o valor do campo magnético chega-se ao estágio C, onde quase todos os domínios ficam orientados na direção do campo magnético aplicado. Neste ponto a amostra encontra-se próxima da saturação, sendo uma configuração próxima a de monodomínio. Quando o campo magnético retorna a zero, alguns momentos ainda permanecem alinhados no sentido do campo. Isto ocorre devido ao processo não ser reversível. Como consequência, tem-se uma magnetização líquida não nula, chamada magnetização de remanência. A remanência ocorre devido às paredes de domínios não

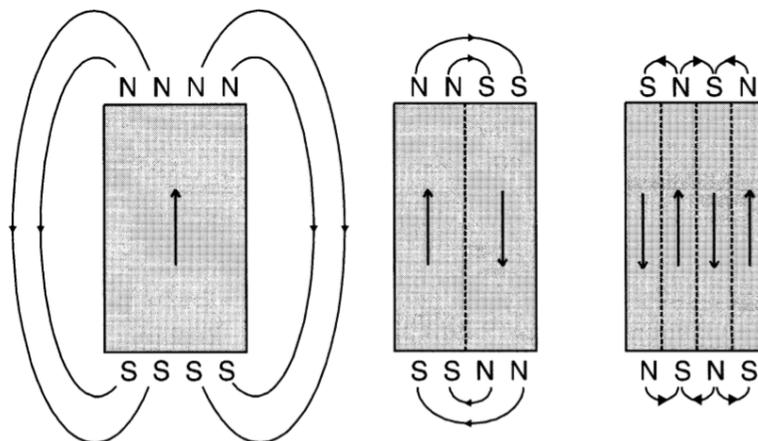


Figura 1.7 – Ilustração de sistemas com diferentes arranjos de domínios magnéticos. Adaptado de [42].

retornarem totalmente às suas posições originais após a remoção do campo da amostra, como se observa no estágio D na Fig. 1.8. Neste ponto a amostra volta a se subdividir em domínios. Aplicando um campo magnético negativo os momentos que estavam orientados no estado de remanência tornam-se aleatórios novamente. Neste ponto a magnetização é nula, e corresponde ao estágio E na Fig. 1.8. Esta análise dos domínios em função do campo magnético é importante visto que é no estado de remanência ou no estado virgem que observaremos os domínios magnéticos aqui estudados.

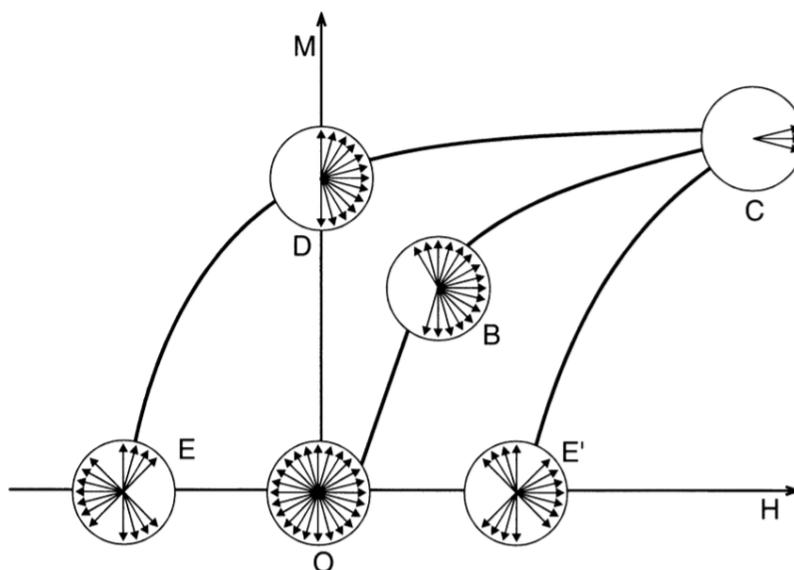


Figura 1.8 – Comportamento dos domínios magnéticos em função de campo magnético aplicado. Adaptado de [42].

Entre domínios orientados em direções e sentidos diferentes existem regiões de transições chamadas paredes de domínios, como ilustrado na Fig. 1.9. A quebra em

domínios ocorre até que a energia necessária para criar uma parede de domínio seja maior que o valor de energia reduzida pela quebra em domínio. A energia de uma parede de domínio (σ_w) é obtida por [43, 44]:

$$\sigma_w = 4\sqrt{A_{ex}K_u} \quad (1.10)$$

onde A_{ex} é a contante de rigidez de troca e K_u é a constante de anisotropia uniaxial. Assim, podemos notar que a formação da parede depende, principalmente, do material envolvido (A_{ex}) e da anisotropia da amostra.

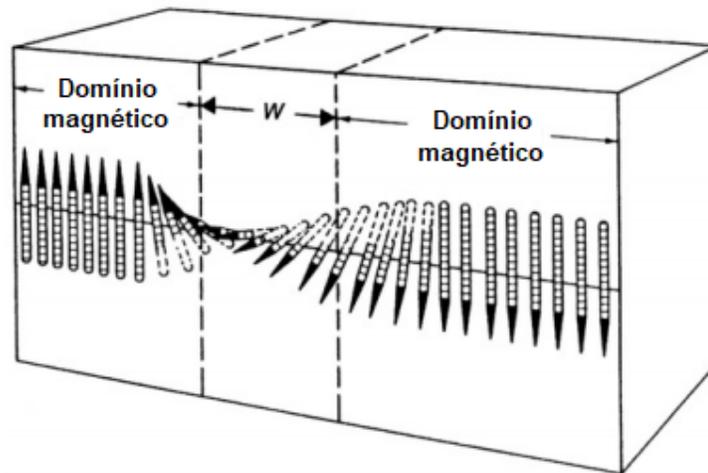


Figura 1.9 – Ilustração de um exemplo de parede de domínio, onde W é a largura da parede de domínio. Adaptado de [28].

A largura da parede (W) é finita e depende da competição entre as energias de anisotropia e de troca. Pode ser obtida através da seguinte relação [41]:

$$W = \sqrt{\frac{JS^2}{Ka}}, \quad (1.11)$$

onde J é a constante de troca, S é o número quântico de spin, K é a constante de anisotropia e a é o parâmetro de rede. A largura de uma parede de domínio pode variar de dezenas de nanômetros até dezenas de micrômetros.

As paredes de domínios podem ser principalmente classificadas em dois tipos, Bloch (Fig. 1.10a) e Néel (Fig. 1.10b), dependendo de como ocorre a inversão dos spins entre domínios. As paredes do tipo Bloch tem a inversão com os momentos girando no plano da parede e as paredes do tipo Néel tem inversão com os momentos girando no plano perpendicular à parede. As paredes de domínios podem ter quiralidade, assim podem ser no sentido horário ou anti-horário, dependendo do sentido em que os spins invertem.

O tipo de parede que a amostra apresenta depende principalmente da sua espes-

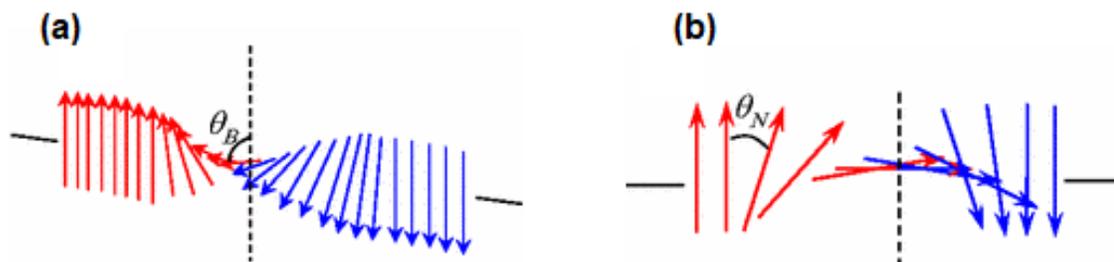


Figura 1.10 – Ilustração dos tipos de parede de domínios magnéticos. a) parede do tipo Bloch. b) parede do tipo Néel. Adaptado de [45].

sura. Na Fig. 1.11 podemos observar a tendência, amostras mais grossas demandam uma maior energia para estabilizar paredes do tipo Néel, assim tem maior probabilidade de formarem paredes do tipo Bloch. Já amostras mais finas precisam de uma alta energia para estabilizar paredes do tipo Bloch, logo a maior probabilidade é que estabilizem paredes do tipo Néel. Desta forma, filmes ultra finos normalmente tem a formação de paredes de domínios do tipo Néel.

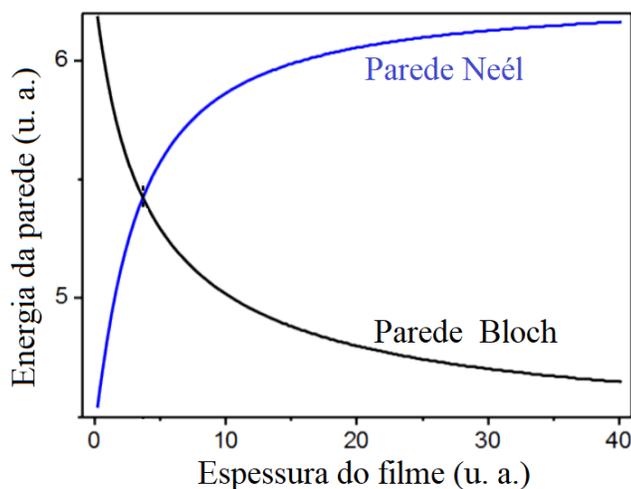


Figura 1.11 – Ilustração do tipo de parede de domínios magnéticos em função da espessura do filme. Adaptado de [46].

A formação de domínios magnéticos é determinada pelos diferentes termos da energia livre magnética. A evolução temporal destes termos é descrita pela equação Landau–Lifshitz–Gilbert (LLG), a qual fornece a dinâmica da magnetização.

1.2.1.5 Dinâmica da magnetização

A evolução temporal da magnetização pode ser descrita através da equação fenomenológica de Landau–Lifshitz–Gilbert (LLG) [47]:

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = -\gamma\vec{M} \times \vec{H}_{ef} + \alpha\vec{M} \times \frac{d\vec{M}}{dt} \quad (1.12)$$

onde γ é o fator giromagnético [48], \vec{M} é o vetor magnetização, α é o amortecimento de Gilbert e \vec{H}_{ef} é o campo efetivo. Esta relação nos permite entender como a magnetização é influenciada pelo \vec{H}_{ef} , campo que representa diversas interações do sistema.

O primeiro termo da equação de LLG após a igualdade $(-\gamma\vec{M} \times \vec{H}_{ef})$ descreve a interação entre a \vec{M} e o \vec{H}_{ef} . O campo efetivo representa o campo resultante da adição das diferentes interações particulares da amostra, e age no dipolo como se fosse um campo magnético aplicado. No estado relaxado, \vec{M} e \vec{H}_{ef} estão alinhados paralelamente como mostrado na Fig. 1.12a. Contribuições macroscópicas e microscópicas atuantes no sistema magnético são relacionadas para formar o \vec{H}_{ef} por [49]:

$$\begin{aligned} \vec{H}_{ef} = & H_0\hat{e}_z + \frac{2A_{ex}}{\mu_0 M_s} \nabla^2 \vec{M} + \vec{H}_{desmag} + \frac{2K_U}{\mu_0 M_s} m_z \hat{e}_z + \\ & + \frac{2D}{\mu_0 M_s} \left[\frac{\partial m_z}{\partial x} \hat{e}_x + \frac{\partial m_z}{\partial y} \hat{e}_y - \left(\frac{\partial m_x}{\partial x} + \frac{\partial m_y}{\partial y} \right) \hat{e}_z \right], \end{aligned} \quad (1.13)$$

onde \vec{H}_0 é o campo magnético externo, $\hat{e}_x, \hat{e}_y, \hat{e}_z$ são os vetores unitários das coordenadas cartesianas, M_s é a magnetização de saturação, K_U é a constante de anisotropia uniaxial, \vec{H}_{desmag} é o campo desmagnetizante, α é o amortecimento de Gilbert, A_{ex} é a constante de rigidez de troca e D é a interação Dzyaloshinskii-Moriya.

A aplicação de um campo externo deslocado de \vec{H}_{ef} , ou o não relaxamento do sistema torna \vec{M} e \vec{H}_{ef} não paralelos. Esta configuração é definida como um estado excitado, como apresentado na na Fig. 1.12b. Neste estado a magnetização precessiona em torno do \vec{H}_{ef} .

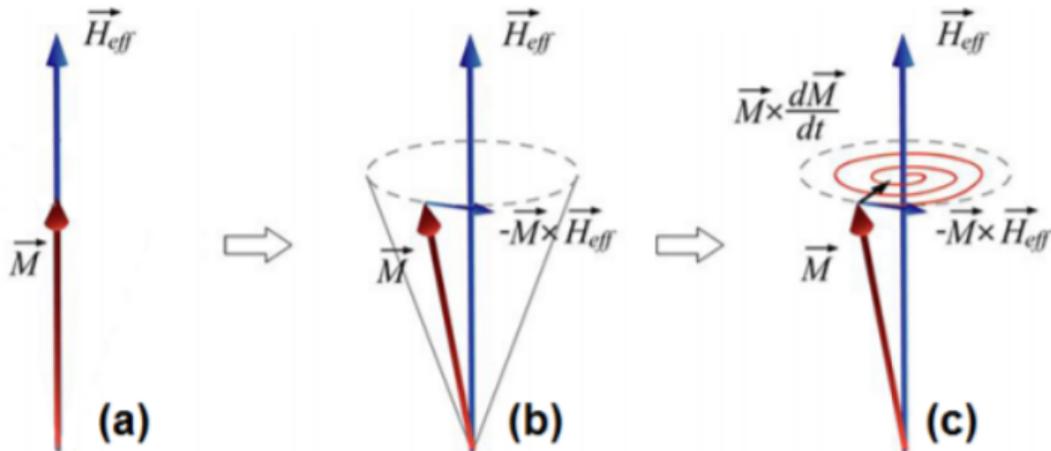


Figura 1.12 – (a) Estado de equilíbrio. (b) Estado excitado. (c) Estado dinâmico.

Podemos observar a dependência do \vec{H}_{ef} com propriedades muito importantes da

amostra como A_{ex} , K_u , \vec{H}_{desmag} e D . A A_{ex} é o termo que representa a energia de troca, a qual apresentamos na seção 1.2.1.1.

A K_u corresponde a energia de anisotropia do sistema. Neste estudo todas as amostras apresentam anisotropia magnética perpendicular. Deste modo, K_u quantifica o quão fortemente os spins tendem a se alinhar perpendicularmente ao plano da amostra. Na seção 1.2.2.1 apresentaremos detalhes da obtenção desta grandeza.

O campo \vec{H}_{ef} também é dependente da interação DM, que ocorre em multicamadas na interface FM/MP e age orientando os spins perpendicularmente. A interação Dzyaloshinskii-Moriya será melhor descrita na seção 1.2.2.2.

O campo desmagnetizante \vec{H}_{desmag} é o campo interno de uma amostra magnética. A minimização deste campo implica na minimização da energia magnetostática, e ocorre quando a amostra se subdivide em domínios. O \vec{H}_{desmag} está relacionado com a forma, espessura e a energia dipolar.

O segundo termo da equação de LLG após a igualdade $(\alpha \vec{M} \times \frac{d\vec{M}}{dt})$ é referente ao torque de amortecimento. Este termo foi incrementado por Gilbert, que observou um amortecimento, ou perda de energia durante o movimento de precessão da magnetização em torno de \vec{H}_{ef} . No estado dinâmico temos uma trajetória espiral da magnetização até o equilíbrio devido a presença do amortecimento de Gilbert, como representado na Fig. 1.12c.

O amortecimento de Gilbert é um parâmetro relacionado com a transferência de momento angular do material. Na literatura, para sistemas Pt/Co/Pt, por exemplo, temos valores em torno de 0,3 para espessuras abaixo de 1 nm de Co [50]. Este parâmetro indica o quão rápido o sistema estabilizará. Um alto valor de amortecimento indica que o sistema relaxa em um menor intervalo de tempo.

A equação de LLG permite encontrar o estado fundamental magnético da amostra baseado na energia magnética do sistema. Nesta tese, a utilizaremos principalmente na resolução de cálculo micromagnético, onde forneceremos os parâmetros experimentais e analisaremos a formação de domínios magnéticos, comparando-os com os experimentais.

1.2.2 Efeitos interfaciais em multicamadas

Nesta seção apresentamos uma revisão sobre os três principais efeitos interfaciais presentes em multicamadas de FM/MP. São eles: anisotropia magnética perpendicular, interação Dzyaloshinskii-Moriya e o efeito de proximidade magnético.

1.2.2.1 Anisotropia magnética perpendicular

Anisotropia magnética é a propriedade que os materiais magnéticos apresentam quando possuem uma direção preferencial da magnetização, ou seja, a amostra não reage de forma isotrópica à aplicação de campo magnético. Como resultado da anisotropia, quando um campo magnético é aplicado os momentos se alinham mais ou menos facilmente dependendo da direção do campo. A maior dificuldade para magnetizar uma amostra em um eixo de difícil magnetização, em relação ao eixo de mais fácil magnetização, impõe um custo energético adicional ao sistema, a chamada energia de anisotropia. A anisotropia magnética tem várias origens como: anisotropia magnetocristalina, anisotropia de interface e superfície e anisotropia de forma. A anisotropia magnetocristalina é uma propriedade intrínseca do material, a qual é causada pela interação spin-órbita do elétron. O arranjo espacial do orbital do elétron está fortemente relacionado à estrutura cristalográfica do material. Desta forma, quando os elétrons interagem por meio de seus spins, são forçados a alinhar ao longo dos eixos cristalográficos [51].

Aqui, falaremos especificamente da anisotropia magnética perpendicular (AMP), que está relacionada à forma e às interfaces da amostra, sendo a predominante em multicamadas FM/MP. Neste caso, o eixo preferencial da magnetização é perpendicular ao plano da amostra. Ao eixo perpendicular ao plano da amostra denominamos eixo fácil de magnetização e ao plano da amostra eixo de difícil magnetização. AMP foi prevista teoricamente por Néel em 1954 [52] e observada experimentalmente por Muller em 1968 em filmes de NiFe sobre substratos de Cu(111) [3]. Em multicamadas foi observada pela primeira vez em 1985 em amostras de Co/Pd [5].

Camadas puras de Co, mesmo que muito finas, apresentam magnetização espontânea no plano da amostra. Isto ocorre devido a efeitos de forma, e a pouca presença de efeitos interfaciais, como ilustrado na Fig. 1.13a. Para termos o eixo de fácil magnetização fora do plano da amostra é preciso colocar o FM em interface com um metal pesado, conforme ilustrado na Fig. 1.13b. Diferentes arranjos permitem obter AMP, como por exemplo Pd/Co/Pd, Pt/Co/Pt [6], Co/Ru [8], Co/Au [7], Co/Ir [9].

A origem da AMP está relacionada à interação spin-órbita e variações no momento orbital [53]. Na Fig. 1.14 apresentamos a variação do momento orbital em função do número de monocamadas de Co. Para um número de monocamadas superior a 7 o sistema é simétrico, apresentando praticamente o mesmo valor de momento orbital para $\alpha = 0^\circ$ (perpendicular à amostra) e $\alpha = 65^\circ$. Quando o número de monocamadas é inferior a 7 ocorre uma divergência para as duas orientações angulares, a contribuição perpendicular aumenta e a contribuição mais próxima do plano ($\alpha = 65^\circ$) reduz. A alta interação interfacial entre FM/PM faz com que, quando o Co é muito fino, ele tenha a magnetização orientada perpendicularmente ao plano da amostra. Isto ocorre porque esta é a orientação estrutural e o momento de spin está fortemente acoplado com o orbital. A AMP é atribuída a esta assimetria e ao aumento da contribuição perpendicular do momento orbital para finas

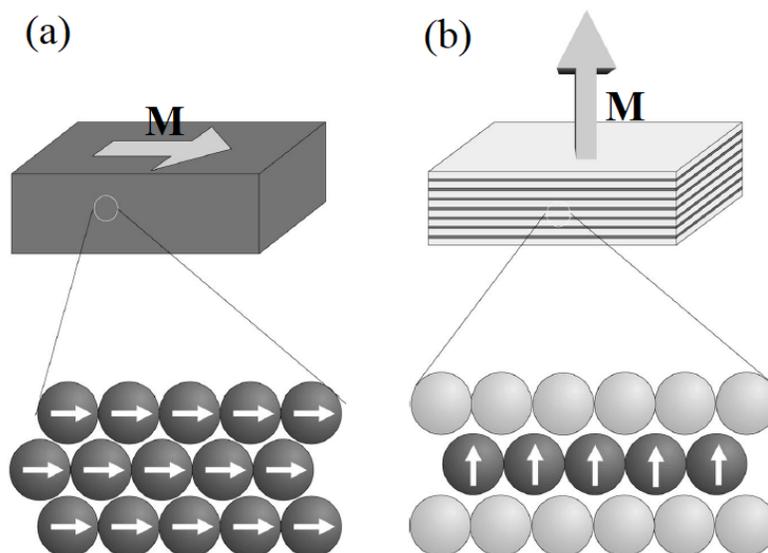


Figura 1.13 – Representação de um filme fino com magnetização no plano (a) e uma multicamada com magnetização fora do plano (b). Adaptado de [54].

camada do FM [54].

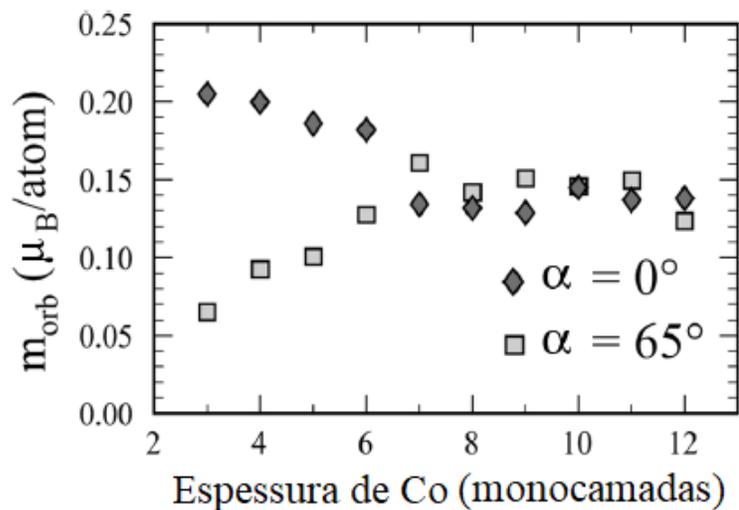


Figura 1.14 – Momento orbital em função do número de monocamadas de Co para $\alpha = 0^\circ$ (perpendicular a amostra) e $\alpha = 65^\circ$. Adaptado de [54].

A anisotropia perpendicular magnética em filmes finos pode ser determinada pela expressão fenomenológica [42];

$$K_{ef} = \frac{1}{2} H_k M_s, \quad (1.14)$$

onde K_{ef} é a constante de anisotropia efetiva, H_k é o campo de anisotropia (campo de saturação no eixo de difícil magnetização da amostra).

A construção de amostras com AMP na forma de multicamadas faz com que as camadas intercaladas de FM interajam entre si e tenham a formação de domínios magnéticos em comum, os quais são orientados perpendicularmente ao plano da amostra. Na Fig. 1.15 é apresentada uma ilustração. No caso, quatro camadas e os domínios magnéticos com orientações opostas são apresentados em verde e laranja.

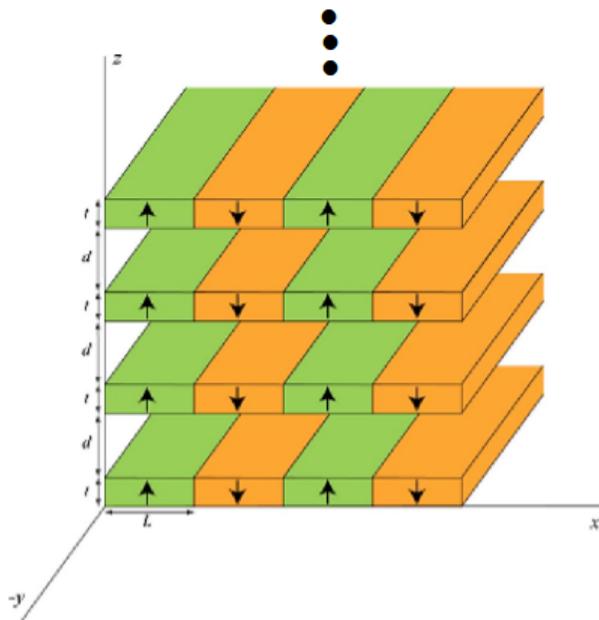


Figura 1.15 – Ilustração da formação de domínios magnéticos em amostras com AMP em multicamadas. Adaptado de [55].

Na Fig. 1.16 podemos ver a transição do eixo de fácil magnetização perpendicular para no plano da amostra, quantificada através da K_{ef} . Valores positivos de K_{ef} indicam que o eixo preferencial da magnetização é fora do plano da amostra e valores negativos que é no plano da amostra. A região de transição para a espessura do Co geralmente é entre 1 e 2,5 nm, dependendo do número de repetições da tricamada, rugosidade, etc.

Outra maneira de quantificar a AMP é através da constante de anisotropia uniaxial (K_u) [56]:

$$K_u = \frac{1}{2} \mu_0 M_s (H_k + M_s), \quad (1.15)$$

onde μ_0 é a constante de permeabilidade do vácuo.

Quando consideramos a constante de anisotropia uniaxial estamos assumindo a magnetização em uma direção. No nosso caso, estamos escolhendo o eixo z , que é perpendicular ao plano da amostra.

Uma amostra com AMP normalmente ainda tem uma componente da magnetização no plano da amostra, assim é comum realizar curvas de magnetização com campo magnético tanto fora do plano como no plano da amostra. Na Fig. 1.17 ilustramos curvas ca-

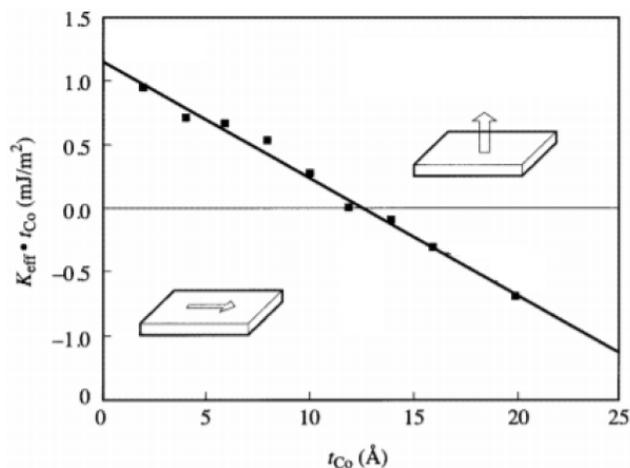


Figura 1.16 – Constante de anisotropia magnética em função da espessura dos Co. Adaptado de [42].

racterísticas de uma amostra com AMP. A Fig. 1.17 à direita (azul) é um exemplo de curva de magnetização com campo magnético aplicado no eixo preferencial da magnetização. São características desta curva os valores maiores de coercividade (H_c) e magnetização de remanência (M_r).

A Fig. 1.17 à direita (vermelha) é um exemplo de curva de magnetização de uma amostra com AMP com campo magnético aplicado no eixo não preferencial da magnetização (no plano). São características desta curva a baixa coercividade (H_c) e magnetização de remanência M_r . Um parâmetro importante desta curva para caracterizar a anisotropia é o campo de saturação no eixo de difícil magnetização (H_k). O H_k foi utilizado acima nas equações para as constantes de anisotropia.

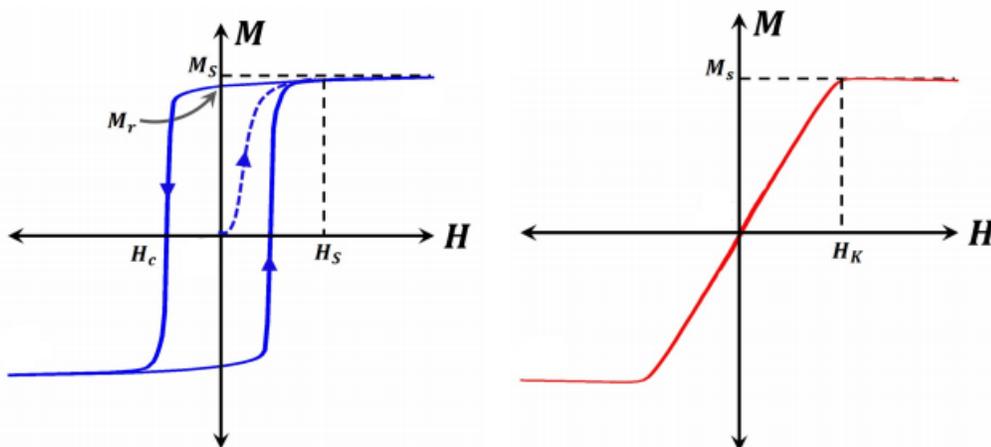


Figura 1.17 – Ilustração de curvas de magnetização de uma amostra com AMP. A esquerda uma curva obtida com campo magnético aplicado fora do plano da amostra. A direita curva obtida com campo magnético aplicado no plano da amostra.

1.2.2.2 Interação Dzyaloshiinski-Moriya

A interação Dzyaloshinskii-Moriya (DM) foi proposta inicialmente em 1958 por Dzyaloshinsky para explicar um fraco ferromagnetismo observado em cristais antiferromagnéticos de $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ [10]. Em 1960 a explicação foi complementada por Moriya que incluiu a interação spin-órbita no modelo [11]. Em materiais volumétricos não centro-simétricos como MnSi, por exemplo, a quebra de simetria de inversão espacial dá origem à interação DM [94]. A interação DM é uma interação de troca antissimétrica, e sua minimização ocorre quando os spins estão perpendiculares.

A interação DM é expressa pelo Hamiltoniano (H_{DM}) [57]:

$$H_{DM} = \vec{D}_{1,2} \cdot (\vec{S}_1 \times \vec{S}_2), \quad (1.16)$$

onde \vec{S}_1 e \vec{S}_2 são spins vizinhos os quais interagem com um átomo de alto ASO e $\vec{D}_{1,2}$ é o vetor da interação DM. A interação dos spins do ferromagneto com o metal pesado é descrita por $\vec{D}_{1,2}$, que é perpendicular ao plano formado pelos dois spins vizinhos e o átomo do metal de alto ASO, como pode ser observado na Fig. 1.18a. Note que a tendência é que os spins fiquem orientados com um certo ângulo entre si, e este ângulo dependerá de quão forte é a interação DM.

Em multicamadas, a interação DM ocorre na interface FM/MP entre spins do FM e átomos do metal pesado (alto ASO) adjacente. No caso específico em que ocorre na interface FM/MP é chamada de interação DM interfacial (iDM). A ilustração da interação na interface é apresentada na Fig. 1.18b.

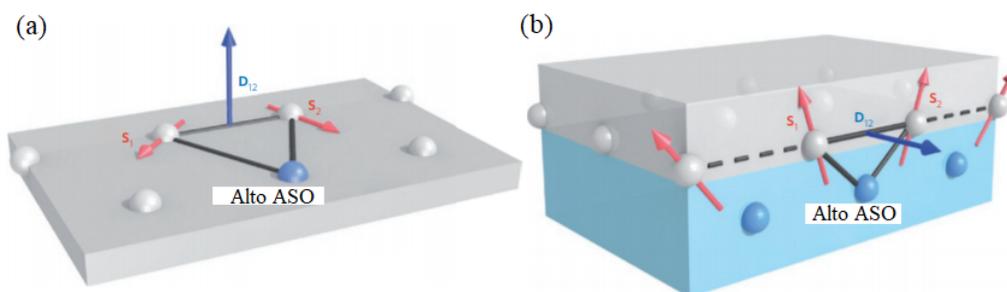


Figura 1.18 – (a) Ilustração da interação DM perpendicular ao plano formado por dois spins vizinhos e um átomo de material com alto ASO. (b) Ilustração da interação DM na interface FM/MP. Adaptado de [57].

O vetor DM (\vec{D}) tem uma dependência com a interação spin-órbita, como já havia sido proposto por Moriya [11], mas tanto a amplitude quanto o sinal da interação DMI ainda não são completamente compreendidos. Em artigo publicado em 2020 ainda podemos encontrar a seguinte frase: *"Very little is known of the material parameters that determine the value of DMI"* [58]. A principal ferramenta utilizada para prever os valores da interação DM tem sido cálculo de primeiros princípios. O vetor \vec{D} está intrinsicamente ligado a como

ocorre a hibridização interfacial de bandas entre os FM e MP envolvidos, e também da contribuição orbital do MP [58]. Na Fig. 1.19 são apresentados cálculos de primeiros princípios realizados para diferentes FM e MP. É possível observar que não há um comportamento que escale com apenas um parâmetro dos materiais, número atômico, eletronegatividade, densidade, por exemplo. Aqui é importante chamar a atenção para a Pt, que dá origem à interação com sinais opostos para o Co e o Ni, ressaltando que Co e Ni estão lado a lado na tabela periódica.

O $|D|$ é descrito pela seguinte relação [57] (material suplementar):

$$|D| = \frac{\Delta E_{DM}}{\sqrt{2}N_F a^2} \quad (1.17)$$

onde N_F é o número de planos atômicos ferromagnéticos, a é o parâmetro de rede e ΔE_{DM} é a diferença de energia entre as diferentes quiralidades, o que será abordado a seguir [57] (material suplementar):

$$\Delta E_{DM} = E_{CW} - E_{CCW}. \quad (1.18)$$

Podemos notar que a interação DM é inversamente proporcional ao número de planos atômicos, isto justifica o seu decaimento com a espessura do FM como representado na Fig. 1.21.

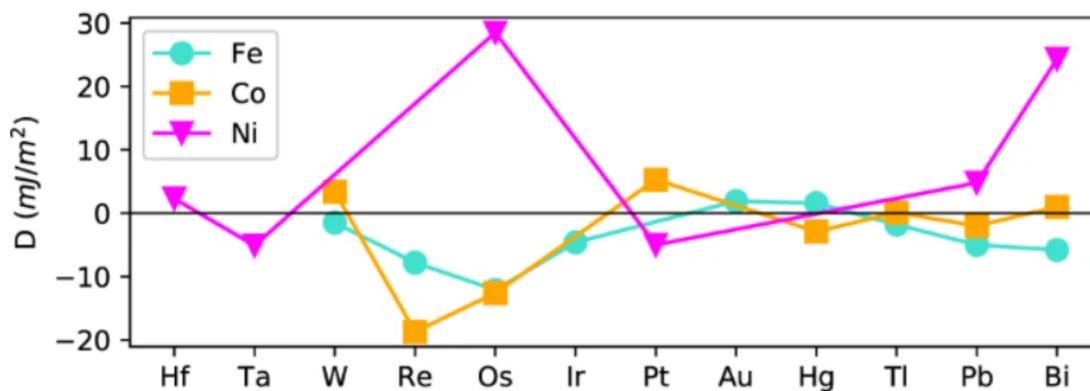


Figura 1.19 – Interação DM para diferentes metais não magnéticos (NM) e FM obtidos por cálculos de primeiros princípios. Adaptado de [58].

Em amostras simétricas como Pd/Co/Pd e Pt/Co/Pt, é esperado que o valor resultante de interação DM seja nulo, porque a interação DM na interface Pd/Co (inferior) se cancela com a interação da interface Co/Pd (superior), o mesmo para Co/Pt. Na Fig. 1.20 está ilustrada a interação DM nas interfaces inferiores e superiores de Co com Pd e Pt. A cor azul representa os spins do Co, a cor verde os átomos de Pd e a cor oliva os átomos de Pt. Importante ressaltar que as interfaces Co/Pd e Co/Pt tem sinais opostos de interação DM.

Alguns resultados tem mostrado que mesmo sistemas nominalmente simétricos apresentam momentos magnéticos induzidos por EPM distintos entre as interfaces Pd/Co e Co/Pd [17]. A diferença é atribuída à leve discrepância na rugosidade entre as interfaces superior e inferior, o que torna as áreas de interação diferentes. Por estes fatores a interação DM pode ser diferente entre as interfaces, não sendo compensada e apresentando um valor resultante não nulo mesmo em sistemas nominalmente simétricos [59].

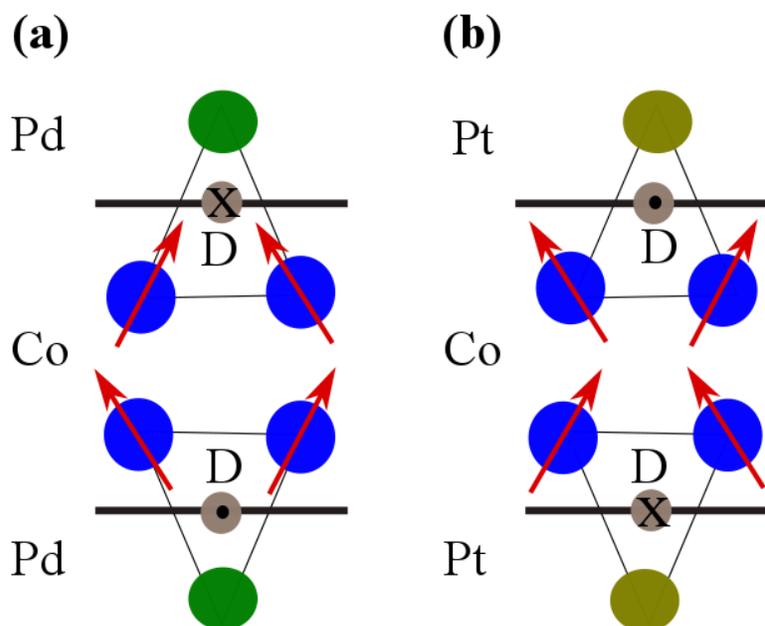


Figura 1.20 – Ilustração da interação iDM nas interfaces Co/Pd e Co/Pt.

Por ser interfacial, a interação DM tem uma dependência inversa com a espessura do FM [60, 61]. No gráfico da Fig. 1.21 é apresentada a dependência da interação DM com a espessura de diferentes arranjos de FM/MP. Em multicamadas, ao aumentar o número de repetições a interação DM também altera sua amplitude, sendo maior quanto mais repetições houver [62].

Na Fig. 1.22 é demonstrada a influência dos parâmetros de rede no valor da interação DM. É importante notar que é possível duplicar o valor da interação apenas alterando a razão entre os parâmetros de rede fora do plano (c) e no plano (a).

Com o intuito de observar as variações nas demais propriedades e na formação de domínios, foram estudados uma série de arranjos que tivessem diferentes contribuições da interação DM substituindo os MP. Por exemplo, Pt/Co/W, Pt/Co/Ir e Pt/Co/Ru possibilitam variar a amplitude e o sinal da interação iDM e obter valores que permitem a estabilização de estruturas quirais [19, 63]. Estas combinações em que as interfaces superior e inferior com o FM são com diferentes metais pesados são denominadas de sistemas não simétricos. Além disso, é possível escolher materiais (MP) que contenham sinais contrários para o mesmo FM. Ao formar uma tri-camada com estes materiais temos um somatório da

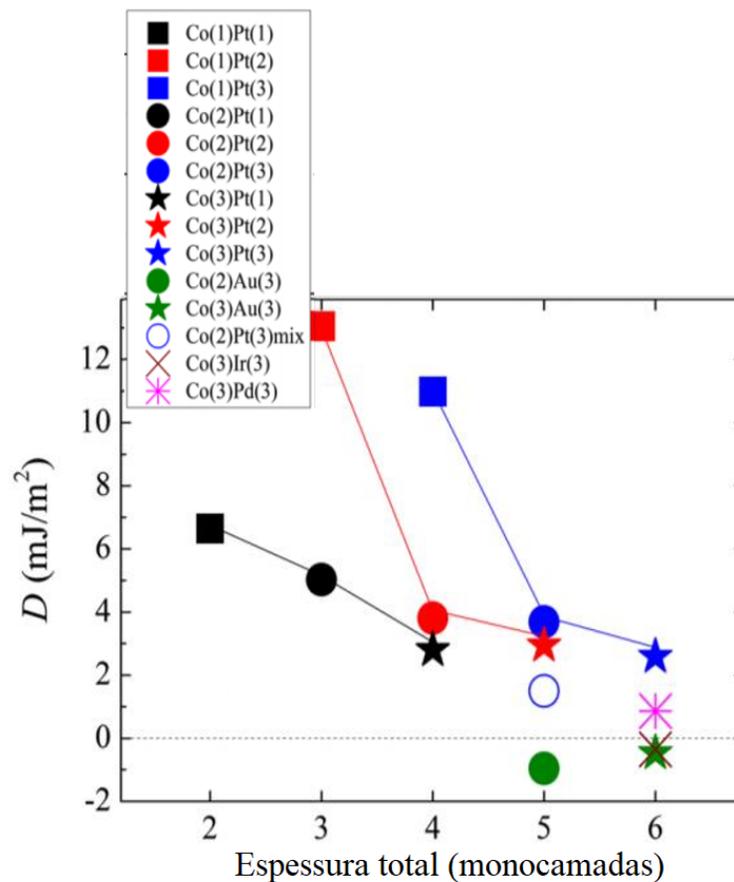


Figura 1.21 – Dependência da interação DM com a espessura de diferentes arranjos de FM/MP. Adaptado de [64].

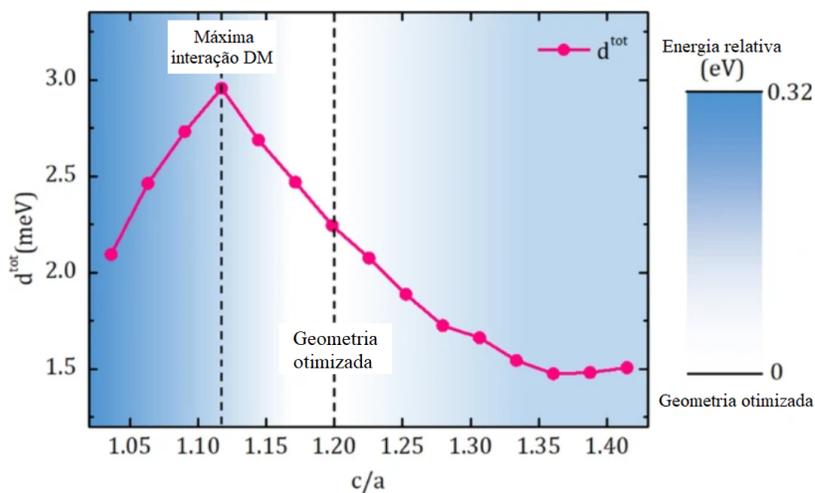


Figura 1.22 – Relação entre a interação DM e razão c/a do Co. Adaptado de [65].

interação DM superior e inferior. Esta é uma boa estratégia para incrementar o valor da interação DM em multicamadas [18, 66, 67].

A interação DM age principalmente na parede de domínio, e sua presença modifica a energia das paredes de domínios. O valor será incrementado ou descontado (dependendo do sinal da interação DM) da energia de parede para sistemas sem a interação conforme [68]:

$$\sigma_w = 4\sqrt{AK_u} \pm \pi D \quad (1.19)$$

onde σ_w é a energia da parede de domínio, A_{ex} é a contante de troca, K_u é a constante de anisotropia uniaxial e D é a interação DM. Desta forma, a interação DM contribuirá para o tipo e o tamanho de domínio magnético formado.

A quantificação da interação DM pode ser feita de maneira indireta através da medida do tamanho dos domínios magnéticos [69], através da propagação de paredes de domínios [70] ou através de medidas de espalhamento Brillouin [71, 72].

A interação DM compete com a interação de troca, induzindo uma orientação perpendicular entre spins aos invés de paralela. Ou seja, a interação DM é minimizada para o ângulo de 90° entre os spins. Assim, é a principal responsável pela estabilização de domínios magnéticos quirais como skyrmions.

1.2.2.2.1 Skyrmions

Em 1989 foi previsto que alguns sistemas magnéticos poderiam apresentar estrutura quiral bastante estável, de tamanho reduzido e manipulável com corrente elétrica, a qual foi denominada de skyrmion [73]. O nome skyrmion é em homenagem a Tony Skyrme, que em 1961 através da teoria de campos previu estas estruturas não co-lineares [74, 75]. Skyrmions magnéticos, ou mais especificamente ferromagnéticos neste caso, são estruturas magnéticas circulares caracterizadas por seu pequeno tamanho, alta estabilidade e que podem ser movimentadas com baixa densidade de corrente. Estas características fazem do skyrmion um promissor integrante de mídias de gravação magnética de alta densidade [14]. Por isso atualmente vem se estudando muitos processos de criação, manipulação e detecção de skyrmions para viabilizar a aplicação.

A primeira observação de skyrmions magnéticos ocorreu em 2009 por Mühlbauer *et al* em amostras de MnSi através da técnica de espalhamento de neutrons a baixo ângulo [13]. Nesta medida os skyrmions observados foram do tipo Bloch, para isto a amostra precisou ser submetida a baixas temperaturas, ~ 27 K.

Assim como as paredes de domínios, os skyrmions magnéticos podem ser principalmente de dois tipos, Bloch e Néel, suas estruturas podem ser observadas na Fig. 1.23. No skyrmion do tipo Bloch (esquerda) os momentos magnéticos na borda e no centro são perpendiculares e antiparalelos entre si, e a transição é em forma de espiral, rotacionando no plano da amostra. Já no skyrmion do tipo Néel (direita) a transição ocorre perpendicular

ao plano da amostra.

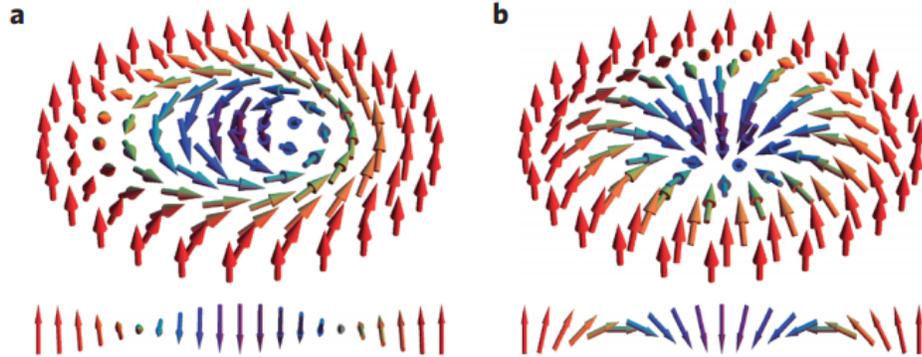


Figura 1.23 – Estruturas dos skyrmions tipo Block, a esquerda, e tipo Néel, a direita. Adaptado de [77].

A principal característica dos skyrmions é sua proteção topológica devido à sua quiralidade. A quiralidade do skyrmion é definida pelo sinal da interação DM. Na Fig. 1.24 apresentamos a ilustração de paredes do tipo Néel com quiralidade para a direita (sentido horário) e para a esquerda (sentido anti-horário). Um skyrmion com quiralidade anti-horária é originado por uma DM positiva, por exemplo [57] (material suplementar). A quiralidade confere ao skyrmion a imunidade a defeitos devido à carga topológica. Esta proteção ocorre por os spins estarem interagindo pela interação DM. A proteção é mantida até que os efeitos externos sejam mais intensos que a interação DM. Relacionado a energia da parede de domínio (equação 1.19) é possível estimar um valor crítico da interação DM ($D_{critico}$) para estabilização de skyrmions [68, 76]:

$$D_{critico} = \frac{4}{\pi} \sqrt{AK_u}. \quad (1.20)$$

A carga topológica do skyrmion é obtida por [79]:

$$Q = \frac{1}{4\pi} \int \vec{m} \cdot \left(\frac{\partial \vec{m}}{\partial x} \times \frac{\partial \vec{m}}{\partial y} \right) dx dy, \quad (1.21)$$

onde \vec{m} é a magnetização e x e y são as coordenadas planares.

Os skyrmions podem ter cargas topológicas +1 e -1 dependendo do sinal da interação DM. A Fig. 1.25 ilustra estruturas quirais com diferentes cargas topológicas, inclusive skyrmions.

Os três principais caminhos para obter skyrmions magnéticos necessitam que a amostra apresente interação DM. A redução da temperatura, a aplicação de campo magnético e a nanoestruturação são maneiras de alterar as propriedades da amostra, como M_s , K , interação DM e campo desmagnetizante, propriedades decisivas na formação de domínios. A estabilização de skyrmions pode ser obtida também devido a presença de defeitos topológicos na amostra [80].

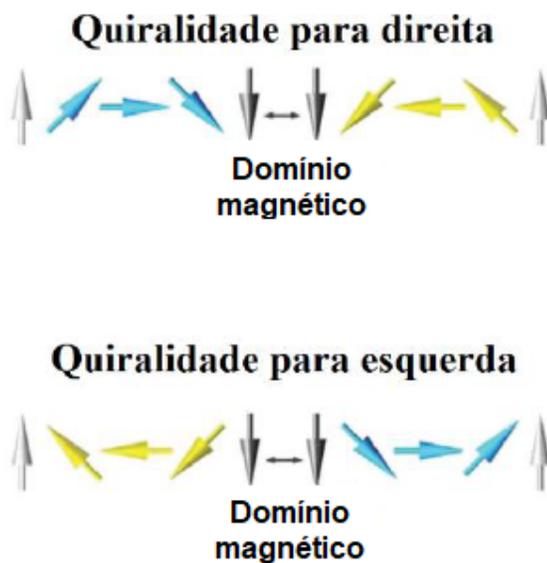


Figura 1.24 – Paredes do tipo Néel com quiralidade direita e com quiralidade esquerda. Adaptado de [78].

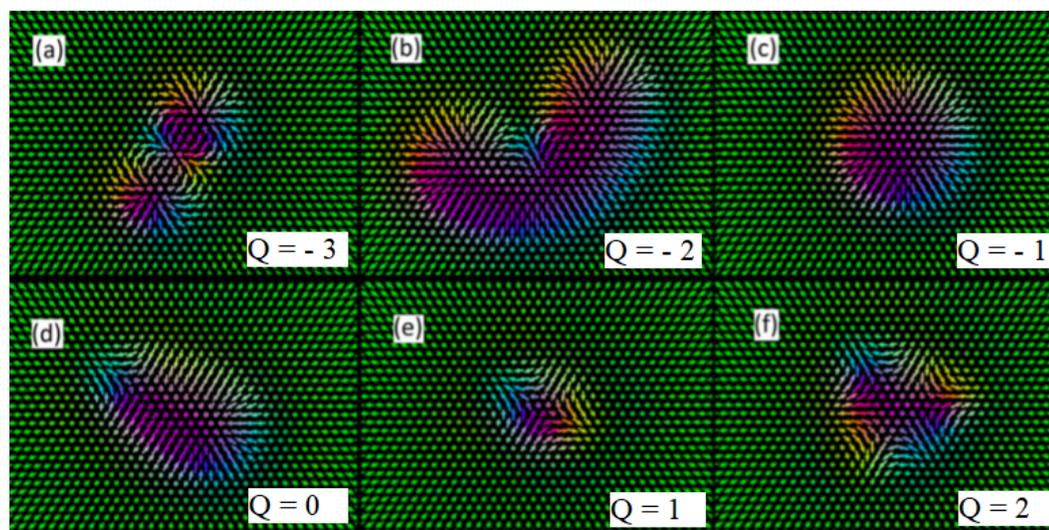


Figura 1.25 – Diferentes cargas topológicas possíveis. Adaptado de [79].

Por ser movimentado sem ser deformado e não aniquilado mesmo quando interagem com defeitos, os skyrmions tem um comportamento similar a partículas, também sendo classificado como um sóliton (pulso de onda). Como mencionado anteriormente, os skyrmions podem ser deslocados por corrente elétrica de baixa densidade. Na Fig. 1.26 são apresentados dois skyrmions movimentados por corrente elétrica, um com carga topológica -1 (esquerda) e outro com carga topológica +1 (direita).

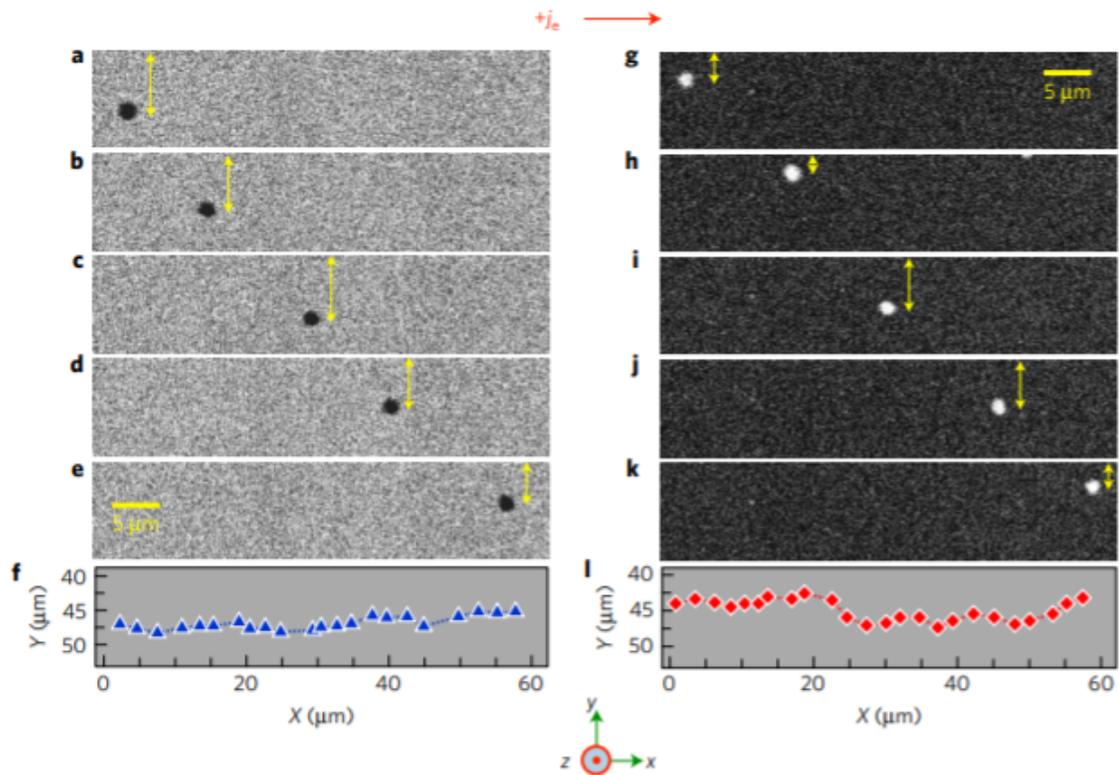


Figura 1.26 – Skyrmions sendo movimentados pela aplicação de corrente elétrica. Adaptado de [81].

1.2.2.3 Efeito de proximidade magnético

O magnetismo por efeito de proximidade foi previsto teoricamente por Zuckermann em 1973 [82]. Em 1978 Bergmann observou que filmes finos de Ni, Fe, Co crescidos sobre um substrato paramagnético (PM) de Pb_3Bi apresentavam magnetização diferente da obtida em forma massiva [83]. Este trabalho é considerado a primeira evidência experimental do efeito de proximidade magnético (EPM).

O momento magnético induzido surge quando um paramagneto está próximo do critério de Stoner e adjacente a um material ferromagnético (FM). O critério de Stoner é [84]:

$$J g > 1 \quad (1.22)$$

onde J é a integral de troca, a qual é proporcional à amplitude da interação de troca (como apresentado anteriormente) e g é a densidade de estados na energia de Fermi. Materiais como o Pd e a Pt estão muito próximos de satisfazerem este critério. Ao estarem em interface com um FM aumentam sua densidade de estados através da hibridização orbital. Nesta condição, passam a satisfazer o critério e a interface do PM fica polarizada magneticamente. Isto é demonstrado através de cálculos *ab initio* por Cox *et. al.* [85], onde ele

chama este fenômeno de paramagnetismo "aprimorado" de Stoner, na camada não magnética. Além disso, observa que a magnitude do momento magnético induzido depende do grau de hibridização de banda na interface FM/PM, assim como do preenchimento da banda no FM [85]. Esta hibridização, além de induzir momento magnético no PM, pode causar uma redução no momento magnético do FM [86]. Na Fig. 1.27(a) é representada a densidade de estados ocupados (DOS) para o Co em forma massiva na cor azul e na Fig. 1.27(b) a hibridização de estados entre o Co (azul) e Pt (rosa).

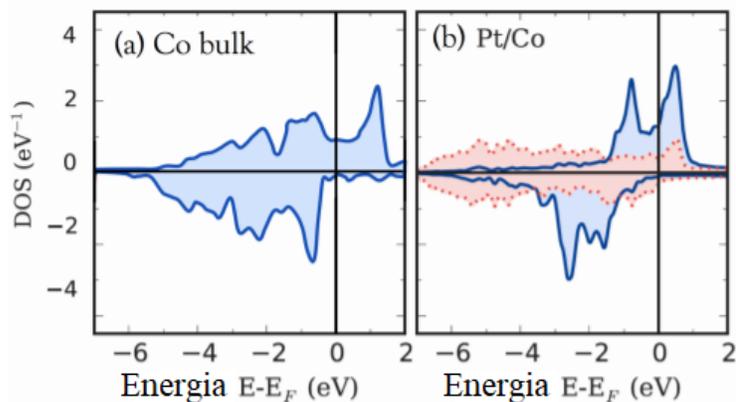


Figura 1.27 – Densidade de estados ocupados do Co (a) e Co/Pt (b), onde positivo representa spin para cima e negativo spin para baixo. Adaptado de [87].

O FM age como um campo magnético aplicado no metal PM. A presença de um campo magnético faz surgir o paramagnetismo de Pauli causado pelo desbalanceamento entre spins para cima e spins para baixo. Este desbalanceamento origina um momento magnético líquido, o qual torna o PM polarizado magneticamente. O desbalanceamento e a modificação da densidade de estados são eventos locais, assim o EPM é um efeito interfacial. Desta forma, o efeito tem um decaimento exponencial com a distância da interface, como demonstrado na Fig. 1.28. Conforme apresentado, a Pt pode ser polarizada até uma distância de 1 nm da interface Pt/Co [88].

O efeito de proximidade magnético pode ser negativo em alguns materiais como apresentado na Fig. 1.29. Materiais como o W e o Hf (utilizados nesta tese) possuem esta propriedade. A Fig. 1.29 mostra o momento induzido para uma série de materiais 4*d* e 5*d* calculados por Akai [89]. Um comportamento similar é observado experimentalmente por Wienke *et al* introduzindo os materiais 5*d* como impurezas em amostras de Fe [90]. Podemos observar que a Pt chega a ter próximo a $0,5 \mu_B$ de momento magnético induzido, este valor elevado ocorre devido ao seu alto acoplamento spin-órbita. O W também apresenta um elevado valor de momento magnético induzido, mas com orientação antiparalela. O sentido do momento induzido é determinado pela hibridização orbital entre o FM e o MP.

De modo geral o efeito de proximidade magnético não sofre alterações com a espessura do ferromagneto envolvido [91]. Nesta tese, como estamos trabalhando com filmes ultra finos, vamos demonstrar que para casos particulares, onde não há a formação de

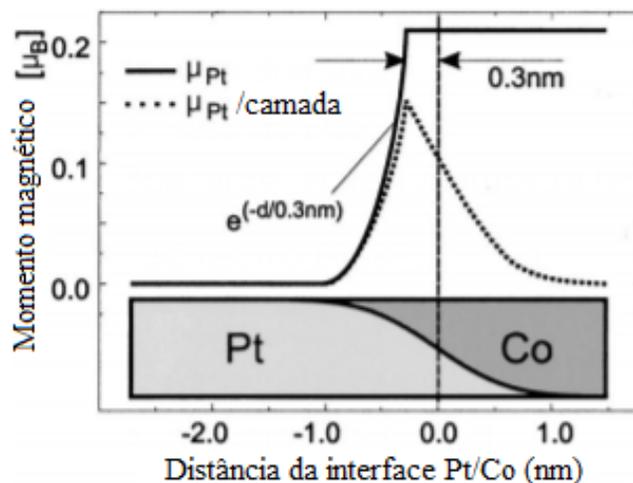


Figura 1.28 – Decaimento exponencial da espessura de Pt polarizada por efeito de proximidade magnético em interface com o Co. O eixo horizontal indica a distância da interface, onde -1,0 representa a Pt 1 nm distante da interface Co/Pt. Adaptado de [88].

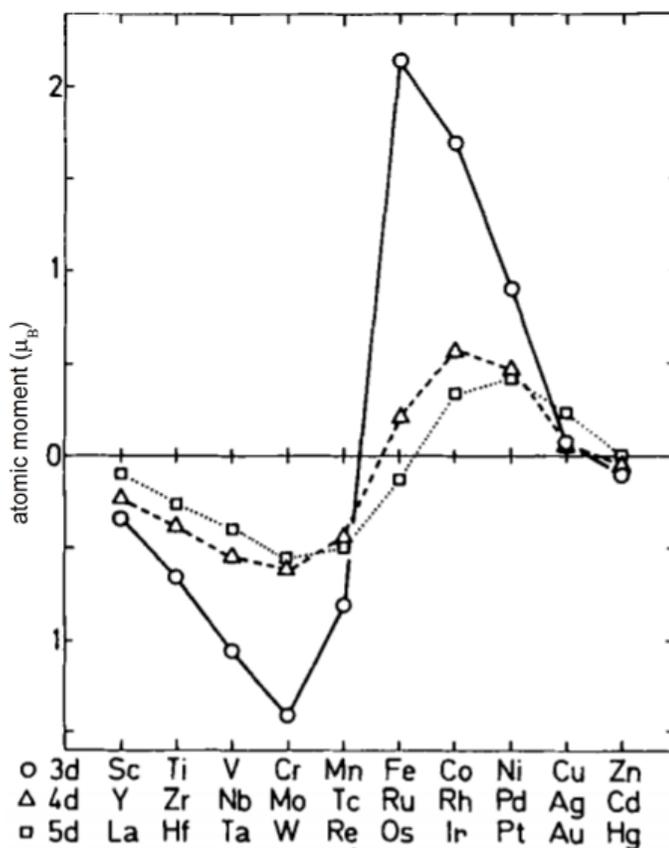


Figura 1.29 – Momento magnético calculado de diferentes materiais 3d, 4d e 5d. Adaptado de [89].

um filme contínuo, o efeito de proximidade é diferente quando comparado com filmes mais

grossos.

Nesta tese foram estudados 3 materiais que apresentam efeito de proximidade magnético: Pt, W e Hf. Em cada um dos capítulos apresentados a seguir será possível observar que estes materiais causam modificações significativas nas propriedades magnéticas e na formação de domínios devido a diferentes polarizações magnéticas adquiridas.

1.3 PROPOSIÇÃO

O objetivo geral desta tese é analisar o impacto de efeitos interfaciais (anisotropia magnética perpendicular, interação Dzyaloshinskii-Moriya, e efeito de proximidade magnético) na formação de domínios magnéticos e skyrmions em amostras com anisotropia magnética perpendicular. Para isso, desenvolvemos três estudos, os quais são apresentados nos capítulos 2, 3 e 4, no formato de artigos. Embora possam ser analisados independentemente, eles são fortemente relacionados e abrangem o objetivo geral.

A variação dos efeitos interfaciais é obtida principalmente através da espessura das camadas e da inserção de camadas ultrafinas de materiais diferentes. Por serem interfaciais, os fenômenos tem uma dependência com a espessura, principalmente para espessuras sub-nanométricas. A substituição dos materiais é outra maneira de ajustar os efeitos interfaciais. Como visto na seção 1.2, os efeitos são mais intensos em determinados materiais do que em outros. Variar os efeitos interfaciais é a nossa estratégia para estabilizar diferentes tipos de domínios magnéticos, tendo em vista a dependência deles com as propriedades magnéticas que são sintonizadas por estes efeitos.

A interface descreve a transição entre camadas adjacentes na multicamada e tem uma estrutura que pode ser totalmente diferente da apresentada pelos materiais na forma volumétrica, principalmente pela hibridização dos orbitais. É esta mistura entre os orbitais que dá origem aos efeitos aqui estudados. A forma como ocorre a fusão dos orbitais é que influencia nos sinais e amplitudes dos fenômenos.

1.3.1 Interação DM e efeitos de proximidade negativo em multicamadas assimétricas com Pd

Inicialmente, propomos um estudo da formação de domínios magnéticos em um sistema assimétrico de multicamadas baseado no trabalho prévio desenvolvido com multicamadas de Pd/Co/Pd [24]. No estudo mencionado, onde obtivemos skyrmions isolados em campo magnético zero, também foram observados domínios magnéticos do tipo labirinto/tiras para amostras com espessuras mais grossas de Co (0.6-0.8 nm). Baseado neste sistema, propomos analisar o impacto da adição sistemática de interação DM, e a redução

da M_s , na formação dos domínios magnéticos. A adição de interação DM será feita tornando a amostra assimétrica e também pela escolha de materiais que formam um sistema aditivo de interação DM entre a interface superior e inferior com o Co.

A assimetria nos filmes finos de multicamadas tem sido a chave para que os sistemas apresentem interação DM não nula [18, 92, 93]. Baseado nisso, tornamos uma amostra nominalmente simétrica de Pd/Co/Pd, que apresentou domínios do tipo tiras, em assimétrica a fim de induzir interação DM. Para isso, inserimos uma fina camada de W na interface superior Co/Pd com diferentes espessuras. A nossa hipótese é que altos valores de interação DM possam alterar o tipo de domínio formado e estabilizar skyrmions isolados.

Escolhemos o W por apresentar interação DM com sinal oposto ao Pd quando em interface com o Co [23]. Desta forma, temos um sistema onde a interação DM da interface superior e inferior com o Co tem o mesmo sinal formando um sistema aditivo, o que permite obter altos valores para a interação. A interação DM é responsável pela formação de domínios quirais como visto na seção 1.2.2.2. A construção de um sistema aditivo de DMI poderia tornar domínios tipo tiras (de uma amostra base) em skyrmions? Poderíamos obter domínios magnéticos mais promissores para aplicações?

Além disso, o W apresenta EPM negativo [12], o que também permite modificar os parâmetros magnéticos da amostra, principalmente a M_s . Esta característica permite maiores modificações além da interação DM? Demais parâmetros seriam alterados? Como é a dependência das propriedades magnéticas com a variação na espessura de W? Quais impactos na formação dos domínios magnéticos?

A formação dos domínios é investigada pela técnica de microscopia de força magnética (MFM) e as propriedades magnéticas pela técnica de magnetometria de amostra vibrante (VSM). Devido a não termos um ferramental para medir a interação DM usamos os parâmetros magnéticos experimentais para computar simulações micromagnéticas, e assim estimar a interação DM por comparação das imagens de MFM experimentais e simuladas. Este estudo é apresentado no capítulo 2 desta tese.

1.3.2 Efeito de proximidade magnético e formação de skyrmions em multicamadas simétricas

Em recente trabalho de minha co-autoria, demonstramos que amostras nominalmente simétricas de Pd/Co/Pd permitem estabilizar skyrmions isolados em campo magnético zero [24]. No referido trabalho variamos a AMP com a finalidade de ajustar a magnetização de remanência. A alta magnetização de remanência, juntamente com baixos valores de interação DM, foram os ingredientes para a estabilização dos skyrmions. Uma hipótese levantada é que outro sistema nominalmente simétrico, com MP de diferente ASO,

poderia também estabilizar skyrmions isolados em campo magnético zero com tamanhos e densidades diferentes. Outro questionamento seria o impacto do uso de metal não-magnético cujo acoplamento spin-órbita seja maior. Conseguiríamos estabilizar skyrmions nas mesmas condições? Quais seriam as diferenças? Seriam estes skyrmions maiores ou menores? Com maior ou menor densidade? Ou teríamos outro tipo de domínio magnético?

Neste estudo utilizamos como MP a Pt, que além de maior ASO, apresenta maior interação DM quando em interface com o Co [95]. De maneira análoga ao realizado no sistema Pd/Co/Pd, variamos a espessura do Co (0,5-1,5 nm) a fim de ajustar a magnetização de remanência da amostra, visto que uma alta magnetização de remanência foi a chave para a estabilização de skyrmions isolados em campo zero nas amostras simétricas de Pd/Co/Pd.

Um grande problema no estudo de multicamadas FM/MP é quantificar com precisão as propriedades magnéticas, principalmente devido à dificuldade em conhecer o volume magnético real das amostras. Como abordado na revisão teórica, as multicamadas FM/MP apresentam o EPM, assim, os MP contribuem para a magnetização total. Em filmes massivos a contribuição do EPM é baixa comparada ao momento total. Porém, em filmes ultra finos, com grande interação interfacial, o quanto o EPM influencia nas propriedades magnéticas? Este é um dos aspectos que buscamos investigar.

Os efeitos interfaciais são muito intensos para espessuras próximas do diâmetro atômico dos materiais. Além disso, camadas com espessuras tão baixas podem não estar sendo completamente preenchidas. A formação de ilhas ou até mesmo de liga pode ocorrer dependendo das espessuras e dos materiais envolvidos. Os fenômenos interfaciais estão diretamente ligados com a qualidade da interface FM/MP, ou seja, a rugosidade/interdifusão. Qual seria a influência da rugosidade/interdifusão no EPM?

Neste estudo analisamos a formação de domínios magnéticos por MFM e microscopia de transmissão de raios X por varredura (STXM). Investigamos os parâmetros magnéticos por magnetometria de amostra vibrante e dicroísmo circular magnético de raios X (XMCD) com o intuito de estimar o EPM na Pt. Por não conseguirmos medir o efeito de proximidade diretamente na Pt (devido à falta de uma estação com raios X circularmente polarizados com energia da borda L_3 da Pt), utilizamos a combinação de resultados de VSM e XMCD com a finalidade de estimar o momento induzido na Pt por proximidade. Além disso, realizamos uma análise da estrutura da interface, por refletividade de raios X (XRR), para entender a relação entre estrutura e propriedades magnéticas nas amostras ultrafinas. Este estudo é apresentado no capítulo 3.

1.3.3 Interação DM e efeito de proximidade negativo em multicamadas assimétricas com Pt

No capítulo 2 investigamos o impacto do aditivo de interação DM e EPM negativo na formação de domínios e nas propriedades magnéticas. Agora, buscamos estudar estes mesmos aspectos, mas utilizando uma camada FM mais espessa e materiais de diferentes ASO.

A hipótese é que um FM mais espesso acarretará na modificação da intensidade dos efeitos interfaciais comparada as observadas no capítulo 2. Esperamos isto principalmente por os dois MP envolvidos serem diferentes e pelo FM ser mais espesso. Como estes fenômenos são interfaciais, a espessura do FM deve impactar bastante. O uso de FM mais espesso, possivelmente com menor rugosidade, permitirá ressaltar os efeitos da variação do MP. O objetivo é investigar a adição sistemática de interação DM e a redução da M_s na formação de domínios com interface FM mais ordenada.

De forma análoga ao desenvolvido no capítulo 2, desenvolvemos um outro sistema assimétrico. Selecionamos uma amostra do conjunto Pt/Co/Pt e a tornamos assimétrica. Escolhemos a amostra de Co 1,0 nm, a qual já apresenta a formação de uma camada contínua. Para tornar o sistema assimétrico inserimos outro metal pesado, o Hf, na interface superior Co/Pt. Realizamos a variação da espessura com a finalidade de ajustar os efeitos interfaciais. Neste caso, desenvolvemos amostras com espessuras finas de Hf (0,4-1,0 nm) para observar os efeitos interfaciais, e também amostras com camadas mais espessas de Hf (2,0-4,0 nm) para verificar a saturação dos efeitos e se o Hf pode agir como espaçador.

Assim como o W, o Hf apresenta um efeito de proximidade negativo [12], permitindo reduzir a magnetização de saturação. Esta redução é almejada principalmente por permitir maiores velocidades de propagação de paredes de domínios, assim como a redução do efeito Hall de skyrmion (SkyHE) [25, 26, 27]. Um problema ao reduzir a M_s é a perda de AMP e da formação de domínios perpendiculares. É possível manter a AMP e a formação de domínios explorando o EPM negativo do Hf para reduzir M_s ? No caso de movimentação de skyrmions, a redução da magnetização de saturação contribuiria para minimização do SkyHE, mas também é necessário que o sistema permita a estabilização dos skyrmions.

Além disso, o Hf em interface com o Co possui o sinal oposto da interação DM do que a Pt, permitindo assim construir um sistema aditivo de interação DM. A presença da interação DM, além de estabilizar estruturas quirais também favorece a velocidade de propagação de paredes de domínios [25]. O incremento no valor da interação DM contribui linearmente com a velocidade de propagação da parede de domínio. Sendo assim, o Hf é um bom candidato para ser aplicado neste estudo, pois permite uma redução da magnetização devido ao seu EPM negativo e também um aumento na interação DM por formar um sistema aditivo.

Não investigamos a dinâmica de domínios e de skyrmions nesta tese, mas analisamos os aspectos dos parâmetros para que futuros estudos possam ser realizados. Anali-

samos a formação de domínios por MFM e STXM, e as propriedades magnéticas por VSM. Este estudo é apresentado no capítulo 4.

2 ARTIGO 1: MAGNETIC DOMAIN SIZE TUNING IN ASYMMETRIC Pd/Co/W/Pd MULTILAYERS WITH PERPENDICULAR MAGNETIC ANISOTROPY

Este trabalho foi publicado em: Appl. Phys. Lett. 115, 182408 (2019).

DOI: <https://doi.org/10.1063/1.5123469>. O trabalho segue as normas e a formatação original da revista na qual foi publicado.

Magnetic domain size tuning in asymmetric Pd/Co/W/Pd multilayers with perpendicular magnetic anisotropy

D. A. Dugato,^{1,2} J. Brandão,² R. L. Seeger,¹ F. Béron,³ J. C. Cezar,² L. S. Dorneles,¹ and T. J. A. Mori²

¹*Departamento de Física, Universidade Federal de Santa Maria, 97105-900 Santa Maria RS, Brazil*

²*Laboratório Nacional de Luz Síncrotron, Centro Nacional de Pesquisa em Energia e Materiais, 13083-970 Campinas SP, Brazil*

³*Instituto de Física Gleb Wataghin, Universidade Estadual de Campinas, 13083-859 Campinas SP, Brazil*

Magnetic multilayers presenting perpendicular magnetic anisotropy (PMA) have great potential for technological applications. On the path to develop further magnetic devices, one can adjust the physical properties of multilayered thin films by modifying their interfaces, thus determining the magnetic domain type, chirality and size. Here, we demonstrate the tailoring of the domain pattern by tuning the perpendicular anisotropy, the saturation magnetization, and the interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction (iDMI) in Pd/Co/Pd multilayers with the insertion of an ultrathin tungsten layer at the top interface. The average domain size decreases around 60% when a 0.2 nm thick W layer is added to the Co/Pd interface. Magnetic force microscopy images and micromagnetic simulations were contrasted to elucidate the mechanisms that determine the domain textures and sizes. Our results indicate that both iDMI and PMA can be tuned by carefully changing the interfaces of originally symmetric multilayers, leading to magnetic domain patterns promising for high density magnetic memories.

The precise control of the nucleation processes of magnetic domain patterns is essential to achieve adequate functionality and performance for modern technologies. Much progress has been achieved recently as the stabilization of chiral structures such as skyrmions has been demonstrated either in nanostructures or in multilayer thin films presenting perpendicular magnetic anisotropy (PMA), even at room temperature and zero magnetic field¹⁻⁴. Mainly being observed in systems with ferromagnetic/heavy metal (FM/HM) interfaces, which can easily be integrated in current technologies, these achievements have opened an avenue towards the use of PMA multilayers in future spintronics devices⁵. Indeed, PMA multilayers are a very fertile ground for studying magnetic interactions, since several physical properties of the FM/HM interface can be tuned in order to tailor the magnetic domain pattern. However, the role of these magnetic interactions in determining the domain's properties must be well understood before further magnetic device development⁶⁻⁸.

Magnetic anisotropy (K), saturation magnetization (M_s) and exchange stiffness (A_{ex}) determine magnetic domain wall type (Néel or Bloch), chirality and size. Their role on the magnetic configuration establishment in PMA multilayers has been studied for years⁹⁻¹⁴. More recently, the observation that magnetic skyrmions may be stabilized by Dzyaloshinskii-Moriya interaction (DMI), arising from broken inversion symmetry¹⁵ and spin orbit coupling (SOC) in the case of FM/HM interfaces¹⁶, has given the DMI a major role in the study of domain wall patterns^{17,18}.

In this sense, several combinations of FM and HM have been tried to fabricate asymmetric PMA multilayers ($\text{HM}_A/\text{FM}/\text{HM}_B$) searching for specific conditions to host chiral skyrmions preferably stabilized at room temperature and small magnetic fields^{12,16,19-21}. On the other hand, small asymmetries introduced to originally symmetric multilayers have also been demonstrated to be a good strategy to tune the DMI in PMA multilayers²²⁻²⁴.

Here, we tune the magnetic properties of originally symmetric Pd/Co/Pd multilayers by inserting an ultrathin W layer in the system top interface (Pd/Co/W/Pd). The PMA presents a minimum when an ultrathin W layer is inserted. Using magnetic force microscopy (MFM) images acquired at the as-grown state, alongside with micromagnetic simulations, we show that the respective interfacial DMI (iDMI) is around three times higher than observed for thicker W layers or the reference symmetric Pd/Co/Pd. This strategy allow us to obtain a 60% decrease in average domain size at room temperature, demonstrating an important

route to tune magnetic multilayers for high density magnetic memory devices.

To study the magnetic domain pattern evolution with a varying asymmetry at the Co/Pd top interface, we grew multilayers based on a Pd(1 nm)/Co(0.5 nm)/W(*t*)/Pd(1 nm) structure, with a nominal thickness *t* = 0, 0.1, 0.2, 0.3 or 1.0 nm. The multilayers were deposited on silicon substrates by magnetron sputtering from metallic targets, at room temperature and 3 mTorr of argon atmosphere, and repeated 15 times [Fig. 1(a)].

Saturation magnetization and anisotropy field (H_k) were extracted from magnetic hysteresis curves measured in a LakeShore vibrating sample magnetometer (VSM), yielding the perpendicular anisotropy constant value, $K_{\text{eff}} = M_s H_k / 2^{10}$. Magnetic domain pattern images of as-grown multilayers were acquired by magnetic force microscopy (MFM) with a NanoSurf Flex scanning probe microscope operating on the dynamic force mode. We used Multi75-G MFM (75 kHz) tips from Budget Sensors, which are coated by a cobalt alloy presenting magnetic moment and coercivity of roughly 10^{-16} Am² and 0.03 T, respectively. The images were acquired at room temperature and zero magnetic field, with tip-surface distance about 60 nm. The magnetic domain homogeneity was confirmed through the observation of 5 images over distances of 1 mm between them. In addition, the experimental MFM images were compared with those obtained by micromagnetic simulations.

For the modelling, we used the Mumax3 GPU-accelerated program to solve the time-dependent Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) equation to obtain the relaxation of the magnetization distribution²⁵. The micromagnetic simulations were performed on an area of $5 \times 5 \mu\text{m}^2$ discretized in cells of $3 \times 3 \times 7.5 \text{ nm}^3$ and using an effective medium approach to model the multilayer film as a single uniform layer²⁶. The M_s and K_{eff} values extracted from the VSM measurements served as input, while we varied the iDMI contribution to understand its influence on the domain pattern formation without applied magnetic field. Starting with a random initial magnetization, the equilibrium condition was obtained by minimizing the LLG energy terms with a relaxation time of 100 ns. The magnetic ground state represents the domain stability for each set of magnetic parameters. The energy of the effective iDMI was evaluated by comparing the simulated ground states with the corresponding MFM images using a methodology similar to what has been reported in the recent literature^{4,16,19,27,28}.

Both out-of-plane and in-plane magnetic hysteresis loops indicate that all the multilayers present perpendicular magnetic anisotropy [Figs. 1(b-c)]. The extracted experimental values

$M_s \sim 545 \text{ kAm}^{-1}$ and $K_{\text{eff}} \sim 0.2 \text{ MJm}^{-3}$, observed for the reference sample, are in accordance with values found in the literature for Pd/Co/Pd multilayers²⁹. While the reference sample exhibits out-of-plane remanence very close to M_s , the remanence decreases for a very thin (0.1-0.2 nm thick) W layer and increases again, recovering a loop with nearly full remanence for the sample with 1 nm W layer.

The W layer insertion leads to a saturation magnetization decrease, estimated by considering the entire Co volume [Fig. 1(d)]. The decline of the total magnetic moment may arise mainly from two coexisting mechanisms: 1) the formation of a magnetic dead layer due to alloying or interdiffusion at the interface³⁰, and 2) the reduction of magnetic proximity effect contribution to magnetization since, contrary to Pd, the spin and orbital magnetic moments of W may couple antiparallel to 3d metals³¹. Besides, both H_k and K_{eff} exhibit a minimum value for $t = 0.2 \text{ nm}$ [Fig. 1(e)], even though M_s decreases for thicker W layers. This PMA reduction with ultrathin W layer insertion can arise from an irregular Co/W-Pd interface, since such a thin layer should not percolate and can generate roughness instead. A rough Co/Pd interface is known to lessen the interface anisotropy and, consequently, the PMA³². At the same time, such a discontinuous W-Pd layer may lead to competing interfacial effects as Co/W and Co/Pd interfaces should behave differently. This scenario can also contribute to lower the PMA since the CoPd alloying, which is known to contribute to the strong anisotropy in Co/Pd multilayers³³, is restricted by the coexistence of W along the interface.

Without W layer, the MFM image shows a pattern of stripes and skyrmions-like circular domains that is normally observed in Co/Pd multilayers with thin Co thicknesses [Fig. 2(a)]^{34,35}. However, small labyrinth domains arise and the domain density increases significantly for $t = 0.2 \text{ nm}$, reaching a magnetic domain periodicity (λ) of about 280 nm [Fig. 2(b-c)]. Hereafter we define λ as the distance between two adjacent peaks in the magnetization profile, and domain size as the full width at half maximum of a peak. While this system presents the lowest K_{eff} value along with a M_s average value, increasing to 0.3 nm W layer yields to a slightly larger K_{eff} combined to a M_s decrease of around 25%, resulting in both domain size and periodicity enlargement [Fig. 2(d)]. The domain size continues to increase for $t = 1 \text{ nm}$, as the saturation magnetization continues decreasing [Fig. 2(e-f)]. In this case, the domain shape is similar to the reference sample, with a large periodicity of 670 nm and

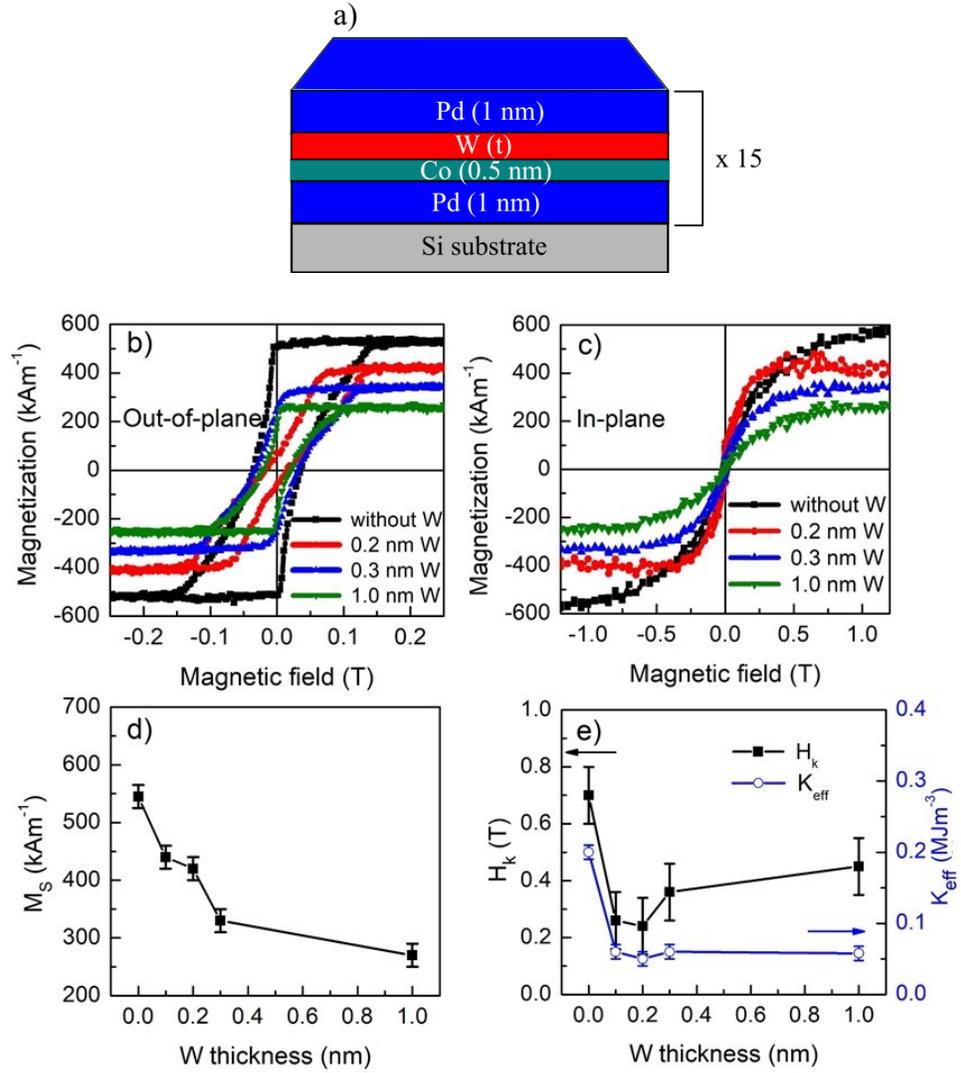


Figure 1. Multilayer structure and magnetic properties. (a) Structure schematic. (b, c) Hysteresis loops recorded with the magnetic field applied along the out-of-plane and in-plane directions, respectively. (d) Saturation magnetization, (e, black squares) anisotropy field and (e, open blue circles) anisotropy constant as a function of the W layer thickness.

a domain density $\sim 60\%$ lower than with 0.2 nm W layer.

In order to verify the role of the magnetic parameter in the magnetic domain pattern formation, we carried out micromagnetic simulations using the Mumax3 code. In a first attempt, we only used the experimental values extracted from the magnetization curves

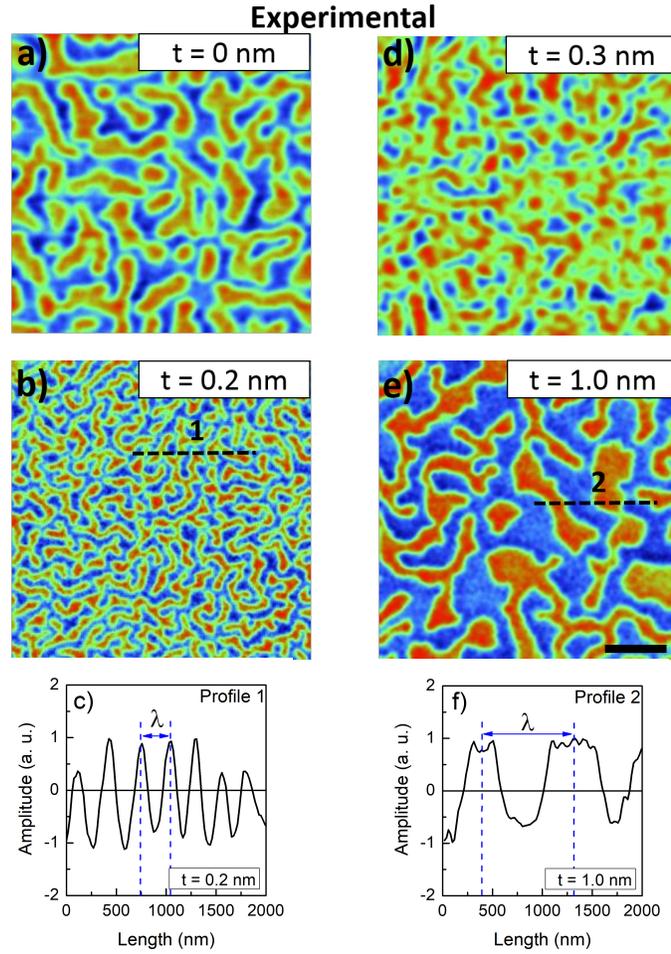


Figure 2. Experimental magnetic force microscopy images acquired with zero magnetic field. (a, b, d, e) Pd/Co/Pd reference sample and multilayers with 0.2, 0.3 and 1.0 nm of W at the Co/Pd interface, respectively. (c, f) MFM profile measured along the straight lines highlighted on the MFM images in (b, e), respectively, where the periodicity λ is defined as the distance between two adjacent peaks. The scale bar in the images is $1 \mu\text{m}$, and the color scale ranges from blue (amplitude -1, magnetization downwards) to red (amplitude +1, magnetization upwards).

for K_{eff} and M_s , a fixed exchange stiffness $A = 12 \times 10^{-12} \text{ Jm}^{-1}$, and damping $\alpha = 0.3$. These preliminary simulated domain patterns exhibited distinct ground states than the ones observed in the measured MFM images, mainly for the samples with ultrathin (0.1 and 0.2 nm) W layer. To reproduce the main features of the experimental images, a non-null

interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction - within 0.3 and 1.3 mJm^{-2} - had to be added to the simulated system.

A very good agreement with the experimental images is achieved with the additive iDMI, even for the nominally symmetric Pd/Co/Pd sample (Fig. 3). Although it should have a null iDMI in the ideal case, where the bottom and top interfaces contribute with same amplitude but opposite sign, as represented in Fig. 4(a), the different qualities between the Pd/Co and Co/Pd interfaces may lead to small values of iDMI^{4,36,37}. On the other side, the combination of a bottom Pd/Co with a top Co/W interface is expected to yield a resulting negative iDMI [Fig. 4(b)]. This situation is similar to the iDMI reported for the Ru/Co/W system²⁴, since both Co/Pd and Co/Ru interfaces present the same signal and similar amplitudes of iDMI³⁸. Indeed, in the case of Ru/Co/W/Ru with varying W thickness, an iDMI peak has also been reported when the W thickness is about 0.2 nm ²⁴. In reference²⁴ the authors studied quasi-symmetric multilayers with non-null iDMI focused on the isolated skyrmions nucleation and its behavior in the presence of an out-of-plane magnetic field. Here, we show that the interface engineering strategy of adding a “dusting” interlayer at the FM/HM interface can also be used to tune the magnetic domain size of worm-like patterns at zero magnetic field.

According to our micromagnetic simulations, the small iDMI observed for the symmetric sample rises about 3 times with the insertion of an ultrathin layer of W ($0.1\text{-}0.2 \text{ nm}$) at the top interface, as it is shown in Fig. 4(c). It is very interesting that a further minor increase in the W layer thickness (0.3 nm) leads to an iDMI almost as small as for the reference sample value. Note that this iDMI peak occurs for the same W thickness than the observed anisotropy minimum [see Fig. 1(e)]. The iDMI decline for thicker W layers is suggested to be due to the magnetic dead layer present when the W forms a continuous layer, which leads to the ferromagnetic layer degradation^{24,30}. The thicker dead layer diminishes the orbital hybridization and consequently the SOC and magnetic exchange in both interfaces, which are important ingredients required for a strong iDMI³⁹. Notwithstanding, the formation of very distinct domain patterns in the $0.1\text{-}0.2 \text{ nm}$ range of W occurs due to atypically low K_{eff} values and an additive iDMI. Indeed, the geometric properties such as domain size and periodicity also present discrepant values in this range [Fig. 4(d-g)]. Similarly to the results reported in reference³⁰, here it is also likely that the small ratios between PMA and iDMI lead to smaller domain sizes as a result of the reduced energy of domain walls⁴⁰.

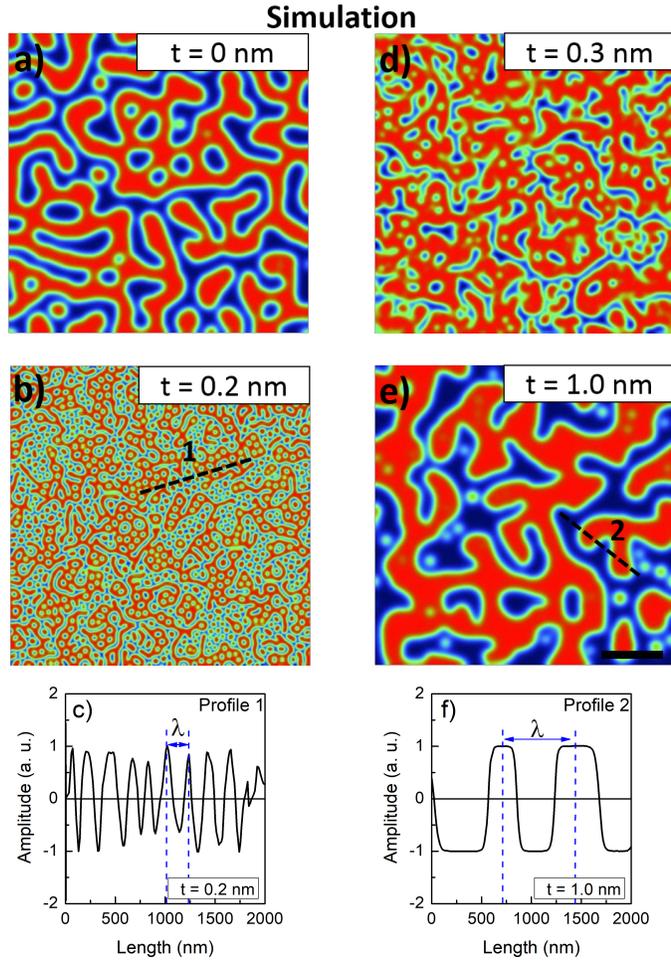


Figure 3. Zero magnetic field micromagnetic simulated domain patterns with M_s and K_{eff} taken from VSM, and non-null iDMI. (a, b, d, e) Pd/Co/Pd reference sample and multilayers with 0.2, 0.3 and 1.0 nm of W at the Co/Pd interface, respectively. (c, f) MFM profile measured along the straight lines highlighted on the MFM images in (b, e), respectively. The scale bar in the images is $1 \mu\text{m}$, and the color scale ranges from blue (amplitude -1, magnetization downwards) to red (amplitude +1, magnetization upwards).

In conclusion, we investigated the influence of a W layer, inserted at the top interface of a nominally symmetric Pd/Co/Pd multilayer, on the physical properties of the ferromagnetic Co layer as a function of its thickness. From hysteresis loops we extracted the saturation magnetization M_s , anisotropy field H_k and hence the perpendicular magnetic anisotropy

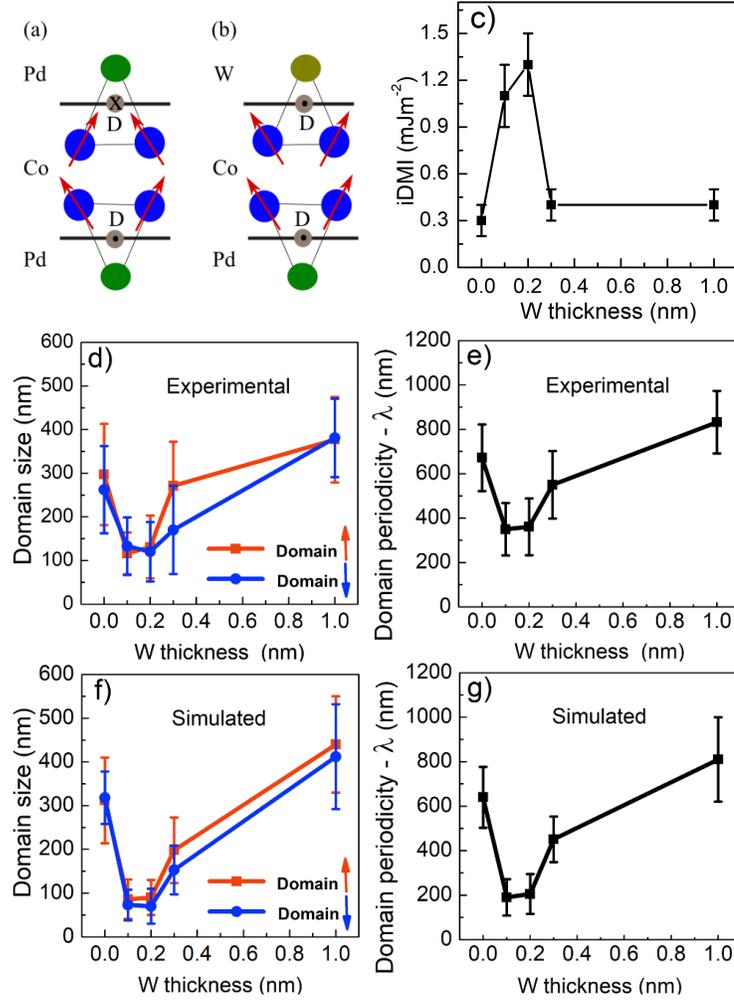


Figure 4. Illustration of the resulting iDMI (D) in both a (a) Pd/Co/Pd and a (b) Pd/Co/W trilayer. (c) Dependence of the iDMI on the W thickness. (d, e) Domain size and periodicity, respectively, extracted from the experimental MFM images. For each sample, the values are averaged with a sampling of 25 line profiles (5 from each acquired image). (f, g) Domain size and periodicity, respectively, extracted from the simulated images. The domain size is estimated for both up and down domains.

K_{eff} . Both the M_s and the K_{eff} decay for thicker W layers. Most notable, a minimum of the anisotropy is observed with the insertion of an ultrathin 0.2 nm thick W layer.

MFM images were acquired to obtain the magnetic domain patterns at zero field and room temperature. Labyrinth domains were imaged revealing a strong dependence of size

and periodicity on the W thickness. In particular, a domain size decrease of around 60% was obtained at 0.2 nm W , which coincides with the minimum perpendicular anisotropy indicating that the physical properties of the multilayers play direct role on the features of the magnetic domains.

To understand the magnetic domain formation, micromagnetic simulations were carried out and the results compared with the experimental findings. By adjusting the physical parameters obtained for each W thickness in the modelling, the experimental observations were reproduced by taking into account the interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction. The iDMI reaches a peak at 0.2 nm W and is remarkably reduced for thicker W layers. Very important, the small ratio between PMA and iDMI within the W thickness range 0.1-0.2 nm leads to very small domain sizes which can be interesting for applications such as high density hard disk drives. The strategy of tuning magnetic domains by changing the interfaces of originally symmetric multilayers is promising on the path to develop devices based on skyrmions and chiral domain walls.

This study was financed in part by the Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior - Brasil (CAPES) - Finance Code 001, by the Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo - São Paulo, Brasil (FAPESP) - Project No. 2012/51198-2, and by the Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico - Brasil (CNPq). J.C.C., L.S.D. and F.B. acknowledge grants provided by CNPq: Projects No. 309354/2015-3, 302950/2017-6 and 436573/2018-0, respectively. F.B. acknowledge grant by FAPESP: 2017/10581-1. The samples were grown at the Microfabrication Laboratory - Brazilian Nanotechnology National Laboratory (LNNano). The micromagnetic simulations were carried out at the high performance computing facilities of the Brazilian Synchrotron Light Laboratory (LNLS) under project No. 20180577.

REFERENCES

- ¹A. Hrabec, J. Sampaio, M. Belmeguenai, I. Gross, R. Weil, S. M. Chérif, A. Stashkevich, V. Jacques, A. Thiaville, and S. Rohart, *Nat. Commun.* **8**, 15765 (2017).
- ²O. Boulle, J. Vogel, H. Yang, S. Pizzini, D. D. S. Chaves, A. Locatelli, T. O. Mendes, A. Sala, L. D. Buda-Prejbeanu, O. Klein, M. Belmeguenai, Y. Roussigné, A. Stashkevich,

- S. M. Chérif, L. Aballe, M. Foerster, M. Chshiev, S. Auffret, I. M. Miron, and G. Gaudin, *Nat. Nanotechnol.* **11**, 449–454 (2016).
- ³A. Fert, V. Cros, and J. Sampaio, *Nat. Nanotechnol.* **8**, 152–156 (2013).
- ⁴J. Brandão, D. A. Dugato, R. L. Seeger, J. C. Denardin, T. J. A. Mori, and J. C. Cezar, *Sci. Rep.* **9**, 4144 (2019).
- ⁵S. S. P. Parkin, M. Hayashi, and L. Thomas, *Science* **320**, 190–194 (2008).
- ⁶S. N. Piramanayagam, *J. Appl. Phys.* **102**, 011301 (2007).
- ⁷D. A. Allwood, G. Xiong, C. C. Faulkner, D. Atkinson, D. Petit, and R. P. Cowburn, *Science* **309**, 1688–1692 (2005).
- ⁸C. I. L. de Araujo, J. C. S. Gomes, D. Toscano, E. L. M. Paixão, P. Z. Coura, F. Sato, D. V. P. Massote, , and S. A. Leonel, *Appl. Phys. Lett.* **114**, 212403 (2019).
- ⁹A. Barman, *J. Appl. Phys.* **101**, 09D102 (2007).
- ¹⁰B. Zhang, A. Cao, J. Qiao, M. Tang, K. Cao, X. Zhao, S. Eimer, Z. Si, N. Lei, Z. Wang, X. Lin, Z. Zhang, M. Wu, and W. Zhao, *Appl. Phys. Lett.* **110**, 012405 (2017).
- ¹¹K. Shahbazi, A. Hrabec, S. Moretti, M. B. Ward, T. A. Moore, V. Jeudy, E. Martinez, and C. H. Marrows, *Phys. Rev. B* **98**, 214413 (2018).
- ¹²M. Belmeguenai, J.-P. Adam, Y. Roussigné, S. Eimer, T. Devolder, J.-V. Kim, S. M. Cherif, A. Stashkevich, and A. Thiaville, *Phys. Rev. B* **91**, 180405(R) (2015).
- ¹³S. Srivastava, K. Sivabalan, J. H. Kwon, K. Yamane, H. Yang, N. L. Chung, J. Ding, K. L. Teo, K. Lee, and H. Yang, *Appl. Phys. Lett.* **114**, 172405 (2019).
- ¹⁴G. Wei, X. Lin, Z. Si, N. Lei, Y. Chen, S. Eimer, and W. Zhao, *Appl. Phys. Lett.* **114**, 012407 (2019).
- ¹⁵S. Mühlbauer, B. Binz, F. Jonietz, C. Pfleiderer, A. Rosch, A. Neubauer, R. Georgii, and P. Böni, *Science* **323**, 915–919 (2009).
- ¹⁶C. Moreau-Luchaire, C. Moutafis, N. Reyren, J. Sampaio, C. A. F. Vaz, N. V. Horne, K. Bouzehouane, K. Garcia, C. Deranlot, P. Warnicke, P. Wohlhüter, J.-M. George, M. Weigand, J. Raabe, V. Cros, and A. Fert, *Nat. Nanotechnol.* **11**, 444–448 (2016).
- ¹⁷I. Dzyaloshinsky, *J. Phys. Chem. Sol.* **4**, 241–255 (1958).
- ¹⁸T. Moriya, *Phys. Rev.* **120**, 91–98 (1960).
- ¹⁹A. Soumyanarayanan, M. Raju, A. L. G. Oyarce, A. K. C. Tan, M.-Y. Im, A. P. Petrović, P. Ho, K. H. Khoo, M. Tran, C. K. Gan, F. Ernult, and C. Panagopoulos, *Nat. Mater.* **16**,

- 898–904 (2017).
- ²⁰J.-Y. Chauleau, W. Legrand, N. Reyren, D. Maccariello, S. Collin, H. Popescu, K. Bouzehouane, V. Cros, N. Jaouen, and A. Fert, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 037202 (2019).
- ²¹H. L. T. Lin, S. Poellath, Y. Zhang, B. Ji, N. Lei, J. J. Yun, L. Xi, D. Z. Yang, T. Xing, Z. L. Wang, L. Sun, Y. Z. Wu, L. F. Yin, W. B. Wang, J. Shen, J. Zweck, C. H. Back, Y. G. Zhang, and W. S. Zhao, *Phys. Rev. B* **98**, 174425 (2018).
- ²²R. Tolley, S. A. Montoya, and E. E. Fullerton, *Phys. Rev. Mater.* **2**, 044404 (2018).
- ²³A. Hrabec, N. A. Porter, A. Wells, M. J. Benitez, G. Burnell, S. McVitie, D. McGrouther, T. A. Moore, and C. H. Marrows, *Phys. Rev. B* **90**, 020402 (2014).
- ²⁴A. Samardak, A. Kolesnikov, M. Stebliy, L. Chebotkevich, A. Sadovnikov, S. Nikitov, A. Talapatra, J. Mohanty, and A. Ognev, *Appl. Phys. Lett.* **112**, 192406 (2018).
- ²⁵A. Vansteenkiste, *AIP Adv.* **4**, 107133 (2014).
- ²⁶S. Honda, Y. Ikegawa, and T. Kusuda, *J. Magn. Magn. Mater.* **111**, 273–292 (1992).
- ²⁷A. V. Davydenko, A. G. Kozlov, A. G. Kolesnikov, M. E. Stebliy, G. S. Suslin, Y. E. Vekovshinin, A. V. Sadovnikov, and S. A. Nikitov, *Phys. Rev. B* **99**, 014433 (2019).
- ²⁸S. Woo, K. Litzius, B. Kruger, M.-Y. Im, L. Caretta, K. Richter, M. Mann, A. Krone, R. M. Reeve, M. Weigand, P. Agrawal, I. Lemesh, M.-A. Mawass, P. Fischer, M. Klaui, and G. S. D. Beach, *Nat. Mat.* **15**, 501–507 (2016).
- ²⁹B. Tudu, K. Tian, and A. Tiwari, *Sensors* **17**, 2743 (2017).
- ³⁰A. G. Kolesnikov, A. V. Ognev, M. E. Stebliy, L. A. Chebotkevich, A. V. Gerasimenko, and A. S. Samardak, *J. Magn. Magn. Mater.* **454**, 78–84 (2018).
- ³¹F. Wilhelm, P. Pouloupoulos, A. Scherz, H. Wende, K. Baberschke, M. Angelakeris, N. K. Flevaris, J. Goulon, and A. Rogalev, *Phys. Stat. Sol. (a)* **196**, 33–36 (2003).
- ³²C. W. Barton, T. J. A. Slater, R. M. Rowan-Robinson, S. J. Haigh, D. Atkinson, and T. Thomson, *J. Appl. Phys.* **116**, 203903 (2014).
- ³³S.-K. Kima, V. A. Chernov, and Y.-M. Koo, *J. Magn. Magn. Mater.* **170**, L7–L12 (1997).
- ³⁴H. Chihaya, M. Kamiko, and R. Yamamoto, *J. Appl. Phys.* **100**, 113707 (2016).
- ³⁵W. Legrand, D. Maccariello, N. Reyren, K. Garcia, C. Moutafis, C. Moreau-Luchaire, S. Collin, K. Bouzehouane, V. Cros, and A. Fert, *Nano Lett.* **17**, 2703–2712 (2017).
- ³⁶M. Quinsat, Y. Ootera, T. Shimada, M. Kado, S. Hashimoto, H. Morise, S. Nakamura, and T. Kondo, *AIP Adv.* **7** (2017).

- ³⁷A. W. J. Wells, P. M. Shepley, C. H. Marrows, and T. A. Moore, *Phys. Rev. B* **95**, 054428 (2017).
- ³⁸Y.-K. Park, D.-Y. Kim, J.-S. Kim, Y.-S. Nam, M.-H. Park, H.-C. Choi, B.-C. Min, and S.-B. Choe, *NPG Asia Mater.* **10**, 995–1001 (2018).
- ³⁹S. Kim, K. Ueda, G. Go, P.-H. Jang, K.-J. Lee, A. Belabbes, A. Manchon, M. Suzuki, Y. Kotani, T. Nakamura, K. Nakamura, T. Koyama, D. Chiba, K. T. Yamada, D.-H. Kim, T. Moriyama, K.-J. Kim, and T. Ono, *Nat. Commun.* **9**, 1648 (2018).
- ⁴⁰A. Thiaville, S. Rohart, Émilie Jué, V. Cros, and A. Fert, *Europhys. Lett.* **100**, 5 (2012).

3 ARTIGO 2: MAGNETIC PROXIMITY EFFECT AT Pt/Co INTERFACES AND ISOLATED SKYRMIONS BUBBLES STABILIZATION AT ZERO FIELD

Este trabalho foi submetido para publicação. O trabalho segue as normas e a formatação original da revista Physical Review Applied.

Magnetic proximity effect at Pt/Co interfaces and isolated skyrmion bubble stabilization at zero magnetic field

Danian A. Dugato,^{1,2} Jeovani Brandão,² Fanny Béron,³ Ricardo B. da Silva,¹ Samuel Flewett,⁴ David A. Shapiro,⁵ Julio C. Cezar,² Lucio S. Dorneles,¹ and Thiago J. A. Mori²

¹*Departamento de Física, Universidade Federal de Santa Maria, 97105-900 Santa Maria RS, Brazil*

²*Laboratório Nacional de Luz Síncrotron, Centro Nacional de Pesquisa em Energia e Materiais, 13083-970 Campinas SP, Brazil*

³*Instituto de Física Gleb Wataghin, Universidade Estadual de Campinas, 13083-859 Campinas SP, Brazil*

⁴*Instituto de Física, Pontificia Universidad Católica de Valparaíso, Avenida Universidad 330, Valparaíso, Chile*

⁵*Advanced Light Source, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, CA 94720, USA*

Magnetic multilayers with heavy metal/ferromagnetic interfaces play a crucial role in data storage and spintronics due to magnetic phenomena such as perpendicular magnetic anisotropy (PMA) and magnetic skyrmion stabilization. Properties such as saturation magnetization (M_s), PMA, and interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction (iDMI) can be tuned by stacking engineering to tailor the multilayer magnetic ground state. Here, we show that isolated skyrmion bubbles can be stabilized at zero magnetic field in nominally symmetric Pt/Co/Pt multilayers grown by magnetron sputtering. Interface disorder and asymmetry are strongly enhanced as the Co layer is thinned, leading to nonzero iDMI and Pt proximity induced moment that affects both the multilayer M_s and PMA. The interplay between magnetic proximity effect (MPE) and the iDMI is behind the nucleation of skyrmion bubbles, highlighting the importance of controlling the interface phenomena to develop devices for future applications. Our results also demonstrate the importance of considering the MPE to determine the real magnetic parameters of ultrathin films.

I. INTRODUCTION

Magnetic phenomena arising at the ferromagnetic/non magnetic (FM)/(NM) interface have been considered to play important roles on the efficient spin transport¹⁻⁴, spin pumping⁵⁻⁸, and fast chiral domain wall motion⁹⁻¹¹. Among different interactions, the interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction (iDMI)^{12,13}, i.e. an antisymmetric exchange, emerges in broken inversion symmetry systems such as Pt/Co/Ta¹⁴, Pt/Fe/Co/Ir¹⁵, Pt/Co/W¹⁶, and Ir/Co/Pt¹⁷, both in thin films and multilayers. While its strength depends upon the spin-orbit coupling (SOC) associated with the non-magnetic heavy metal material¹⁸, its sign is defined by the trilayer composition. For instance, Pt/Co/Ta and Ta/Co/Pt acquire opposite iDMI signs. The iDMI competes with symmetric exchange and perpendicular magnetic anisotropy (PMA) in stabilizing nanoscale magnetic structures including spin spirals and skyrmions. Therefore, the fine-tuning of the magnetic energy in these interfaces is crucial to determine the magnetic ground state.

As important as iDMI, the magnetic proximity effect (MPE) emerges when heavy metals are in contact with ferromagnets due to the electronic hybridization between 3d - (4d, 5d) electrons. It has been estimated and correlated with chiral domain wall motion¹⁹, hence as a possible mechanism driving the iDMI at FM/NM interfaces¹⁸. However, this hypothesis has been explored in Co/Pt systems spaced by thin Ir layers, showing that no correlation between iDMI and MPE exists, since the iDMI is still measurable even when the MPE is lost²⁰. On the other hand, the non-negligible MPE in layers of heavy metals such as Pt, with induced atomic moments of $\sim 0.3 \mu_B$, has not been properly taken into account during the evaluation of the sample effective saturation magnetization (M_s). This parameter shows micromagnetic influences on the spin spirals and the skyrmion size and stability^{8,17,21}. It draws one's attention to address whether the MPE plays an additional role on the formation of chiral domain structures such as skyrmions, especially in multilayered systems in which the induced magnetic moment can be summed up according to the number of FM/NM interfaces.

Here, we report on the investigation of the influence of the Pt proximity induced moment (PIM) on the saturation magnetization in Pt/Co_x based multilayers with varying Co thickness, by combining vibrating sample magnetometry and X-ray magnetic circular dichroism (XMCD). We observe an unexpected enhancement of the MPE as the Co thickness reduces,

which leads to modified M_s and hence PMA. Magnetic force microscopy (MFM) images were acquired at room temperature and zero magnetic field, revealing a clear transition from disordered magnetic stripes for thicker Co layers to isolated skyrmion bubbles for the thinnest Co layer. In addition, magnetic domain images were obtained by soft X-ray scanning transmission microscopy (STXM), indicating that the skyrmion bubbles stabilized at zero-field and room temperature maintain their shape format across the whole Co depth profile. Both M_s and PMA play important roles in driving the magnetic domain formation. To separate and understand their respective influence, micromagnetic simulations of the imaged magnetic domains were performed. We found that the observed domain structures are only reproduced by considering the MPE while estimating the M_s and PMA values used in the micromagnetic modeling. Moreover, the zero-field skyrmion bubbles are stabilized taking into account non-vanishing iDMI values, shedding light on the interplay between MPE and iDMI in determining the stability of chiral magnetic structures. These results highlight the control of interface phenomena as of fundamental importance in developing future devices for applications such as data storage and racetrack memory²²⁻²⁶.

II. RESULTS AND DISCUSSION

A. Magnetic domain pattern and skyrmion nucleation

In previous studies, we demonstrated that isolated skyrmions can be obtained at zero magnetic field in symmetric Pd/Co/Pd multilayers by thinning the ferromagnetic layer²¹. In these cases, the modulation of iDMI and spin spirals can be acquired by the insertion of an ultrathin W layer at the Co/Pd interfaces⁸. The skyrmion stability and iDMI modulation were explained in terms of the fine-tuning of magnetic parameters such as the low iDMI energy (0.4 - 0.6 mJ/m²) that arises from structural asymmetries in sputtering-grown samples. Here, we demonstrate that Pt/Co/Pt multilayers can also behave similarly. We discuss the evolution of the magnetic properties in samples presenting 15 repetitions of the Pt (1 nm)/Co (t_{Co})/Pt (1 nm) trilayer [Fig. 1(a)] as the cobalt thickness t_{Co} varies from 0.5 to 1.5 nm. The multilayers were grown by magnetron sputtering from metallic targets.

Magnetic force microscopy (MFM) images verify the sample magnetic domain pattern. We carried out these measurements at room temperature on a NanoSurf Flex scanning probe

microscope (SPM) operating in the dynamic force mode, with Multi75-G MFM (75 kHz) tips from Budget Sensors. The tip magnetic moment and coercivity are roughly 10^{-16} Am² and 24 kA/m, respectively, and they were kept around 60 nm above the sample surface. For each sample, we acquired 10 images from different regions over distances of ~ 1 mm to confirm the homogeneity of the domain patterns. MFM images are shown in Figs. 1(b-e). All images were acquired at the remnant state.

Starting from thicker samples, the MFM images exhibit patterns of thin stripes culminating in the disordered labyrinth state for Co 1.0 nm as observed in Fig. 1(b). The sample Co 0.8 nm [Fig. 1(c)] presents magnetic domains also forming stripes, but larger ones. From this point, further decreasing the Co thickness drastically changes the domain patterns as can be seen for sample Co 0.6 nm [Fig. 1(d)], which exhibits a few isolated skyrmion bubbles. Finally, the MFM image from sample Co 0.5 nm [Fig. 1(e)] demonstrates a state dominated by isolated skyrmions with random distribution. Here it is important to mention that the spatial position of each skyrmion stabilization can be affected by structural defects that lead to local pinning mechanisms²⁷. By analyzing the 10 MFM images acquired from sample Co 0.5 nm, the average skyrmion size (full width at half maximum of its line profile) is 390 nm and the average skyrmion density is about $1 \mu\text{m}^{-2}$.

To confirm the nature of these isolated skyrmions observed in Fig. 1(e), STXM was performed at zero-field for a twin Co 0.5 nm multilayer grown onto a silicon nitride (Si₃N₄) membrane. The images were acquired at beamline 7.0.1.2 (COSMIC) of the Advanced Light Source^{28,29}. This technique allows us to distinguish any artifact due to topographic cross-talk during the MFM acquisition, as well as excluding the possibility of skyrmion nucleation driven by the MFM tip. By using right and left-hand circularly polarized X-rays with fixed energy at the maximum peak of the Co L₃ absorption edge (~ 781 eV), a magnetic contrast image is obtained through XMCD. Fig.1(f) exhibits the resultant magnetic contrast presenting circular domains similar to the ones observed by MFM, corroborating the stabilization of isolated skyrmions in the absence of magnetic field. In Fig. S1 of the Supplemental Material³⁰, we show a STXM image undertaken using linearly polarized X-rays that presents no contrast, ensuring the magnetic origin of the observed bubbles. Moreover, since this measurement was carried out in transmission mode, the X-rays penetrate across the whole multilayer stack. Therefore, the STXM image suggests that the out-of-plane contrast averaged over the entire

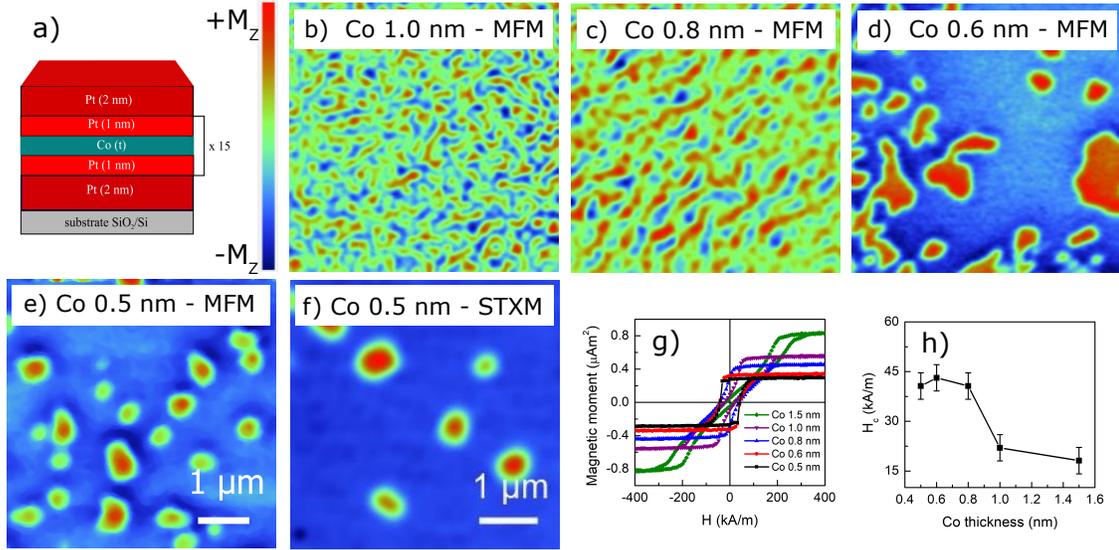


Figure 1. (a) Schematic diagram of the multilayer stacking. (b-e) Magnetic force microscopy images of multilayers with Co thickness 1.0, 0.8, 0.6 and 0.5 nm, respectively, measured at zero magnetic field. (f) STXM image of sample Co 0.5 nm. (g) Out-of-plane hysteresis loops for samples with different Co thicknesses. (h) Coercive field as a function of the Co thickness.

thickness of the sample is consistent with the surface measurement provided by MFM.

Magnetic hysteresis loops were measured using a LakeShore vibrating sample magnetometer (VSM), at room temperature, by sweeping the magnetic field along both in-plane (Fig. S2 of the Supplemental Material³⁰) and out-of-plane [Fig. 1(g)] directions. These measurements confirm that all the samples present PMA as expected. The magnetization curve of the sample Co 1.5 nm exhibits a tail-like shape, typical of labyrinth domain patterns. The hysteresis gradually becomes square-shaped as the Co thickness decreases. The combination of PMA and high remnant magnetization (but still lower than the saturation magnetization), observed in the thinner samples, is a key ingredient for the stabilization of isolated skyrmions at zero magnetic field. Besides, it is well known that nominally symmetric Pt/Co/Pt multilayers can present a nonzero iDMI due to structural asymmetries between bottom Pt/Co and top Co/Pt interfaces³¹⁻³³.

At this point, it is important to analyze the coercivity behavior extracted from the magnetization curves. Fig. 1(h) indicates that the coercive field undertakes an abrupt transition

occurring for Co layers thinner than 1.0 nm, being slightly more than twice as large as it is for thicker samples. Simultaneously, we observe the formation of larger stripes for sample Co 0.8 nm in comparison to thicker samples, as observed in Figs. 1(b-c). Such an abrupt change of the coercivity suggests that the sample structure and morphology may also be suffering a major transition when the Co layer is ultrathin (thinner than ~ 1 nm).

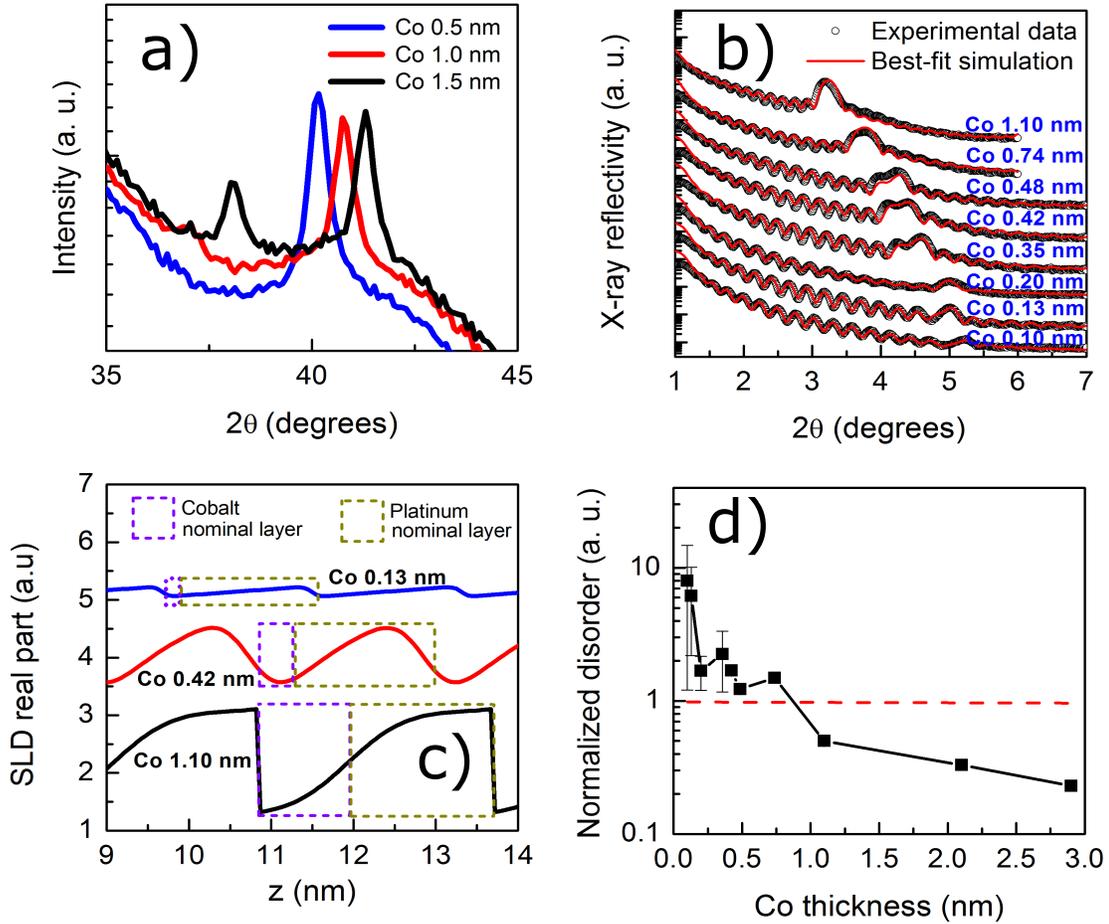


Figure 2. (a) X-ray diffraction patterns for samples with Co thickness of 0.5, 1.0 and 1.5 nm. (b) X-ray reflectivity measurements and best-fit simulations for samples with different Co thicknesses. (c) SLD profile, extracted from XRR simulations, zoomed in trilayers around 9 and 14 nm from the top surface ($z = 0$ nm), for samples with different levels of interface disorder. (d) Normalized disorder, i.e. ratio between interface thickness (as extracted from XRR simulations) and nominal layer thickness, as function of Co thickness.

B. Interface structure and morphology

We measured X-ray diffraction (XRD) and X-ray reflectivity (XRR) using a Bruker D8 Advance diffractometer with Cu anode tube (filtered K_α radiation, without monochromator) and standard Bragg-Brentano ($\theta - 2\theta$) geometry. First, we report on the overall multilayer crystalline structure. In Fig. 2(a) we show the XRD patterns for samples with Co thicknesses of 0.5, 1.0 and 1.5 nm. All samples exhibited polycrystalline character with a preferential growth along the fcc [111] direction. The most intense diffraction peaks (2θ within $40^\circ - 42^\circ$) are addressed to the (111) crystallographic planes of an artificial superlattice composed by Co and Pt layers presenting both fcc structure, whilst their $n - 1$ diffraction order induces the less intense peaks below $\sim 38.5^\circ$ ³⁴. The shift to smaller angles as the Co thickness decreases arises from the position of the mean (111) peak being between the fcc Pt (111) ($2\theta \sim 39^\circ$) and fcc Co (111) ($2\theta \sim 44^\circ$) reflections, depending on the amount of Co in the multilayer. The thicker the Co layer, the higher is the Bragg peak position. All the other samples presented diffractograms (not shown) with a similar structure and (111) peak position tendency. Therefore, these results indicate the presence of elastic stresses in the multilayered structure depending on Co thickness.

In order to understand the influence of the structural properties on the interfaces, we now focus on the X-ray reflectivity modeling. We performed this study on a new and larger sample set to obtain a more reliable analysis. These multilayers were grown under the same conditions as the ones used for the magnetic characterizations. In Fig. 2(b) we present the XRR measurements and curve fits for samples with Co thickness ranging from 0.1 to 3 nm. The best-fit simulations were obtained by the GenX tool for refinement³⁵, which is based on the Parratt recursion formula for simulating specular reflectivity³⁶ and uses a differential evolution algorithm for fitting the X-ray data. The analysis was carried out around the first-order Bragg peak of the Pt/Co/Pt superlattice, which is the most intense peak in each XRR pattern. Its position depends on the trilayer thickness and shifts to higher angles as the multilayer becomes thinner, whilst the higher frequency oscillations are the Kiessig fringes related to the total multilayer thickness. The XRR modeling provides us the chemical depth profile of the structure through the scattering length density (SLD), as shown in Fig. 2(c) for representative samples, zoomed-in around one of the internal trilayers (z is the vertical

distance from the substrate surface). Since they are vertically shifted to facilitate comparison, only the relative amplitudes of the SLD oscillations in Fig. 2(c) can be directly compared, instead of the absolute magnitudes.

Since the SLD profile is representative of the sample electronic density depth profile, for an ideal sample (with perfect interfaces) it is expected to be a square function whose amplitudes represent each layer density. Starting from the SLD profile of sample Co 1.1 nm [Fig. 2(c), black], we see that the Pt/Co interface presents a much more abrupt transition than the Co/Pt one. This result is expected since it has been demonstrated that Pt layers usually form flatter surfaces than Co ones^{37,38}. Such a tendency of the Co layers to form rougher surfaces may be pointed as an origin for nonzero iDMI in nominally symmetric multilayers³¹⁻³³ and to asymmetric magnetic proximity effect^{20,38-40}. As it will be discussed later, both proximity effect and non-negligible iDMI, arising from the irregular interfaces, play important roles on the magnetic domain pattern formation across the whole range of Co thicknesses studied here. By further thinning the Co layer, we observe two more distinct morphologies. The SLD profile of the sample Co 0.42 nm [Fig. 2(c), red] is representative of trilayers where the interface disorder is much greater even at the Pt/Co interface. Besides the very smooth transition at the interfaces, it is important to notice that the relative difference of the SLD amplitude is smaller than it is for thicker samples. The origin of the higher Co layer SLD is an increase of $\sim 22\%$ in the Co layer density as extracted from the fitting model. We suggest that this electronic density enhancement arises from intermixing, roughness, or alloying, due to the formation of a disordered Co layer⁴¹. We point out that our results for sample Co 0.42 nm corroborate the cross section images reported in ref.⁴², which also present a very high disorder.

The SLD profile of the thinner Co 0.13 nm sample [Fig. 2(c), blue] shows a very small oscillation amplitude, being harder to distinguish the Co layer. The interface is most likely formed by an alloy or solid solution richer in Pt. For this sample, the Co layer density (in the fitting model) increases more than 100% as compared to the thicker sample, approaching the Pt density. In Fig. 2(d) we plot the normalized disorder, i.e. the ratio between the Co/Pt interface thickness (representative of the disorder) and the Co layer nominal thickness as extracted from the XRR fitting model. It is clear that, for all samples with Co layer thinner than 1.0 nm, the interface is thicker than the Co layer itself, highlighting the high disorder

of these interfaces. Besides, we distinguish 3 different morphologies for samples with Co thickness ranging 1) from ~ 0.0 to ~ 0.15 nm, for which the Co layer is indistinguishable, 2) from ~ 0.2 to ~ 0.8 nm, for which there is evidence of strong intermixing or roughness or alloying, and 3) above ~ 1.0 nm, for which the interfaces are more ordered, and the Co layer is certainly forming a continuous film.

Indeed, looking back to the magnetic properties presented in section II A, we see that the subtle changes in coercivity observed between the samples Co 0.8 nm and Co 1.0 nm can be explained in terms of the interface morphological/structural transition. Such a high disorder of the thinner sample interfaces is likely to be behind the magnetic domain pattern transition. The presence of intermixing or alloying may be leading to pinning mechanisms that locally modify the magnetic anisotropy, promoting the stabilization of isolated magnetic skyrmions in samples with Co thickness around 0.5 nm²⁷. At this point, it is worth mentioning that we did not observe any magnetic contrast by MFM for samples with Co layer thinner than 0.2 nm, while the VSM characterization of these samples (not shown) presented a very low magnetic signal. In the next sections, we show some evidences that the high interface disorder yields to important changes in the microscopic magnetic properties of the thinnest samples.

C. Co magnetic moment

Fig 3(a) exhibits the total magnetic moment m , measured by VSM for samples with identical surface area (5×5 mm²), normalized by the Co nominal volume V_{Co} . We observe that m/V_{Co} decreases with the Co layer thickness, being about 6% higher for sample Co 0.5 nm as compared to sample Co 1.5 nm. Such an increase of the Co saturation magnetization is unexpected, suggesting that the Pt layers acquire magnetic moment by magnetic proximity effect (MPE)⁴³. In a first approach, we performed a linear fitting of the graph $(m/V_{Co})t_{Co}$ vs t_{Co} [Fig. 3(b)]. The slope of this curve (1230 kA/m) is a good estimate of the Co layer saturation magnetization (M_s^{Co}) excluding possible contributions from other layers, whilst the positive linear coefficient suggests that the Pt layers contribute to a positive magnetic moment. Therefore, considering the bulk Pt molar volume as 9.09 cm³/mol and its atomic moment as $0.26 \mu_B$ ⁴⁴, around 0.15 nm of Pt would be ferromagnetic at each interface (disregarding any asymmetry between bottom and top interfaces) to account for the total

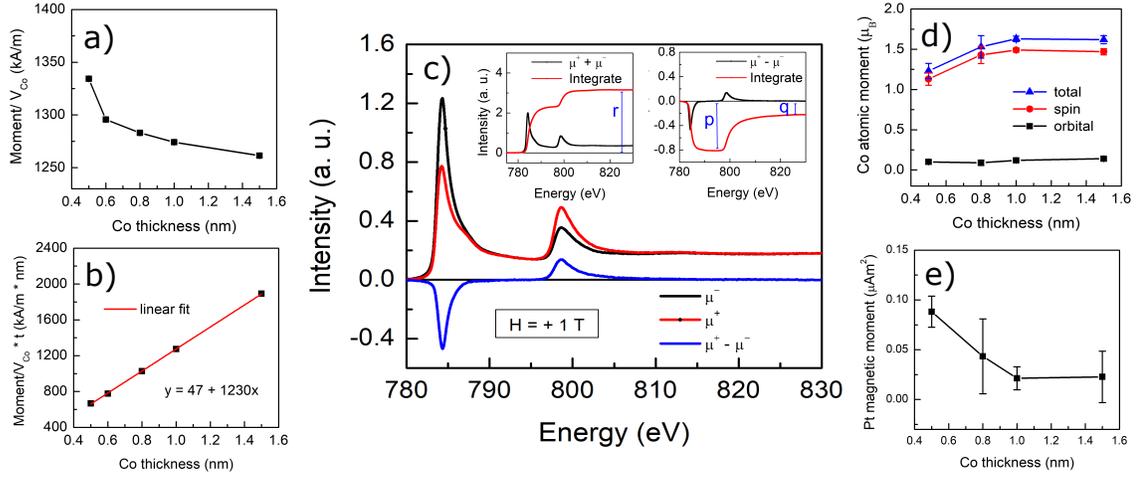


Figure 3. (a) m/V_{Co} , i.e. magnetic moment extracted from VSM divided by the nominal Co volume, as a function of the Co thickness. (b) $(m/V_{Co})t_{Co}$ vs t_{Co} curve, which slope is an approximation of the Co saturation magnetization as obtained from VSM. (c) Co L edge X-ray absorption spectra measured with opposite chirality circular polarized X-rays (black and red) and XMCD difference signal (blue); in the insets are representations of the integrals taken into account for the XMCD sum rules evaluation. (d) Orbital, spin, and total angular momentum of Co atoms as a function of the Co thickness, as obtained from XMCD sum rules. (e) Pt proximity induced moment evaluated by combining VSM and Co L edge XMCD results.

magnetic moment measured. Nevertheless, such a simple approach is not enough reliable for quantifying the Pt proximity induced moment of the thinner samples as ultrathin Co layers are known to have their atomic moment modified due to structural changes and interface effects such as intermixing, hybridization, and alloying⁴⁵⁻⁴⁸. On the other hand, determining the volume of the magnetic Pt layer is crucial for the correct evaluation of the multilayer effective saturation magnetization and anisotropy constant, parameters that must be used as input for micromagnetic simulations. In this scenario, the element specificity provided by the X-ray magnetic circular dichroism technique can help us to better understand the magnetic properties of the Co/Pt interface.

We performed Co $L_{2,3}$ edge XMCD experiments at the U11-PGM soft X-ray beamline of the former UVX synchrotron source at the Brazilian Synchrotron Light Laboratory (LNLS)⁴⁹. Each measurement consisted of acquiring, by the total electron yield detection mode at room

temperature, X-ray absorption spectra with circularly polarized light in two opposite helicities (μ^+ and μ^-), the XMCD signal being their difference. The samples were positioned with the surface perpendicular to both the X-ray beam and the applied magnetic field (1 T). With this geometry, the XMCD allows us to estimate the atomic orbital (m_{orb}) and spin (m_s) angular moments of the Co layers through the XMCD sum rules⁵⁰:

$$m_{orb} = N_H \frac{4q}{3r}, \quad (1)$$

$$m_{spin} = N_H \frac{6p - 4q}{r}, \quad (2)$$

where N_H is the number of Co d empty states (holes), and p , q and r are values taken from the integrals of the isotropic absorption ($\mu^+ + \mu^-$) and XMCD ($\mu^+ - \mu^-$) spectra, as represented in the insets of Fig. 3(c). The spectra shape shown in Fig. 3(c) (measured for sample Co 1.5 nm) is representative of all sample spectra, but with slightly different amplitudes. Considering the number of holes as 2.49⁵⁰ and applying a normalization to compensate the degree of circular polarization of the X-ray beam (80%), the estimates of m_{orb} , m_{spin} and Co total atomic moment ($m_{orb} + m_{spin}$) are presented in Fig. 3(d).

We see that the orbital moment is low ($< 0.15 \mu_B$) and almost constant, in accordance with the literature^{51,52}. Nevertheless, the Co spin moment decreases for thickness below 1.0 nm, the sample Co 0.5 nm presenting a m_{spin} reduction of about 25% as compared to the thicker samples. This behavior has already been observed in ultrathin Co layers in Pt/Co/Pt systems and can be associated with a Curie temperature reduction^{51,52}. More interesting is that the Co atomic moment [Fig. 3(d)] behaves oppositely to the bulk magnetization as measured by VSM [Fig. 3(a)]. Therefore, the Pt layers must be contributing with a higher magnetic moment when the Co layer is ultrathin. In principle, such a strong magnetic proximity effect for thinner samples could be precisely quantified by the Pt $L_{2,3}$ edge XMCD, which is in the hard X-ray spectroscopy range. However, the low Pt magnetic signal and the higher bulk sensitivity arising in these energies difficult this experiment. We did not succeed in measuring the Pt moment by the Pt $L_{2,3}$ edge XMCD. Nevertheless, a reliable analysis can be carried out by combining VSM and Co $L_{2,3}$ edge XMCD data, as discussed in the next section.

D. Pt proximity induced moment

Considering the cobalt atomic moment of the samples on the plateau of the curve in Fig. 3(d) ($\sim 1.62 \mu_B$), it is consistent with values reported in the literature for Co samples⁵³. This value of Bohr magnetons per Co atom corresponds to a saturation magnetization of 1356 kA/m, about 9% higher than the 1230 kA/m extracted from the slope of $(m/V_{Co})t_{Co}$ vs t_{Co} as measured from VSM [Fig. 3(b)]. This difference arises mainly from errors in determining the circular polarization degree of the X-ray beam and in computing the XMCD sum rules integrals, as well as uncertainties in the sample area measurement and magnetometer calibration that could be imposing error to the VSM results. Therefore, we use the relative reduction of the Co atomic moment observed from XMCD for correcting the M_s^{Co} estimated by VSM in order to obtain an estimate of the Pt PIM due to MPE.

We assume that 1230 kA/m is the constant Co saturation magnetization of the thicker samples. It is a reasonable approximation since there is a clear tendency of the Co atomic moment of these samples to form a plateau [Fig. 3(d)], i.e. approaching a constant value as expected for thick bulk-like samples. This assumption implies that the Pt PIM tends to be constant for thicker ferromagnetic layers, in accordance with literature⁵⁴. To find the M_s^{Co} from VSM for the thinner samples, we divide the Co total atomic moment curve [Fig. 3(d)] by its maximum and use the normalized values as a correcting factor, multiplying it by 1230 kA/m. With this correction we separate the Co contribution from the total magnetic moment measured by VSM ($V_{Co}M_s^{Co}$) and, consequently, the remaining moment represents the total Pt PIM as presented in Fig. 3(e). Although the estimated Pt induced magnetic moment may present uncertainties due to the systematic errors and approximations discussed above, the evolution of the Pt PIM with the Co thickness confirms that an unexpected stronger MPE takes place when the ultrathin Co layer approaches the limit where interface intermixing and/or alloying dominates the stacking structure. The remarkable increase of the induced moment for thinner samples resembles the interface structural changes discussed in section II B, suggesting that such an enhanced magnetic proximity effect arises from the interface disorder.

It is worth noting that disordered interfaces may present different types of morphology. In the case where intermixing and/or roughness are predominant, a stronger MPE could be

explained in terms of the larger contact area between Co and Pt yielding to stronger orbital hybridization and higher induced magnetic moment for instance. However, in the case where alloying takes place, leading to more complex consequences in the interface crystalline and electronic structures, the Pt atomic moment is expected to increase. Despite the absence of direct Pt $L_{2,3}$ edge XMCD data, we can carry out a reliable analysis. Considering the platinum molar volume as $9.09 \text{ cm}^3/\text{mol}$ and its induced atomic moment as $0.26 \mu_B$, as reported in ref.⁴⁴ for similar Pt/Co/Pt trilayers, we estimate the average thickness of the magnetic Pt layer as $\sim 0.6 \text{ nm}$ for sample Co 0.5 nm and $\sim 0.3 \text{ nm}$ for sample Co 0.8 nm. On the other hand, if we consider a Pt atomic moment of $0.36 \mu_B$, as reported in ref.⁵⁵ for a CoPt alloy, the Pt magnetic thickness would be $\sim 0.45 \text{ nm}$ for sample Co 0.5 nm and $\sim 0.2 \text{ nm}$ for sample Co 0.8 nm. The estimate for thicker samples is quite not sensitive to modifications in the Pt atomic moment, being roughly around 0.15 nm , which is very close to the value calculated from the graph $(m/V_{Co})t_{Co}$ vs t_{Co} with VSM data. Therefore, the sample effective saturation magnetization can be reliably determined from standard magnetometry data for thicker samples, but its correct value for ultrathin trilayers is strongly affected by the unexpected stronger MPE that emerges due to interface disorder. This effect is highly relevant for the correct determination of magnetic parameters taken as input for micromagnetic simulations.

E. Micromagnetic simulations

In order to test the theoretical possibility of such an unexpected strong magnetic proximity effect observed for the thinner samples, we used the Mumax³ code⁵⁶ to run micromagnetic simulations of the magnetic domain patterns experimentally measured by MFM. These simulations are performed solving the Landau-Lifshitz-Gilbert equation (LLG) to obtain the relaxation of the magnetization distribution⁵⁷. They were performed on an area of $1.5 \times 1.5 \mu\text{m}^2$ discretized in cells of $3 \times 3 \times t \text{ nm}^3$, where t is the total magnetic thickness of the sample, i.e. modeling the multilayer film as a single uniform layer by using an effective medium approach. The magnetic ground state, which represents the stability of the magnetic domain pattern for each set of magnetic parameters, was obtained by minimizing the LLG energy terms with a relaxation time of $2 \mu\text{s}$, after starting with a random magnetization.

We determined the input simulation parameters according to the following. The multilayer M_s is defined as the ratio m/V , where V is the sample total magnetic volume, which must take into account the magnetic Pt layer. In this scenario, a stronger proximity effect implies a decrease in the sample saturation magnetization. We estimated the uniaxial anisotropy constant K_u , which computes the sample PMA, through⁵⁸:

$$K_u = \frac{1}{2}\mu_0 M_s (H_k + M_s), \quad (3)$$

where μ_0 is the vacuum permeability constant, and H_k is the anisotropy field determined from the field required to saturate the magnetization in the experimental in-plane hysteresis curve. Focusing on sample Co 0.5 nm, which presents skyrmion bubble formation and the strongest MPE, we carried out simulations using different values of M_s and K_u . They were evaluated considering Pt magnetic thicknesses ranging from 0 to 0.6 nm. The exchange stiffness (A_{ex}) was fixed at 13.5 pJ/m and the magnetic damping at $\alpha = 0.3$. Besides, it was necessary to add a nonzero iDMI term to reproduce the experimental images. Therefore, we tuned the iDMI energy to obtain better reproducibility of the experimental MFM images from the micromagnetic simulations, using a methodology similar to what has been reported in the literature^{8,17,21,59}.

Fig. 4(a) (top) exhibits a micromagnetic simulation obtained by considering a Pt magnetic thickness of 0.45 nm and iDMI of 0.8 mJ/m². It reproduces a skyrmion of size similar to those experimentally observed for sample Co 0.5 nm [Fig. 1(e-f)]. The zoom-in the magnetization vector field around the domain wall indicates the skyrmion chirality. As mentioned in section IID, this Pt magnetic thickness represents the scenario in the case that CoPt alloying dominates the interface disorder. Nevertheless, we observed that isolated skyrmions and bubbles (of different sizes) can also be stabilized for different Pt magnetic thicknesses and iDMI as indicated in the diagram of Fig. 4(b). In this diagram we classify the domain patterns obtained by micromagnetism as skyrmion, stripes or monodomain, according to the examples shown in Fig. 4(a) for each case. Although we do not have enough precision to extract the real values of the Pt magnetic thickness and iDMI from the micromagnetic simulations, it is clear that the experimental images can only be reproduced by taking into account a stronger MPE effect for the thinner samples. Furthermore, the micromagnetic modeling indicates that a nonzero iDMI is playing an important role in the skyrmion bubble formation. In the Fig. S3 of the Supplemental Material³⁰ we show micromagnetic simulation

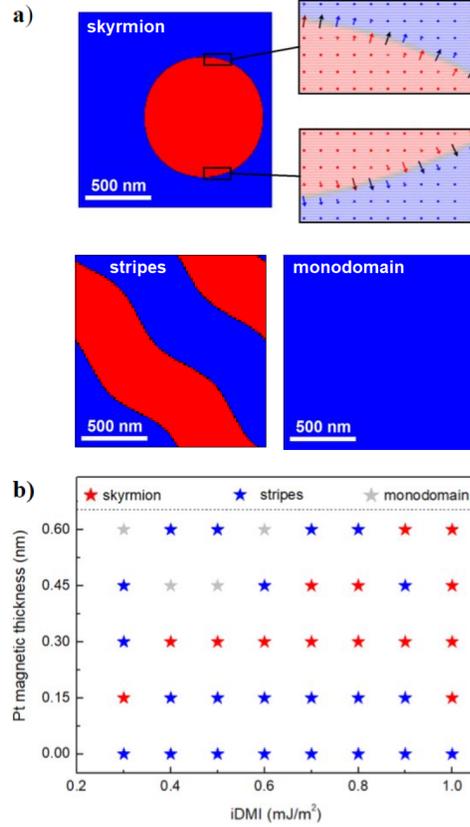


Figure 4. (a) (Top) micromagnetic simulation of an isolated skyrmion, of size similar to those experimentally observed for sample Co 0.5 nm, obtained by considering a Pt magnetic thickness of 0.45 nm and iDMI of 0.8 mJ/m². The red-black-blue colormap represents the out-of-plane magnetization (+M_z - in-plane - M_z); it is translucent in the right panel to highlight the arrows that illustrate the vector field. The zoom in around the domain wall indicates the skyrmion chirality. (a) (Bottom) examples of simulated domain patterns classified as stripes and monodomain. (b) Diagram presenting the classification of the simulated domain patterns considering different Pt magnetic thicknesses and iDMI values.

run for sample Co 0.5 nm without including the MPE to estimate M_s and K_u . These simulated domain patterns greatly differ from the experimental MFM and STXM images of this sample, even after adding nonzero iDMI values in the modeling. These results highlight the importance of considering the magnetic proximity effect for estimating the magnetic parameters used as input for micromagnetic simulations.

III. SUMMARY AND CONCLUSIONS

In summary, we investigated the magnetic domain pattern in Pt/Co/Pt multilayers at zero magnetic field. MFM images indicate an evolution from a labyrinth state to an isolated skyrmion bubble formation as the Co layer thickness decreases, whilst STXM images confirm that the skyrmion texture crosses through the entire multilayer stack. The magnetization curves confirm that the combination of perpendicular magnetic anisotropy and high remnant magnetization is a key ingredient for the skyrmion nucleation at zero magnetic field. Besides, a subtle increase of the coercivity suggests that structural changes may be behind the unique magnetic behavior of the thinner samples.

The structural characterization confirm the presence of elastic stresses in the multilayered structure, which may affect the magnetic anisotropy. More important, XRR modeling indicates an asymmetric interface disorder that may lead to nonzero iDMI in the nominally symmetric trilayers. The disorder has a subtle increase for samples thinner than 0.8 nm, for which the Co layer density (in the fitting model) is higher than the bulk Co density, highlighting the presence of a strong intermixing and/or alloying at the interfaces. The interface disorder can locally modify the magnetic anisotropy. This yields to pinning centers that stabilize isolated skyrmions, which is corroborated by the stronger overall magnetic proximity effect observed for the thinner samples.

Indeed, combining VSM and Co $L_{2,3}$ edge XMCD analyses we confirmed that such an enhanced Pt PIM emerges from the strong interface disorder. The increase of the Pt PIM implies a decrease of the overall multilayer M_s and magnitude of the PMA. The isolated skyrmions observed for sample Co 0.5 nm could only be reproduced by micromagnetism while computing both stronger MPE and nonzero iDMI, validating the aforementioned conclusions. These results shed light on the interplay between MPE and iDMI in the nucleation of chiral spin textures, highlighting the importance of controlling the interface phenomena for developing skyrmion-based devices.

IV. ACKNOWLEDGMENTS

This work was partially supported by the Brazilian agencies FAPESP (Projects No. 2012-51198-2, 2017/10581-1, and 2020/07397-7), CAPES and CNPq (Projects No. 309354/2015-3,

302950/2017-6, 436573/2018-0, 436862/2018-2, and 313667/2020-9). We thank the U11-PGM beamline of the Brazilian Synchrotron Light Laboratory (LNLS/CNPEM) and the COSMIC beamline of the Advanced Light Source (ALS/LBNL) for the synchrotron beam-times, and the Microfabrication Laboratory of the Brazilian Nanotechnology National Laboratory (LNNano/CNPEM) for growing sample facilities. This research used resources of the Advanced Light Source, a U.S. DOE Office of Science User Facility under contract no. DE-AC02-05CH11231.

REFERENCES

- ¹C. Swindells, A. T. Hindmarch, A. J. Gallant, and D. Atkinson, “Spin transport across the interface in ferromagnetic/nonmagnetic systems,” *Phys. Rev. B* **99**, 064406 (2019).
- ²L. Zhu, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman, “Effective spin-mixing conductance of heavy-metal–ferromagnet interfaces,” *Phys. Rev. Lett.* **123**, 057203 (2019).
- ³Y. Guan, X. Zhou, T. Ma, R. Bläsing, H. Deniz, S.-H. Yang, and S. S. P. Parkin, “Increased efficiency of current-induced motion of chiral domain walls by interface engineering,” *Adv. Mater.* **33**, 2007991 (2021).
- ⁴K.-S. Ryu, S.-H. Yang, and S. Parkin, “Experimentally tunable chiral spin transfer torque in domain wall motion,” *New J. Phys.* **18**, 053027 (2016).
- ⁵N.-H. Kim, J. Jung, J. Cho, D.-S. Han, Y. Yin, J.-S. Kim, H. J. M. Swagten, and C.-Y. You, “Interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction, surface anisotropy energy, and spin pumping at spin orbit coupled Ir/Co interface,” *Appl Phys. Lett.* **108**, 142406 (2016).
- ⁶E. Jué, C. K. Safeer, M. Drouard, A. Lopez, P. Balint, L. Buda-Prejbeanu, O. Boulle, S. Auffret, A. Schuhl, A. Manchon, I. M. Miron, and G. Gaudin, “Chiral damping of magnetic domain walls,” *Nat. Mat.* **15**, 272 (2016).
- ⁷S. Hait, S. Husain, N. K. Gupta, N. Behera, A. Kumar, R. Gupta, V. Barwal, L. Pandey, P. Svedlindh, and S. Chaudhary, “Impact of ferromagnetic layer thickness on the spin pumping in Co₆₀Fe₂₀B₂₀/Ta bilayer thin films,” *J. Mater. Sci: Mater Electron* **32**, 12453 (2021).
- ⁸M. Caminale, A. Ghosh, S. Auffret, U. Ebels, K. Ollefs, F. Wilhelm, A. Rogalev, and W. E. Bailey, “Spin pumping damping and magnetic proximity effect in Pd and Pt spin-

- sink layers,” *Phys. Rev. B* **94**, 014414 (2016).
- ⁹C. Garg, S.-H. Yang, L. Thompson, T. Topuria, A. Capua, B. Hughes, T. Phung, P. C. Filippou, and S. S. Parkin, “Efficient chiral-domain-wall motion driven by spin-orbit torque in metastable platinum films,” *Phys. Rev. Appl.* **14**, 034052 (2020).
- ¹⁰A. Brataas, “Chiral domain walls move faster,” *Nat. Nanotech.* **8**, 485 (2013).
- ¹¹S. Emori, U. Bauer, S.-M. Ahn, E. Martinez, and G. S. D. Beach, “Current-driven dynamics of chiral ferromagnetic domain walls,” *Nat. Mat.* **12**, 611 (2013).
- ¹²I. Dzyaloshinsky, “A thermodynamic theory of weak ferromagnetism of antiferromagnetics,” *J. Phys. Chem. Sol.* **4**, 241–255 (1958).
- ¹³T. Moriya, “Anisotropic superexchange interaction and weak ferromagnetism,” *Phys. Rev.* **120**, 91–98 (1960).
- ¹⁴L. Wang, C. Liu, N. Mehmood, G. Han, Y. Wang, X. Xu, C. Feng, Z. Hou, Y. Peng, X. Gao, and G. Yu, “Construction of a room-temperature Pt/Co/Ta multilayer film with ultrahigh-density skyrmions for memory application,” *ACS Appl. Mater. Interfaces* **11**, 12098 (2019).
- ¹⁵P. Ho, A. K. Tan, S. Goolaup, A. G. Oyarce, M. Raju, L. Huang, A. Soumyanarayanan, and C. Panagopoulos, “Geometrically tailored skyrmions at zero magnetic field in multilayered nanostructures,” *Phys. Rev. Appl.* **11**, 024064 (2019).
- ¹⁶H. L. T. Lin, S. Poellath, Y. Zhang, B. Ji, N. Lei, J. J. Yun, L. Xi, D. Z. Yang, T. Xing, Z. L. Wang, L. Sun, Y. Z. Wu, L. F. Yin, W. B. Wang, J. Shen, J. Zweck, C. H. Back, Y. G. Zhang, and W. S. Zhao, “Observation of room-temperature magnetic skyrmions in Pt/Co/W structures with a large spin-orbit coupling,” *Phys. Rev. B* **98**, 174425 (2018).
- ¹⁷C. Moreau-Luchaire, C. Moutafis, N. Reyren, J. Sampaio, C. A. F. Vaz, N. V. Horne, K. Bouzehouane, K. Garcia, C. Deranlot, P. Warnicke, P. Wohlhüter, J.-M. George, M. Weigand, J. Raabe, V. Cros, , and A. Fert, “Additive interfacial chiral interaction in multilayers for stabilization of small individual skyrmions at room temperature,” *Nat. Nanotech.* **11** (2016).
- ¹⁸H. Yang, A. Thiaville, S. Rohart, A. Fert, , and M. Chshiev, “Anatomy of Dzyaloshinskii-Moriya interaction at Co/Pt interfaces,” *Phys. Rev. Lett.* **115**, 267210 (2015).
- ¹⁹K.-S. Ryu, L. Thomas, S.-H. Yang, and S. Parkin, “Chiral spin torque at magnetic domain walls,” *Nat. Nanotech.* **8**, 527 (2013).

- ²⁰R. M. Rowan-Robinson, A. A. Stashkevich, Y. Roussigné, M. Belmeguenai, S.-M. Chérif, A. Thiaville, T. P. A. Hase, A. T. Hindmarch, and D. Atkinson, “The interfacial nature of proximity induced magnetism and the Dzyaloshinskii-Moriya interaction at the Pt/Co interface,” *Sci. Rep.* **7**, 16835 (2017).
- ²¹J. Brandão, D. A. Dugato, R. L. Seeger, J. C. Denardin, T. J. A. Mori, and J. C. Cezar, “Observation of magnetic skyrmions in unpatterned symmetric multilayers at room temperature and zero magnetic field,” *Sci. Rep.* **9**, 4144 (2019).
- ²²O. Boulle, J. Vogel, H. Yang, S. Pizzini, D. D. S. Chaves, A. Locatelli, T. O. Mentès, A. Sala, L. D. Buda-Prejbeanu, O. Klein, M. Belmeguenai, Y. Roussigné, A. Stashkevich, S. M. Chérif, L. Aballe, M. Foerster, M. Chshiev, S. Auffret, I. M. Miron, and G. Gaudin, “Current-induced skyrmion generation and dynamics in symmetric bilayers,” *Nat. Nanotechnol.* **11**, 449–454 (2016).
- ²³A. Hrabec, J. Sampaio, M. Belmeguenai, I. Gross, R. Weil, S. M. Chérif, A. Stashkevich, V. Jacques, A. Thiaville, and S. Rohart, “Current-induced skyrmion generation and dynamics in symmetric bilayers,” *Nat. Commun.* **8**, 15765 (2017).
- ²⁴W. Legrand, D. Maccariello, N. Reyren, K. Garcia, C. Moutafis, C. Moreau-Luchaire, and A. Fert, “Room-temperature current-induced generation and motion of sub-100 nm skyrmions,” *Nano Lett.* **17**(4), 2703–2712 (2017).
- ²⁵A. Fert, V. Cros, and J. Sampaio, “Skyrmions on the track,” *Nat. Nanotechnol.* **8**, 152–156 (2013).
- ²⁶S. S. P. Parkin, M. Hayashi, and L. Thomas, “Magnetic domain-wall racetrack memory,” *Science* **320**, 190–194 (2008).
- ²⁷S. Zhang, A. K. Petford-Long, and C. Phatak, “Creation of artificial skyrmions and anti-skyrmions by anisotropy engineering,” *Sci. Rep.* **6**, 31248 (2016).
- ²⁸D. A. Shapiro, S. Roy, R. Celestre, W. Chao, D. Doering, M. Howells, S. Kevan, D. Kilcoyne, J. Kirz, S. Marchesini, K. A. Seu, A. Schirotzek, J. Spence, T. Tylliszczak, T. Warwick, D. Voronov, and H. A. Padmore, “Development of coherent scattering and diffractive imaging and the COSMIC facility at the advanced light source,” *J. Phys.: Conf. Ser.* **425**, 192011 (2013).
- ²⁹D. A. Shapiro, S. Babin, R. Celestre, W. Chao, R. P. Conley, P. Denes, B. Enders, P. Enfedaque, S. James, J. Joseph, H. Krishnan, S. Marchesini, K. Muriki, K. Nowrouzi, S. Oh,

- H. Padmore, T. Warwick, L. Yang, V. V. Yashchuk, Y.-S. Yu, and J. Zhao, “An ultra-high resolution soft x-ray microscope for quantitative analysis of chemically heterogeneous nano-materials,” *Sci. Adv.* **6**, eabc4904 (2020).
- ³⁰“See Supplemental Material at [“hyperlink here”](#) for further information on STXM with linearly polarized X-rays, in-plane magnetization curves and micromagnetic simulations not taking into account any Pt proximity induced moment.” .
- ³¹A. Hrabec, N. A. Porter, A. Wells, M. J. Benitez, G. Burnell, S. McVitie, D. McGrouther, T. A. Moore, and C. H. Marrows, “Measuring and tailoring the Dzyaloshinskii-Moriya interaction in perpendicularly magnetized thin films,” *Phys. Rev. B* **90**, 020402(R) (2014).
- ³²S.-G. Je, D.-H. Kim, S.-C. Yoo, B.-C. Min, K.-J. Lee, and S.-B. Choe, “Asymmetric magnetic domain-wall motion by the Dzyaloshinskii-Moriya interaction,” *Phys. Rev. B* **88**, 214401 (2013).
- ³³A. W. J. Wells, P. M. Shepley, C. H. Marrows, and T. A. Moore, “Effect of interfacial intermixing on the dzyaloshinskii-moriya interaction in Pt/Co/Pt,” *Phys. Rev. B* **95**, 054428 (2017).
- ³⁴C.-J. Lin, G. Gorman, C. Lee, R. Farrow, E. Marinero, H. Do, and H. Notarys, “Magnetic and structural properties of Co/Pt multilayers,” *J. Mag. Mag. Mat.* **93**, 194 (1991).
- ³⁵M. Björck and G. Anderssons, “Genx: an extensible x-ray reflectivity refinement program utilizing differential evolution,” *J. Appl. Cryst.* **40**, 1174 (2007).
- ³⁶L. G. Parratt, “Surface studies of solids by total reflection of X-rays,” *Phys. Rev.* **95**, 359 (1954).
- ³⁷L. Fernandez-Outon, W. Schmidt, A. Fortini, M. Martins, and W. Macedo, “Tailoring magnetocrystalline perpendicular anisotropy in Co₆₀Fe₄₀/Pt multilayers,” *J. Mag. Mag. Mat.* **467**, 139 (2018).
- ³⁸K. T. Kim, D. Kim, J. Y. Kee, I. Seo, Y. Choi, J. W. Choi, and D. R. Lee, “X-ray reflectivity data analysis using bayesian inference: The study of induced Pt magnetization in Pt/Co/Pt,” *Curr. Appl. Phys.* **xxx**, xxx (2021).
- ³⁹D.-O. Kim, K. M. Song, YongseongChoi, B.-C. Min, J.-S. Kim, JunWooChoi, and D. R. Lee, “Asymmetric magnetic proximity effect in a Pd/Co/Pd trilayer system,” *Sci. Rep.* **6**, 25391 (2016).

- ⁴⁰A. Mukhopadhyay, S. K. Vayalil, D. Graulich, I. Ahamed, S. Francoual, A. Kashyap, T. Kuschel, and P. S. A. Kumar, “Asymmetric modification of the magnetic proximity effect in Pt/Co/Pt trilayers by the insertion of a Ta buffer layer,” *Phys. Rev. B* **102**, 144435 (2020).
- ⁴¹S. Azzawi, A. Ganguly, M. Tokac, R. M. Rowan-Robinson, J. Sinha, A. T. Hindmarch, A. Barman, and D. Atkinson, “Evolution of damping in ferromagnetic/nonmagnetic thin film bilayers as a function of nonmagnetic layer thickness,” *Phys. Rev. B* **93**, 054402 (2016).
- ⁴²D. Tatarskiy, N. Gusev, , and S. Gusev, “Giant interfacial induced dzyaloshinskii-moriya interaction in polycrystalline Co/Pt multilayers,” arXiv , 2101.02460v1 (2021).
- ⁴³C. Ederer, M. Komelj, M. Fahnle, and G. Schutz, “Theory of induced magnetic moments and x-ray magnetic circular dichroism in Co/Pt multilayers,” *Phys. Rev. B* **66**, 094413 (2002).
- ⁴⁴Y.-C. Lau, Z. Chi, T. Taniguchi, M. Kawaguchi, G. Shibata, N. Kawamura, M. Suzuki, S. Fukami, A. Fujimori, H. Ohno, and M. Hayashi, “Giant perpendicular magnetic anisotropy in Ir/Co/Pt multilayers,” *Phys. Rev. Materials* **3**, 104419 (2019).
- ⁴⁵I. M. L. Billas, A. Chatelain, and W. A. de Heer, “Magnetism from the atom to the bulk in iron, cobalt, and nickel clusters,” *Science* **265**, 1682 (1994).
- ⁴⁶N. Sato, “Crystallographic structure and magnetism of Co-Pd and Co-Pt films with an artificially layered structure,” *J. Appl. Phys* **64**, 6424 (1988).
- ⁴⁷C. A. F. Vaz, J. A. C. Bland, and G. Lauhof, “Magnetism in ultrathin film structures,” *Rep. Prog. Phys.* **71**, 056501 (2008).
- ⁴⁸S. Topolovec, H. Krenn, and R. Würschum, “Enhanced magnetic moment of ultrathin Co films measured by in situ electrodeposition in a SQUID,” *J. Mag. Mag. Mat.* **397**, 96 (2016).
- ⁴⁹J. C. Cezar, P. T. Fonseca, G. L. M. P. Rodrigues, A. R. B. de Castro, R. T. Neuenschwander, F. Rodrigues, B. C. Meyer, L. F. S. Ribeiro, A. F. A. G. Moreira, and J. R. Piton, “The U11 PGM beam line at the Brazilian National Synchrotron Light Laboratory,” *J. Phys.: Conf. Ser.* **425**, 072015 (2013).
- ⁵⁰C. T. Chen, Y. U. Idzerda, H.-J. Lin, N. V. Smith, G. Meigs, E. Chaban, G. H. Ho, E. Pellegrin, and F. Sette, “Experimental confirmation of the X-ray magnetic circular dichroism sum rules for iron and cobalt,” *Phys. Rev. Lett.* **75**, 152 (1995).

- ⁵¹T. Ueno, J. Sinha, N. Inami, Y. Takeichi, S. Mitani, K. Ono, and M. Hayashi, “Enhanced orbital magnetic moments in magnetic heterostructures with interface perpendicular magnetic anisotropy,” *Sci. Rep.* **5**, 14858 (2015).
- ⁵²J. Stöhr, “Exploring the microscopic origin of magnetic anisotropies with X-ray magnetic circular dichroism (xmcd) spectroscopy,” *J. Mag. Mag. Mat.* **200**, 470 (1999).
- ⁵³O. Eriksson, B. Johansson, R. C. Albers, and A. M. Boring, “Orbital magnetism in Fe, Co, and Ni,” *Phys. Rev. B* **42**, 2707 (1990).
- ⁵⁴T. Kuschel, C. Klewe, P. Bougiatioti, O. Kuschel, J. Wollschlager, L. Bouchenoire, S. D. Brown, J.-M. Schmalhorst, D. Meier, , and G. Reiss, “Static magnetic proximity effect in Pt layers on sputter-deposited NiFe₂O₄ and on Fe of various thicknesses investigated by XRMR,” *IEEE Trans. Mag.* **52**, 4500104 (2016).
- ⁵⁵W. Grange, I. Galanakis, M. Alouani, and M. Maret, “Experimental and theoretical X-ray magnetic-circular-dichroism study of the magnetic properties of Co₅₀Pt₅₀ thin films,” *Phys. Rev. B* **62**, 1157 (2000).
- ⁵⁶A. Vansteenkiste, “The design and verification of mumax,” *AIP Adv.* **4**, 107133 (2014).
- ⁵⁷M. Lakshmanan, “The fascinating world of the Landau–Lifshitz–Gilbert equation: an overview,” *Phil. Trans. R. Soc. A* **369**, 1280 (2011).
- ⁵⁸Z. Liu, R. Brandt, O. Hellwig, S. Florez, T. Thomson, B. Terris, and H. Schmidt, “Thickness dependent magnetization dynamics of perpendicular anisotropy Co/Pd multilayer films,” *J. Mag. Mag. Mat.* **323**, 1623 (2011).
- ⁵⁹A. V. Davydenko, A. G. Kozlov, A. G. Kolesnikov, M. E. Steblyy, G. S. Suslin, Y. E. Vekovshinin, A. V. Sadovnikov, and S. A. Nikitov, “Dzyaloshinskii-Moriya interaction in symmetric epitaxial [Co/Pd(111)]_n superlattices with different numbers of Co/Pd bilayers,” *Phys. Rev. B* **99**, 014433 (2019).

3.1 SUPPLEMENTAL MATERIAL

O trabalho segue as normas e a formatação original da revista *Physical Review Applied*.

Supplemental material for “Magnetic proximity effect at Pt/Co interfaces and isolated skyrmion bubble stabilization at zero magnetic field”

Danian A. Dugato, Jeovani Brandão, Fanny Béron, Ricardo B. da Silva, Samuel Flewett,
David A. Shapiro, Julio C. Cezar, Lucio S. Dorneles, Thiago J. A. Mori

I. SCANNING TRANSMISSION X-RAY MICROSCOPY (STXM)

Fig. S1 exhibits STXM image from linearly polarized X-rays of the same area as Fig. 1 (f) of the main text (sample Co 0.5 nm, Co L_3 edge). The contrast absence indicates the magnetic origin of the signal shown in the main text, which was acquired using circularly polarized X-rays.

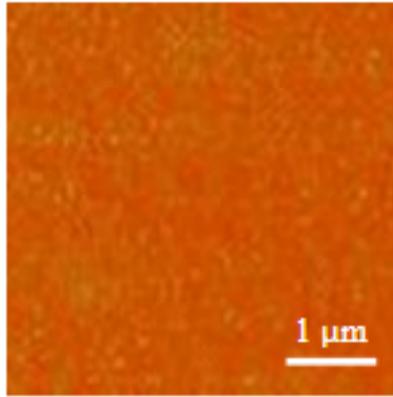


Figure S1: STXM image undertaken using linearly polarized X-rays with energy at the Co L_3 edge.

II. MAGNETIZATION CURVES WITH IN-PLANE MAGNETIC FIELD

To determine the magnetization reversal and extract the anisotropy field of the Pt/Co/Pt multilayers, magnetization curves were measured with in-plane applied magnetic field as presented in Fig. S2. These hysteresis loops exhibit an almost vanishing coercivity and high saturation field, confirming the hard plane. For instance, the saturation field of sample Co

0.5 nm is about 1200 kA/m. Comparing samples Co 0.5 nm and Co 1.5 nm we observe a 50% decrease in the in-plane saturation field, which highlights the role of the Co thickness in determining the sample anisotropy.

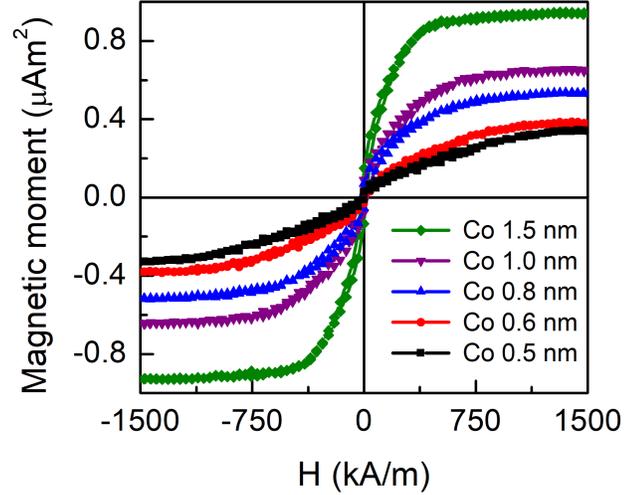


Figure S2: Magnetic hysteresis loops acquired by sweeping the magnetic field along the in-plane direction.

III. MICROMAGNETIC SIMULATIONS

We carried out further simulations disregarding any Pt proximity induced moment. In Fig. S3 we show micromagnetic simulations for sample Co 0.5 nm considering only the Co volume to estimate the sample M_s , with different iDMI values. In this simulation we used $M_s = 1334$ kA/m and $K_u = 2.1$ MJ/m³. The simulated domain patterns are very different from the experimental MFM and STXM images of sample Co 0.5 nm. The result does not change significantly for different iDMI values.

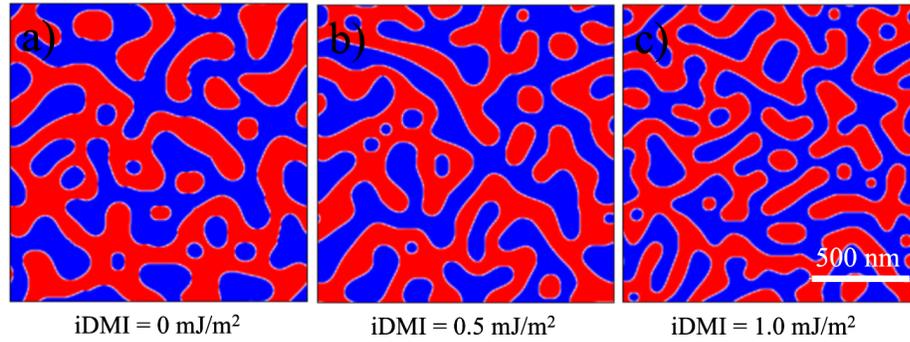


Figure S3: Micromagnetic simulation run for sample Co 0.5 nm disregarding any Pt proximity induced moment to estimate the magnetic parameters, carried out for different iDMI values. The red-white-blue colormap represents the out-of-plane magnetization ($+M_z$ - in-plane - $-M_z$).

4 ARTIGO 3: SATURATION MAGNETIZATION REDUCTION IN ASYMMETRIC $\text{Pt}/\text{Co}/\text{Hf}/\text{Pt}$ MULTILAYERS: IMPLICATIONS FOR SPINTRONICS DEVICES

Este trabalho será submetido para publicação após a conclusão da tese. O trabalho segue as normas e formatação original das revistas Physical Review.

Saturation magnetization reduction in asymmetric Pt/Co/Hf/Pt multilayers: implications for domain wall and skyrmions motion

Danian A. Dugato,^{1,2} Jeovani Brandão,² Fanny Béron,³ Samuel Flewett,⁴ Lucio S. Dorneles,¹ and Thiago J. A. Mori²

¹*Departamento de Física, Universidade Federal de Santa Maria, 97105-900 Santa Maria RS, Brazil*

²*Laboratório Nacional de Luz Síncrotron, Centro Nacional de Pesquisa em Energia e Materiais, 13083-970 Campinas SP, Brazil*

³*Instituto de Física Gleb Wataghin, Universidade Estadual de Campinas, 13083-859 Campinas SP, Brazil*

⁴*Instituto de Física, Pontificia Universidad Católica de Valparaíso, Avenida Universidad 330, Valparaíso, Chile*

Magnetic domain and skyrmions observed in multilayers have high potential for technological applications, such as logic gate and racetrack memory devices. One important issue to develop new magnetic memories is the skyrmion Hall effect (SkHE), which can annihilate the skyrmions in the device's edge. In this work, we established a strategy to reduce the SkHE by reducing the saturation magnetization in perpendicularly magnetized multilayers. We fabricated Pt/Co/Pt sputtered multilayers with the insertion of Hf at the Co/Pt interface and extracted the magnetic properties by using a vibrating sample magnetometry, magnetic force microscopy, and scanning transmission X-ray microscopy. We found that for thick Hf layer (4 nm), the saturation magnetization reduces about 70 % compared to thin Hf layer (0.4 nm). This may be explained by the negative magnetic proximity effect arising at the Co/Hf interfaces. The drastic reduction of the saturation magnetization with the Hf insertion decreases the multilayer stray fields, allowing to move chiral magnetic domain and skyrmions with large velocities and almost vanishing SkHE.

I. INTRODUCTION

Ferromagnetic/heavy-metal multilayers are promising for developing systems with perpendicular magnetic anisotropy (PMA) for applications such as recording media and logic gate^{1,2}. Several materials have been explored such as Pt/Co/Pt³, Pd/Co/Pd⁴, Au/Co⁵. Besides PMA, the electronic interactions at the ferromagnetic/heavy-metal (FM/HM) interface give rise to other phenomena like interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction (iDMI)^{6,7} and magnetic proximity effect (MPE)^{8,9}. The iDMI, i.e. an antisymmetric exchange interaction, is mandatory to stabilize chiral domains and magnetic skyrmions, which are promising for spintronics devices like racetrack memory¹⁰.

Both iDMI and MPE depend on the orbital hybridization between the FM and the HM. The amplitude and sign of both these interaction can be adjusted by stacking engineering^{11,12}. The MPE yields to an induced moment in the heavy metal's interface atoms. Such a proximity induced moment contributes to the total multilayer moment. Therefore, the MPE impacts on another important parameter, the saturation magnetization (M_s). Along with PMA, these parameters determine the main sample magnetic properties, providing a parameters set that can be tailored to tune the magnetic domain formation.

The magnetization state and magnetic domain motion can be controlled by an electric current or an applied field^{13,14}. The magnetic domain motion depends on the domain wall (DW) movement. According to 1D model proposed by Fert et. al., the DW velocity (v) scales as¹⁵:

$$v \propto \frac{D}{M_s}, \quad (1)$$

where D is the strength of the iDMI. Thus, the control of these properties is important to obtain faster domain wall motion. In Pt/Co/Gd, where an antiparallel coupling between the magnetic moments of Gd and Co is observed, the M_s reduces about 2 times compared with a reference sample. Consequently, the DW velocity increases about twice as much¹⁶.

Although magnetic skyrmion can be moved without any interaction with defects, the skyrmion Hall effect (SkyHE) harms the movement¹⁷. The SkyHE acts on the skyrmion making its trajectory non-linear. Similar to the Magnus effect from classic mechanics, the

SkyHE imposes a transverse displacement to the skyrmion. The transverse transport of ferromagnetic skyrmions is unwelcome for practical applications owing their annihilation at the edges of the devices. The motion of a skyrmion can be described by the Thiele equation (more details in appendix A), the transverse motion (due to SkyHE) increasing linearly with M_s .

Therefore, the M_s reduction is important for increasing the domain wall speed as well as for decreasing the skyrmion Hall effect. Here, we explore the Hf antiparallel magnetic proximity effect of Hf to compensate the Co magnetic moment, reducing the M_s . At the same, the Hf insertion at the Co/Pt interface provides an additive iDMI, which can lead to skyrmion formation. We fabricated asymmetric Pt/Co/Hf/Pt multilayers with different Hf thickness to analyse the magnetic properties and magnetic domain/skyrmions formation.

II. METHODOLOGY

To study the magnetic domain formation with low saturation magnetization, we grew samples based on a structure of nominal composition [Pt(1 nm)/Co(1 nm)/Hf(t)/Pt(1 nm)] \times 15, with $t = 0, 0.4, 0.6, 1.0, 2.0, 3.0$ or 4.0 nm. Fig. 1(a) shows a representation of the multilayer stacking. The samples were deposited on Si/SiO₂ substrates (with area of the 0.29 cm²) and Si₃N₄ membranes by magnetron sputtering from metallic targets, at room temperature and 3 mTorr of argon atmosphere.

Magnetic properties of the samples were measured using a LakeShore vibrating sample magnetometer (VSM). The VSM was calibrated with a Ni standard that has a known magnetic moment.

Magnetic domain images were acquired by magnetic force microscopy (MFM) and scanning transmission X-ray microscopy (STXM). The scanning probe microscope is a NanoSurf Flex operating on the dynamic force mode, with Multi75-G MFM (75 kHz) tips from Budget Sensors. The tips magnetic moment and coercivity are roughly 10^{-16} Am² and 24 kA/m, respectively. The MFM tip was kept about 60 nm above the sample surface. The scanning transmission X-ray microscopy (STXM) measurements were acquired at the 7.0.1 COSMIC beamline at the Advanced Light Source¹⁸. We used circularly polarized X-ray at the Co L₃

edge (781 eV) with focus around 50 nm as provided by a zone plate that moves to scan the sample.

III. RESULTS

We started to characterize the magnetic properties by vibrating sample magnetometry. In the Fig. 1b we show the hysteresis loops for out-of-plane magnetic field. The reference sample (without Hf) presents a tail-like magnetization curve, usual behavior for samples with weak PMA³. The Hf insertion changes drastically the shape and amplitude of the curves. Fig. 1c shows the saturation magnetic moment as a function of Hf thickness. All samples have the same area (0.29 cm²), thus the amplitudes of the magnetic moment are directly comparable. We can separate the sample magnetic behavior in three stages. The first one is for sample with thinner Hf layer (0-0.4 nm), whose magnetic moment is close to the reference sample one. While the multilayer with 1 nm of Hf is in an intermediate stage, there is a plateau for samples with thicker Hf layers (2-4 nm).

The magnetic moment reduces almost 3 times, from $\approx 0.55 \mu\text{Am}^2$ (reference sample) to $\approx 0.2 \mu\text{Am}^2$ (plateau stage). The moment reduction can be explained by the presence of Hf, which acquires negative magnetic moment^{19,20}. The orbital hybridization at the Co/Hf interface modifies the electronic structure in such a way that the Hf acquires antiparallel magnetic moment, decreasing the total moment of the sample. The increase of the Hf thickness adds more Hf atoms to acquire negative moment. The effect increases until get saturated for thickness above 2 nm. This saturation occurs because MPE is an interfacial effect. Therefore, we can assert that Hf atoms more than 2 nm away from the Co/Hf interface do not acquire antiparallel moment.

Fig. 1d exhibits the perpendicular saturation field (H_s) as a function of Hf thickness. The H_s scales with the decrease in magnetic moment as a function Hf thickness. Again, we draw attention to a plateau observed for thicknesses above 2 nm of Hf. The saturation field reduces almost one order of magnitude from thinner Hf to thicker Hf. This behavior is expected, since it is a consequence of the reduction in the amplitude of the magnetic moment. This result is promising for magnetic domain applications because it demonstrates that the energy to reverse the magnetization can be reduced.

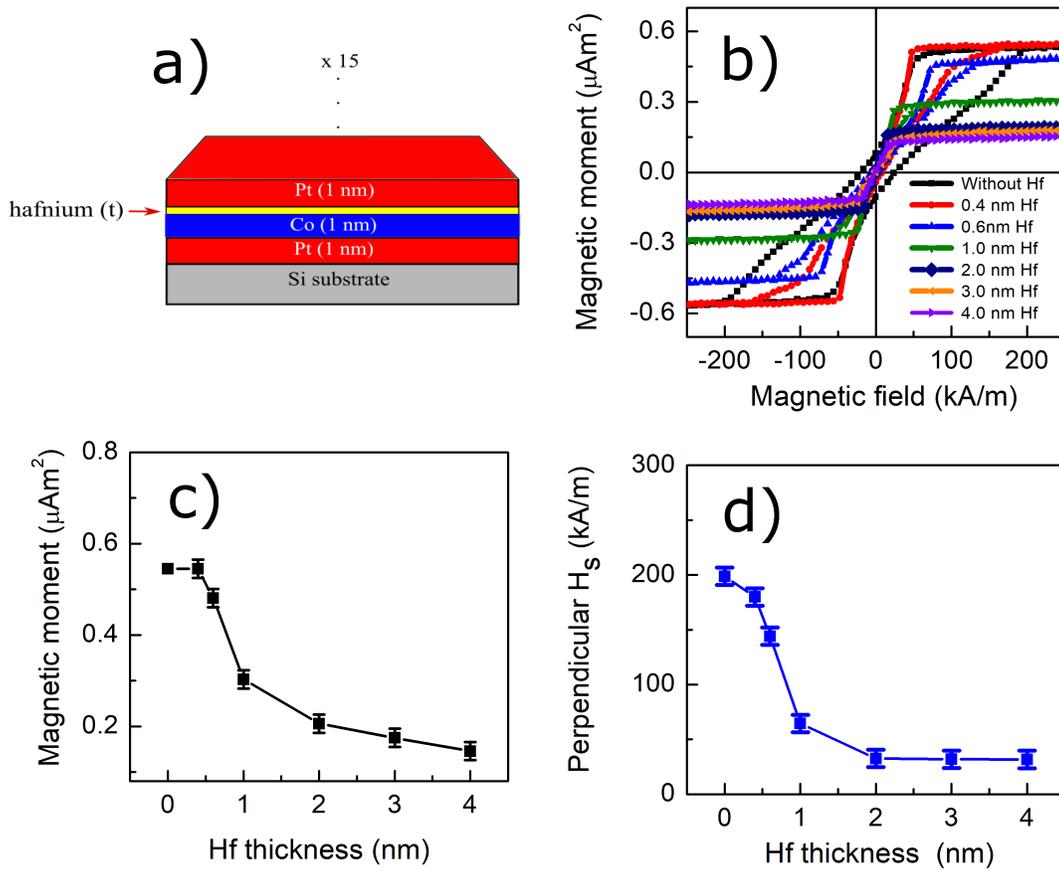


Figure 1. (a) Diagram representing the sample structure. (b) Out-of-plane magnetization curves. (c) Magnetic moment as a function of Hf thickness. (d) Evolution of the perpendicular H_s with the Hf thickness.

The images of the magnetic domain formation performed by magnetic force microscopy is shown in Fig. 2. For the reference sample (without Hf), a labyrinth state is observed, coexisting with some circular domains [Fig. 2a]. This pattern is usually found in the literature for multilayers with weak perpendicular magnetic anisotropic³. The insertion of a thin Hf layer (0.4 nm) makes the magnetic domains evolve to extend stripes, as shown in Fig. 2b. Further increasing the Hf thickness to 0.6-1.0 nm leads to stripes a little farther apart, with a few skyrmions-like domains among them [Fig. 2c,d]. Although the MFM images of the sample with 2 nm of Hf, which is on the plateau of the magnetic moment, exhibits a

very weak magnetic signal, it is possible to observe a similar domain formation with a little thicker stripes. On the other hand, for thicker Hf layers (3-4 nm) we did not succeed in measuring the MFM images, likely due to the lack of sensitivity of the MFM to detect very low magnetic moment domains.

Although the magnetic properties change drastically, the magnetic domains' formation is very similar between different Hf thicknesses. For all samples we have a mix state of stripes and circular domains. We chose one sample of each stage of magnetic moment, i.e. high moment (0.4 nm), intermediate moment (1.0 nm), and low moment (2.0 nm) to grow identical samples on Si_3N_4 membranes to image by scanning transmission X-ray microscopy. The STXM images are shown in the Fig. 3a,b,c. The measured magnetic domain formation is very similar to the one measured by MFM. However, we can better identify the presence of circular domains. We estimate the domain and skyrmion size by full width at half maximum (FWHM) as shown in Fig. 3d. We found about 100 nm for 0.4 and 2.0 nm Hf thickness, and about 180 nm for 1 nm. All samples exhibits circular domains, with similar size about 170 nm. In particular, an increase in the skyrmion density was observed for the sample with 2.0 nm of Hf. The STXM image of this sample (Fig. 3c) provides a magnetic contrast with better resolution, allowing one to identify a large amount of skyrmions. The sample with 2.0 nm of Hf presents 3 times more skyrmions as compared to samples with 0.4 and 1.0 nm.

The broken inversion symmetry that arises from the insertion of a different HM at the top Co/Pt interface generates a net iDMI. It has been observed that the iDMI of the Pt/Co/Hf(t)/Ta is between 1.2 and 1.6 mJ/m², being almost constant with the Hf thickness²¹. Besides, the iDMI sign of the Hf/Co interface is opposite to the one of the Pt/Co interface, thus the top interface is additive to the bottom one²². The additive iDMI explains the presence of skyrmions between the stripes in our MFM images (Fig. 2). Furthermore, the insertion of Hf can yield to the enhanced DW speed, as it increases with the iDMI (Eq. 1).

To understand the magnetic domain formation at zero field, we analyze the remnant magnetic moment. In the Fig. 4a we show this parameter as a function of the Hf thickness. For the reference sample (without Hf), the remnant moment is about 0.09 μAm^2 that corresponds to 17 % of the saturation moment. This is considered a low remnant moment. For the sample with 1 nm of Hf, the remnant moment is about 0.01 μAm^2 , that corresponds to 3.3 % of its saturation moment. The remnant state indicates how compensated the domains

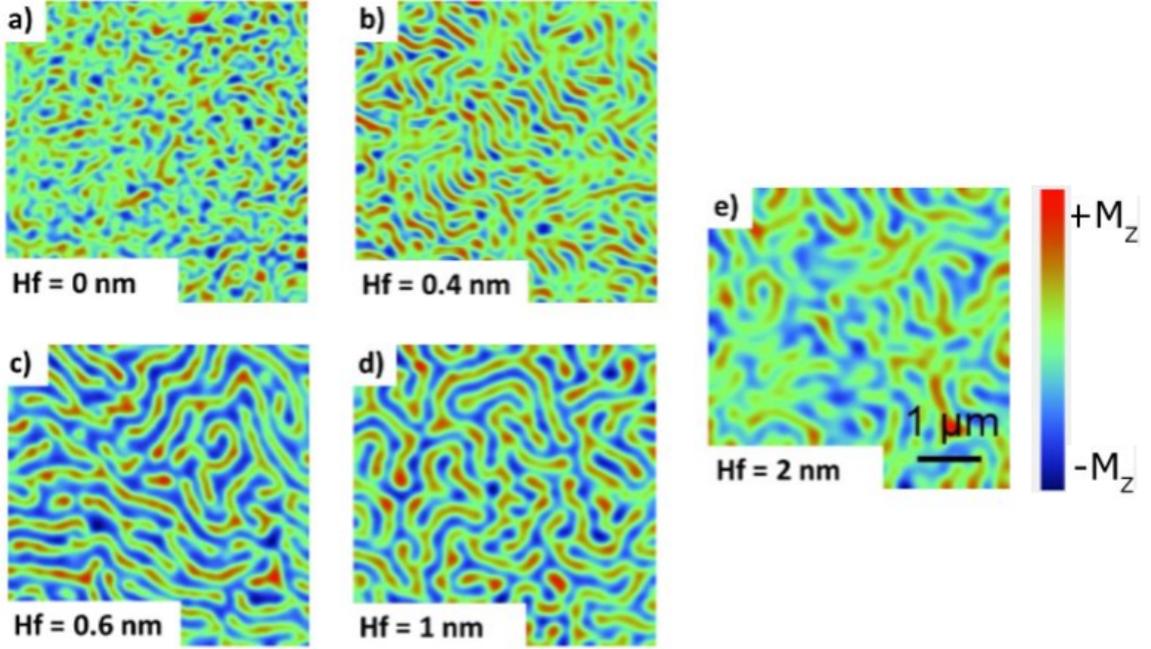


Figure 2. Magnetic force microscopy images for different Hf thickness measured at zero magnetic field.

are. Therefore, the low remanence suggests that a similar amount of up and down domains is present at zero field. This is corroborated by the MFM and STXM images.

In its turn, the coercive field (H_c), i.e. the magnetic field required to set a zero magnetization, is proportional to the difference between up and down domains observed at remanence. The Fig. 4b exhibits the H_c as a function of the Hf thickness, which clearly scales with the remnant moment curve. The H_c is 23 kA/m for the reference sample and drops to almost zero for Hf layers thicker than 1 nm. The evolution of the magnetic properties shown in Fig. 4 corroborates with the similar magnetic contrast observed for samples with 0.6 nm and 1.0 nm of Hf thickness. It is worth noting that the reduction of the H_c suggests that the Hf insertion is probably not leading to rougher interfaces. Indeed, it has been reported that a Hf concentration of above 3 % in CoHfTa thin films causes a grain size reduction, which is accompanied by the decrease in H_c ²³.

The Fig. 5a shows the magnetic moment as a function of the in-plane magnetic field. The anisotropy field (H_k), i.e. the saturation field extracted from this hard axis magnetization curve, is plotted in Fig. 5b as a function of the Hf thickness. It is ≈ 600 kA/m for the

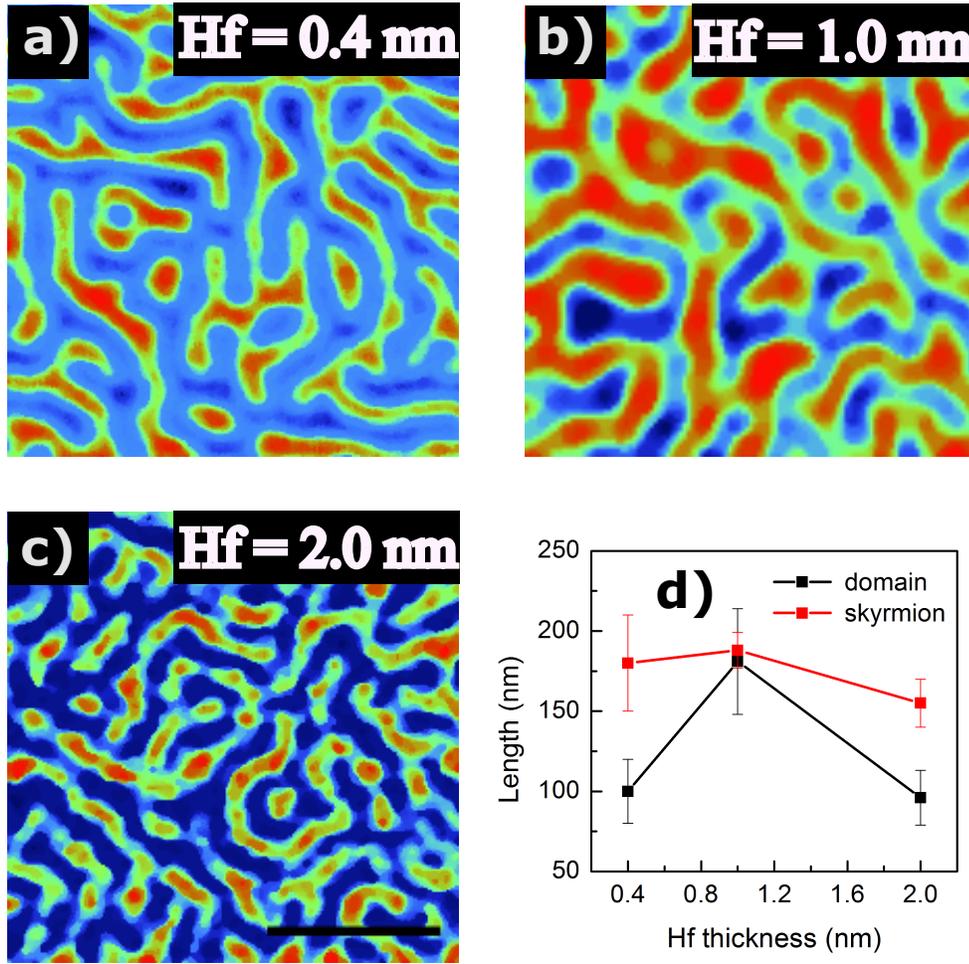


Figure 3. Scanning transmission X-ray microscopy measurements for samples with (a) 0.4 nm, (b) 1.0 and (c) 2.0 nm of Hf. The scale bar is 1 μm . (d) Domain and skyrmion size as a function of Hf thickness extracted by the full width at half maximum of the domain or skyrmion cross section.

reference sample, reducing to ≈ 160 kA/m for the thicker samples and presenting an off-trend behavior for the sample with 0.4 nm of Hf. For this sample, the H_k almost double its value compared to the reference sample, as shown in the Fig. 5b. It has been observed a similar behavior for low concentration of Hf in CoHfTa thin films, ie. a peak in the curve of H_k vs Hf concentration, which is suggested to arise from larger grain sizes²³. However, in ref.²³ the H_c behavior scales with H_k , that is not the case of our results. In this sense, a deeper structural analysis of this sample is needed to understand such an unexpected anisotropy.

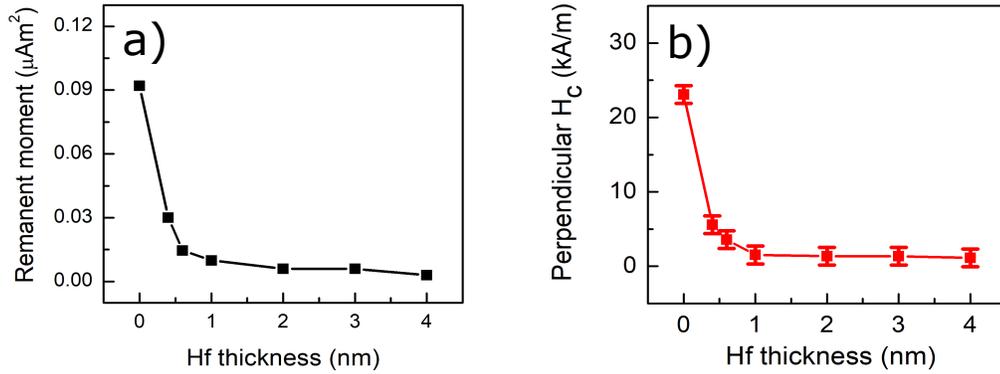


Figure 4. (a) Remanent moment and (b) coercivity as a function of the Hf thickness.

This will be explored in a future work.

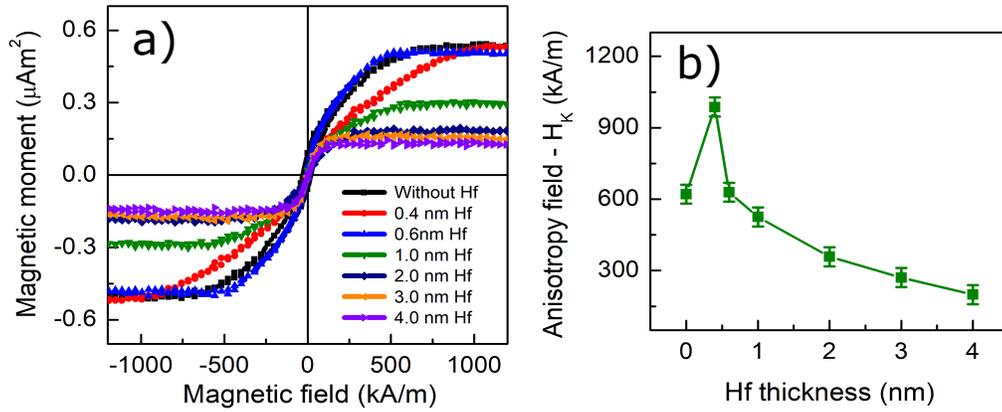


Figure 5. Hysteresis loops as a function in-plane magnetic field for different Hf thickness (a) Anisotropy field (b).

The Fig. 6 shows the saturation magnetization as a function of the Hf thickness. The M_s is estimated by dividing the saturation magnetic moment by the Co nominal volume, as we did not quantify neither the Pt nor the Hf proximity induced moment. The M_s of the reference sample is close to the bulk value, $\approx 1230 \text{ kA/m}^{24}$. Nevertheless, it reduces around 70 % for the thicker multilayers reaching $\approx 390 \text{ kA/m}$. It is important to note that the effective saturation magnetization would be lower if we consider the Hf magnetic volume. For example, a reduction of $\approx 83 \%$ to 158 kA/m (with respect to the reference sample)

would be the result in the case we take into account 2 nm of Hf.

In addition to the Hf antiparallel induced moment, the insertion of Hf at the Co/Pt interface also weakens the Co-Pt MPE. It has been observed that a Pt layer more than 1 nm away from the Co interface does not acquire moment²⁵. Furthermore, it is possible that a magnetic dead layer is being formed at the interface, as it has been observed for Pt/CoFe/Hf/HfO₂ multilayers²². In this reference it is reported a reduction of 50 % in the total magnetic moment when 2 nm of Hf is added on the top of the CoFe. To better understand the impact of this phenomenon in the Pt/Co/Hf/Pt system, we have fabricated a set of samples with varying Co thickness. This will be explored in a future work.

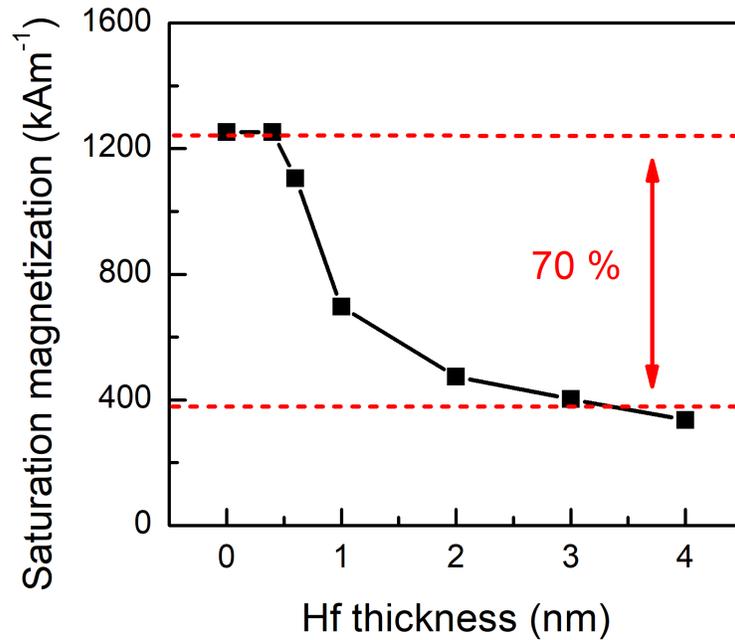


Figure 6. Saturation magnetization as a function of the Hf thickness.

Although we have not observed isolated skyrmions, by applying a perpendicular magnetic field it is possible to turn stripes into skyrmions as the multilayers present iDMI²⁶. In the case of the sample with 2 nm of Hf, the out-of-plane saturation field is ≈ 30 kA/m (Fig. 1d). Thus, it should be possible to stabilize skyrmions by applying a magnetic field slightly lower than 30 kA/m. In this sense, the skyrmion Hall effect could be studied in more details by applying an external field to stabilize skyrmions in these samples. This will be explored in a

future work.

We observed a reduction of $\approx 70\%$ in M_s for Hf thickness above 2 nm. This low magnetic moment is promising for skyrmionic applications based on DW motion, spin current and racetrack. Further dynamic studies with applied magnetic field and electric current are required. The low moment domains and skyrmions may provide further advantages compared to the high magnetic moment DW counterpart. The main improvement is the high velocity that these DW and skyrmions can acquire, thus allowing faster devices to be developed. Besides, high moment skyrmions can be annihilated at the track edges when a vertical electric current is applied because of the skyrmion Hall effect, and hence their information is lost. This behavior is expected to be suppressed or minimized for low moment skyrmions.

IV. CONCLUSION

In summary, we show a strategy to reduce the magnetic moment/saturation magnetization by up to 70 % and still preserve PMA and domain/skyrmion formation. We use a heavy-metal that has a negative magnetic proximity effect and increase its thickness until it reaches the saturation of the effect. Reducing saturation magnetization is promising for applications. The domain wall velocity scales with the inverse of M_s , so that a 70 % reduction in M_s can result in a 70 % increase in domain wall speed. Furthermore, the skyrmion Hall effects is directly linked to saturation magnetization, thus a reduction in M_s can minimize this unwanted effect.

V. ACKNOWLEDGMENTS

This work was partially supported by the Brazilian agencies FAPESP (Projects No. 2012-51198-2, 2017/10581-1, and 2020/07397-7), CAPES and CNPq (Projects No. 309354/2015-3, 302950/2017-6, 436573/2018-0, 436862/2018-2, and 313667/2020-9). We thank the COSMIC beamline of the Advanced Light Source (ALS/LBNL) for the synchrotron beamtimes, and the Microfabrication Laboratory of the Brazilian Nanotechnology National Laboratory (LNNano/CNPEM) for growing sample facilities. This research used resources of the Advanced Light Source, a U.S. DOE Office of Science User Facility under contract no. DE-AC02-05CH11231.

VI. APPENDIX A

The motion of a skyrmion can be effectively described by the Thiele equation^{27,28}:

$$-4\pi\mathbf{N}_{sk}\left(\frac{M_s t}{\gamma}\right)\tilde{\mathbf{e}}_z \times \frac{d\tilde{\mathbf{r}}}{dt} - T\alpha\left(\frac{M_s t}{\gamma}\right)\frac{d\tilde{\mathbf{r}}}{dt} - \frac{\hbar}{2e}\Theta_{SH}\vec{j}I_s = \nabla U(\tilde{\mathbf{r}}). \quad (2)$$

The first term describes a transverse motion, where N_{sk} is the topological charge, γ is the gyromagnetic ratio and t the thickness of the magnetic layer. The second term describes dissipation, where T is a dissipative tensor and α is the Gilbert damping. The third term is the spin-orbit torque. An applied current (density \vec{j}) flows in the heavy metal and injects spins (\vec{s}) into the ferromagnet from the perpendicular direction by spin Hall effect^{29,30}. I is the torque tensor and Θ_{SH} is the spin Hall angle, that corresponds to the relationship between charge current and spin current conversion.

REFERENCES

- ¹S. N. Piramanayagam, “Perpendicular recording media for hard disk drives,” *J. Appl. Phys.* **102**, 011301 (2007).
- ²D. A. Allwood, G. Xiong, C. C. Faulkner, D. Atkinson, D. Petit, and R. P. Cowburn, “Magnetic domain-wall logic,” *Science* **309**, 1688–1692 (2005).
- ³D. Dugato, J. Brandão, S. Flewett, F. Béron, L. S. Dorneles, and T. J. de Almeida Mori, “Magnetic proximity effect at Co/Pt interfaces and isolated skyrmion bubbles stabilization at zero field,” under review (2021).
- ⁴P. F. Carcia, “Perpendicular magnetic anisotropy in pd/co and pt/co thin-film layered structures,” *J. of Appl. Phys.* **63**, 5066 (1998).
- ⁵F. den Broeder et al., “Perpendicular magnetic anisotropy of co/au multilayers induced by interface sharpening,” *Phys. Rev. Lett.* **60(26)**, 2769 (1998).
- ⁶I. Dzyaloshinsky, “A thermodynamic theory of weak ferromagnetism of antiferromagnetics,” *J. Phys. Chem. Sol.* **4**, 241–255 (1958).
- ⁷T. Moriya, “Anisotropic superexchange interaction and weak ferromagnetism,” *Phys. Rev.* **120**, 91–98 (1960).

- ⁸M. J. Zuckermann, “The proximity effect for weak itinerant ferromagnets,” *Solid State Comm.* **12**, 745 (1973).
- ⁹G. Bergmann, “Transition from Pauli paramagnetism to band ferromagnetism in very thin films,” *Phys. Rev. Lett.* **41**, 264 (1978).
- ¹⁰S. S. P. Parkin, M. Hayashi, and L. Thomas, “Magnetic domain-wall racetrack memory,” *Science* **320**, 190–194 (2008).
- ¹¹P. Jadaun, L. F. Register, and S. K. Banerjee, “The microscopic origin of DMI in magnetic bilayers and prediction of giant DMI in new bilayers,” *Computational Materials* **6**, 88 (2020).
- ¹²H. Akai, “Nuclear spin-lattice relaxation of impurities in ferromagnetic iron,” *Hyperfine Interact* **43**, 253 (1998).
- ¹³T. H. E. Lahtinen, K. J. A. Franke, and S. van Dijken, “Electric-field control of magnetic domain wall motion and local magnetization reversal,” *Sci. Rep.* **2**, 258 (2012).
- ¹⁴S. K. Karna, M. Marshall, W. Xie, L. DeBeer-Schmitt, D. P. Young, I. Vekhter, W. A. Shelton, A. Kovács, M. Charilaou, and J. F. DiTusa, “Annihilation and control of chiral domain walls with magnetic fields,” *Nano Lett.* **21**, 1205 (2021).
- ¹⁵A. Thiaville, S. Rohart, E. Ju, V. Cros, and A. Fert, “Dynamics of Dzyaloshinskii domain walls in ultrathin magnetic films,” *Europhysics Letters* **100**, 57002 (2012).
- ¹⁶J. V. . J. S. M. V. . . J.-C. R.-S. . . M. B. D. S. C. . F. C. P. O. E. O. A. T. Thai Ha Pham¹,
2 and S. Pizzini¹, “Very large domain wall velocities in Pt/Co/GdOx and Pt/Co/Gd trilayers with Dzyaloshinskii-Moriya interaction,” *Europhysics Letters* **113**, 67001 (2016).
- ¹⁷W. Jiang, X. Zhang, G. Yu, W. Zhang, X. Wang, M. Benjamin Jungfleisch, J. E. Pearson, X. Cheng, O. Heinonen, K. L. Wang, Y. Zhou, A. Hoffmann, and S. G. E. Te Velthuis, “Direct observation of the skyrmion Hall effect,” *Nat. Phys.* **13**, 162 (2017).
- ¹⁸D. Shapiro, S. Roy, R. Celestre, W. Chao, D. Doering, M. Howells, S. Kevan, D. Kilcoyne, J. Kirz, S. Marchesini, K. A. Seu, A. Schirotzek, J. Spence, T. Tyliczszak, T. Warwick, D. Voronov, and H. A. Padmore, “Development of coherent scattering and diffractive imaging and the COSMIC facility at the advanced light source,” *J. Phys.: Conf. Ser* **425**, 192011 (2013).
- ¹⁹H. Akai, “Nuclear spin-lattice relaxation of impurities in ferromagnetic iron,” *Hyperfine Interact* **43**, 253 (1998).
- ²⁰R. Wienke and G. Schutz, “Determination of local magnetic moments of 5d impurities in

- fe detected via spin-dependent absorption,” J. Appl. Phys. **69**, 6147 (1991).
- ²¹K. Shahbazi, *Dzyaloshinskii-Moriya Interaction and Domain Wall Motion in Polycrystalline and Epitaxial Magnetic Multilayers*, Doctor of philosophy, University of Leeds, Leeds (2018).
- ²²D. Ourdani, Y. Roussigné, R. B. Mos, M. Nasui, S. M. Chérif, M. S. Gabor, and M. Belmeguenai, “Hf thickness dependence of perpendicular magnetic anisotropy, damping and interfacial dzyaloshinskii-moriya interaction in pt/cofe/hf/hfo₂,” Phys. Rev. Mater. **5**, 084404 (2021).
- ²³S.-W. Huang, Y.-T. Lai, and J.-G. Duh, “Effects of the hf content on the microstructure and magnetic properties of co-hf-ta thin films,” Appl. Surf. Sci. **257**, 2042 (2011).
- ²⁴M. Stearns, *Condensed Matter* (Heidelberg, Oxford, 1986) p. 37.
- ²⁵J. Geissler, E. Goering, M. Justen, F. Weigand, G. Schutz, J. Langer, D. Schmitz, H. Maletta, and R. Mattheis, “Pt magnetization profile in a Pt/Co bilayer studied by resonant magnetic X-ray reflectometry,” Phys. Rev. B **65**, 020405(R) (2001).
- ²⁶P. Milde, D. Köhler, J. Seidel, L. M. Eng, A. Bauer, A. Chacon, J. Kindervater, S. Mühlbauer, C. Pfleiderer, S. Buhbrandt, C. Schütte, and A. Rosch, “Unwinding of a skyrmion lattice by magnetic monopoles,” Science **340**, 6136 (2013).
- ²⁷A. Thiele, “Steady-state motion of magnetic domains,” Phys. Rev. Lett **30**, 230 (1973).
- ²⁸B. Gobel, J. Mook, A. and Henk, and M. I., “Overcoming the speed limit in skyrmion racetrack devices by suppressing the skyrmion hall effect,” Phys. Rev. B **99**, 020405 (2019).
- ²⁹M. Dyakonov and V. Perel, “Possibility of orienting electron spins with current,” JETP Lett. **13**, 657/467 (1971).
- ³⁰M. Dyakonov and V. Perel, “Current-induced spin orientation of electrons in semiconductors,” Phys. Lett. A **35**, 459 (1971).

5 DISCUSSÃO

Os três efeitos interfaciais estudados são dependentes das características da interface FM/MP, assim, quando buscamos ajustar um dos efeitos influenciaremos também os demais. É praticamente impossível alterar apenas um dos efeitos. No entanto, dependendo de qual material inserimos ou modificamos, podemos intensificar um determinado efeito mais do que outro. É exatamente isto que observamos nesta tese, em cada um dos trabalhos nota-se que as variações impostas pela mudança de espessuras influenciaram mais um efeito. No capítulo 2, observamos uma maior influência da interação DM, no capítulo 3 da AMP e do EPM e no capítulo 4 do EPM.

Influência da interação DM na formação de domínios magnéticos

A interação DM age principalmente nas paredes de domínios, e assim permite a obtenção de domínios magnéticos quirais. O sinal da interação DM fixa a orientação da parede de domínio no mesmo sentido da interação. A interação age como se houvesse um campo externo favorecendo uma orientação. A quiralidade das paredes de domínios é muito importante para aplicações, visto que paredes de domínio com quiralidade fixa podem ser movimentadas em diferentes sentidos através da inversão do sentido de uma corrente aplicada.

Não tivemos disponível nenhum aparato experimental para realizar a medida da interação DM. Assim, a nossa análise da interação foi baseada em valores publicados na literatura e simulações micromagnéticas. Através da caracterização magnética feita por VSM obtivemos os parâmetros magnéticos M_s e K . Estes valores experimentais foram utilizados como parâmetros de entrada para as simulações e obter a formação de domínios correspondente. Implementamos a interação DM no cálculo e acompanhamos o seu impacto comparando com a formação de domínios experimentais [24, 96].

Uma amostra perfeitamente simétrica não tem interação DM resultante, visto que a interação da interface MP/FM se cancela com a da interface FM/MP. Porém, como discutido anteriormente, imperfeições na deposição por *magnetron sputtering* podem deixar as interfaces levemente distintas estruturalmente. Desta forma, a amostra apresenta valores não-nulos de interação DM. Para obter o cancelamento total da interação DM as interfaces teriam que ser idênticas, o que poderia ser conseguido com o uso de técnicas com maior controle de rugosidade, como epitaxia por feixe molecular.

Multicamadas assimétricas

No capítulo 2 investigamos o impacto de altos valores de DM gerados pela assimetria das amostras na formação de domínios magnéticos. Utilizando materiais com sinais opostos da interação DM construímos um sistema aditivo de interação DM. As interfaces Co/W e Pd/Co contribuíram com o mesmo sinal da interação DM, permitindo a obtenção de valores altos. Além disso, conseguimos ajustar a amplitude da interação DM através da variação da espessura de W.

Observando a formação de domínios magnéticos para o sistema aditivo obtivemos padrões bastante distintos dos da amostra de referência (Fig. 2 capítulo 2). Principalmente para as amostras de 0,1-0,2 nm de W, as quais tiveram uma drástica redução no tamanho de domínios, em torno de 2,5 vezes. Para espessuras maiores de W os domínios magnéticos observados apresentam tamanhos de domínios maiores, sendo para a amostra de 1 nm de W similares aos da amostra de referência.

A drástica redução no tamanho de domínios para as amostras de 0,1-0,2 nm de W causou um incremento de aproximadamente 60 % na densidade de domínios, o que é uma característica benéfica em termos de aplicações em mídias de gravação. Para entender as mudanças significativas na formação dos domínios magnéticos, utilizamos os parâmetros magnéticos destas amostras (M_s e K) para realizar simulações micromagnéticas.

Utilizando os valores de M_s e K da amostra de referência, simulamos o estado fundamental desta amostra. O resultado da formação de domínios foi bastante similar ao experimental (Fig. 3 capítulo 2). Porém, ao simular as amostras de 0,1-0,2 nm de W, o estado de domínios obtido foi muito diferente do experimental. Os domínios magnéticos encontrados foram bem maiores e com orientação no plano da amostra.

Visto que o sistema foi desenvolvido para ter altos valores de interação DM, implementamos na simulação. Realizando variações sistemáticas para a interação DM com valores entre 0,8 e 1,2 mJm^{-2} , conseguimos obter simulações com o tipo e o tamanho de domínios muito próximos aos experimentais das amostras 0,1-0,2 nm de W. Isto sugere que a interação DM desenvolveu um papel importante na redução dos tamanhos de domínios juntamente com as demais propriedades.

Para observar o impacto da interação DM na formação de domínios magnéticos, acrescentamos a interação nas simulações das demais amostras, as quais já haviam apresentado estado de domínios similar ao experimental mesmo sem a interação. Testamos baixos valores da interação DM nas amostras de 0, 0,3 e 1,0 nm de W e conseguimos obter domínios simulados ainda mais similares aos experimentais. Através das simulações micromagnéticas obtivemos a tendência da interação DM em função da espessura de W (Fig. 4 capítulo 2). Comparando a evolução da interação DM e o tamanho dos domínios em função da espessura de W observamos um comportamento inverso. Domínios menores foram observados para as amostras com maior interação DM.

A evolução da interação DM em função da espessura da camada de W apresentou um pico de intensidade para a espessura de 0,1-0,2 nm. Observamos que para as amostras de 0,1-0,2 nm de W a interação tem um máximo, que corresponde a aproximadamente 4 vezes o valor das demais amostras. Este comportamento ocorre porque a interação DM da interface superior do Co está se somando com a da interface inferior. Por sua vez, o decaimento da interação para espessuras maiores de W não é intuitivo. O mais esperado seria a obtenção de um platô, visto que a interação é interfacial.

Um comportamento similar para a interação DM em função da espessura de W também foi observado em multicamadas análogas [23]. Neste trabalho é realizada a medida da interação DM por espalhamento de luz Brillouin em amostras de Ru/Co/W/Ru com diferentes espessuras de W. A estrutura das amostras é comparável à nossa em termos da interação DM, pois também é um sistema aditivo. Além disso, o Ru tem o mesmo sinal da interação DM do que o Pd.

Neste trabalho também foi observado, de forma experimental, um máximo para a interação DM quando a espessura do W é de aproximadamente 0,2 nm. O aumento da interação DM em comparação a amostra base ocorre porque o sistema é construído para ter a adição entre as interfaces superior (Co/W) e a inferior (Ru/Co). Na referência [23] também é observada uma redução da interação DM para espessuras maiores que 0,2 nm. A não saturação da interação, ou não manutenção de altos valores de interação DM para as espessuras de 0,3 e 1,0 nm de W é atribuída à formação de uma camada magneticamente morta quando o W é mais grosso [97]. A camada morta mais espessa diminui a hibridização orbital e, conseqüentemente, o ASO e A_{ex} na interface, as quais são ingredientes importantes para uma interação DM forte. Desta forma, a interação DM volta a apresentar valores similares à amostra de referência quando a espessura de W é de 0,3 e 1,0 nm.

As amostras de 0,1-0,2 nm de W que apresentaram um pico para a interação DM são as mesmas que tiveram um incremento drástico na densidade de domínios magnéticos. O fato de não termos conseguido reproduzir com simulações micromagnéticas a formação de domínios sem a implementação da interação DM reforça o papel desta interação na estabilização dos domínios magnéticos de alta densidade. Dois fatores contribuíram para termos um sistema com alto valor da interação DM, a assimetria da multicamada e a escolha de materiais com sinais apostos em cada uma das interfaces com o Co. Além disso, a presença de alta interação DM sugere que os domínios magnéticos observados são quirais.

Podemos concluir que um alto valor de interação DM pode contribuir para a redução do tamanho dos domínios magnéticos. Como argumentado no capítulo 2, a diminuição do tamanho dos domínios ocorre devido a diminuição da razão entre PMA e interação DM, o que diminui a energia das paredes de domínios [98]. A hipótese que altos valores de interação DM poderiam tornar domínios do tipo tiras (amostra de referência) em skyrmions

não foi comprovada, mas outros resultados interessantes foram alcançados. O alto valor de DM, juntamente com a AMP e M_s , configurou uma estratégia para ajustar e incrementar a densidade dos domínios magnéticos.

No capítulo 4 estudamos um sistema assimétrico e com aditivo de interação DM, mas com um FM mais espesso e materiais de diferentes ASO. Neste caso, maior espessura do FM garante a formação de uma camada contínua de material. A amostra de referência pertence ao conjunto de amostras do capítulo 3, a multicamada de Pt/Co/Pt com Co de 1 nm, a qual apresentou uma rugosidade relativamente baixa e a formação de uma camada contínua. Para tornar o sistema assimétrico e induzir interação DM, inserimos diferentes espessuras de Hf na interface superior Co/Pt.

Não estimamos através de simulações micromagnéticas a interação DM para as amostras de Pt/Co/Hf/Pt, porém, na literatura foi observado que os valores da interação DM são de aproximadamente $1,5 \text{ mJm}^{-2}$ para um sistema similar de Pt/Co/Hf(t) [99]. Neste estudo foi demonstrado que a variação da espessura de Hf não apresenta modificação na amplitude da interação DM. Se considerarmos um baixo valor da interação para a amostra simétrica de referência ($0,3 \text{ mJm}^{-2}$), a adição de Hf causou um incremento de cerca de 5 vezes na interação DM. Um valor significativo de interação DM é esperado para todas as amostras, visto que todas apresentaram skyrmions entre os domínios do tipo tira.

Neste estudo seria muito interessante medir a interação DM para confirmar a amplitude e a evolução da interação em função da espessura de Hf. O fato de as propriedades magnéticas terem sido muito afetadas pela inserção de Hf e mesmo assim termos a formação de domínios magnéticos muito similares. Conhecer a evolução da interação DM em função da espessura de Hf ajudaria a entender este comportamento. Como observado no capítulo 2, altos valores de interação DM contribuíram para a formação de domínios magnéticos perpendiculares quando houve uma drástica redução da AMP.

Multicamadas simétricas

Nos sistemas nominalmente simétricos a interação DM é baixa e pode ser a chave para estabilização do domínio magnético skyrmion, como já observamos em um trabalho prévio [24]. Nesta tese, também estudamos um sistema nominalmente simétrico, as multicamadas de Pt/Co/Pt. A Pt quando em contato com o Co possui maior interação DM do que o Pd por ter um maior ASO. Assim, o nosso intuito foi investigar o impacto da maior interação DM na formação dos domínios, e a possível estabilização de skyrmions isolados em campo magnético zero. A interação DM tem uma dependência com a espessura da camada de FM, assim variar a espessura permite ajustar a amplitude desta interação. Por ser interfacial, a interação é mais intensa quanto mais fina for a espessura.

A hipótese levantada de estabilizar skyrmions isolados em campo zero, utilizando um MP com maior ASO do que o utilizado na ref. [24], foi confirmada. Como observado no

capítulo 3, skyrmions isolados foram obtidos nas amostras de Pt/Co/Pt. Se compararmos com os skyrmions obtidos em [24], houve diferenças no tamanho e na densidade. Devido o diferente ASO entre a Pt e Pd é esperado que a interação DM seja maior para as amostras de Pt/Co/Pt. Juntamente com as demais propriedades magnéticas, a interação DM permite a estabilização de skyrmions maiores e com menor densidade. Através de simulações micromagnéticas observamos que valores entre 0,3-1,0 mJm⁻² de interação DM permitem estabilizar skyrmions isolados similares aos experimentais. Este fato reforçou que os domínios observados são skyrmions e também o papel da interação DM na sua estabilização.

Na literatura existem trabalhos que mostram que mesmo sistemas nominalmente simétricos podem apresentar interação DM não nula [100]. Por a interação DM ser interfacial sugerimos que ela possa apresentar valores maiores que os já reportados na literatura quando a espessura do FM é ultrafina. A alta desordem interfacial para espessuras inferiores a 1 nm, demonstrada no capítulo 5, pode favorecer o não cancelamento da interação DM entre a interface superior e inferior. No diagrama apresentado no capítulo 5, observamos que valores entre 0,8 e 1,0 mJm⁻² são os que mais permitem a estabilização de skyrmions (Fig. 4 do capítulo 3).

A interação DM é bastante complexa de ser medida e a técnica que nos permitiria a medida é BLS, a qual não temos disponível. Ressaltando o papel da interação na estabilização de domínios quirais e a inevitável presença em sistemas assimétricos, realizamos uma análise qualitativa baseada em referências e simulações micromagnéticas. Como observado, nos três estudos apresentados a interação DM influenciou significativamente na formação dos domínios magnéticos.

Influência do efeito de proximidade nas propriedades magnéticas

O efeito de proximidade magnético influencia principalmente a magnetização de saturação, visto que o momento magnético adquirido pelo MP pode ser adicionado ao, ou subtraído, do momento total da amostra. O momento magnético induzido no MP por EPM muitas vezes é desconsiderado por representar um baixo percentual comparado ao momento magnético total da amostra. Mas, no caso de camadas sub-nanométricas este efeito pode representar uma parcela significativa do momento total da amostra, e afetar significativamente as propriedades magnéticas das amostras. Desta forma, variar o EPM é uma maneira de ajustá-las.

No estudo apresentado no capítulo 2, a redução em 50 % na magnetização de saturação com a inserção de 1 nm de W é uma assinatura da presença de EPM negativo. A evolução em função da espessura de W mostra que, quanto mais material é inserido, mais momento negativo é adquirido, fato que reduz o momento total da amostra. Neste estudo, a espessura do FM foi de 0,5 nm, a qual não chega a formar um filme contínuo como

observado no capítulo 3. A alta desordem interfacial contribuiu para uma maior interação entre os átomos de Co e W, o que polarizou com momento magnético antiparalelo uma grande quantidade de átomos de W.

O momento magnético antiparalelo adquirido pelo MP por EPM reduz o momento total da amostra e, conseqüentemente, a magnetização de saturação. Este comportamento demonstra o sucesso do método de usar MP com EPM negativo para a redução da M_s . Além disso, a AMP também é impactada por ser dependente da M_s . Configurando o ajuste do EPM uma estratégia para reduzir os valores de M_s e AMP, e impactando diretamente na formação dos domínios.

A melhor maneira para medir o EPM seria utilizar técnicas com seletividade química, como o dicroísmo circular magnético de raios X (XMCD), e quantificar o momento relativo apenas ao MP. Porém, as estações experimentais disponíveis não nos permitiram realizar esta caracterização devido à demanda de raios X de alta energia circularmente polarizados. Mesmo assim, encontramos uma estratégia indireta para analisar o momento induzido na Pt, como apresentado no capítulo 3.

Utilizando as técnicas de VSM e XMCD obtivemos o momento magnético adquirido pela camada de Pt. Observamos que as amostras com espessura de Co inferior a 1 nm apresentaram uma alta contribuição da Pt para o momento total da amostra. O momento adquirido pela Pt por EPM da amostra de Co 0,5 nm foi de cerca de 4,5 vezes maior do que o adquirido para as amostras mais espessas de Co. Esta polarização magnética impacta diretamente nos parâmetros magnéticos das amostras, visto que o volume de Pt polarizada magneticamente precisa entrar no cálculo da M_s e da anisotropia. Porém, estimar este volume não é uma tarefa simples. Poderíamos utilizar os valores de momento magnético que a Pt geralmente adquire fornecido pela literatura e converter o momento obtido para um volume de material. No entanto, como discutido anteriormente, a polarização por EPM tem um decaimento exponencial a partir da interface FM/MP, o que inviabiliza estimar o volume com precisão. Técnicas como espalhamento de raios X ressonante (XRMR) poderiam fornecer o perfil do momento magnético induzido por EPM, mas não a tivemos disponível.

A nossa análise permitiu afirmar a presença do EMP nas multicamadas de Pt/Co/Pt, porém não conseguimos estimar com precisão a espessura de Pt polarizada. Para entender melhor o MPE nas amostras e estimar um intervalo de espessura de Pt que possa ter EPM, realizamos simulações micromagnéticas considerando apenas o volume de Co no cálculo dos parâmetros e também considerando diferentes volumes/espessuras de Pt polarizada para a amostra de Co 0,5 nm.

Observamos que é preciso considerar uma espessura mínima de 0,15 nm de Pt para conseguirmos reproduzir a formação dos domínios magnéticos experimentais. Como apresentado na Fig. 4 do capítulo 3, a espessura que melhor reproduz a formação de domínios experimentais é 0,45 nm de Pt magnética.

Considerando a espessura de Pt polarizada como 0,45 nm, a magnetização de saturação efetiva e a anisotropia uniaxial são 475 kAm^{-1} e $K = 0,51 \text{ MJm}^{-3}$, respectivamente. Estes valores são bem distintos dos obtidos considerando apenas o volume nominal de Co para o cálculo, que são $M_s = 1334 \text{ kAm}^{-1}$ e $K = 2,15 \text{ MJm}^{-3}$. Note que há uma diferença de cerca de 65 % no valor de M_s . O valor obtido considerando apenas o volume do Co é muito próximo ao do Co volumétrico.

Uma espessura de 0,45 nm de Pt polarizada magneticamente corresponde ao caso de ser considerado um momento de $0,36 \mu_B/\text{átomo}$ adquirido pela Pt, valor reportado na literatura para liga de CoPt. Isto sugere que a desordem interfacial das amostras sub-nanométricas está promovendo ligações Co-Pt mais intensas, o que está por trás do EPM inesperado para estas amostras. Apesar de não ter sido possível quantificar com precisão a espessura de Pt que adquire momento magnético, ela pode representar uma parcela significativa do volume magnético da amostra. Inclusive, em amostras com camadas sub-nanométricas de Co, o EPM pode magnetizar volumes de Pt que são maiores que o volume total de Co. Portanto, este efeito é bastante relevante, por exemplo, para estimar corretamente os parâmetros magnéticos usados como entrada em simulações micromagnéticas.

No capítulo 2 observamos o impacto do EPM negativo em função da espessura do MP através da redução da M_s . Neste estudo, o FM tem espessura de 0,5 nm. Como observado no capítulo 3, esta espessura não chega a formar um filme contínuo, tendo uma interface com alta desordem. Para entender o EPM negativo sem tanta influência da rugosidade do FM, realizamos um estudo utilizando uma camada de FM mais espessa, 1 nm. No capítulo 3 encontramos que esta espessura já forma uma camada contínua e com rugosidade relativamente baixa.

Nestas amostras com menor rugosidade, utilizamos outro material com EPM negativo, o Hf. De maneira análoga ao capítulo 4, variamos a espessura do material para ajustar a amplitude do EPM. A presença do EPM negativo foi observada pela redução do momento total com o incremento de material. Como visto no capítulo 4, para espessuras acima de 2 nm de Hf chegamos próximo a saturação do efeito, visto que o momento magnético passou a variar pouco com o incremento de Hf.

Analisando o EPM pelo momento magnético observamos impactos mais significativos do que os observados no estudo do W. Para espessura de Hf superior a 2 nm conseguimos reduzir em aproximadamente 70 % o momento magnético total das amostras e mesmo assim mantendo a AMP. Identificando o EPM pela redução da magnetização de saturação no sistema de W tivemos uma redução em 50 % em relação à amostra de referência. No referido trabalho, a M_s foi calculada considerando o momento magnético adquirido por VSM e o volume correspondente a espessura de Co, mesma estratégia utilizada no capítulo 4. Se observarmos a amplitude de momento antiparalelo que o W pode adquirir, ela é maior do que a do Hf [12]. Desta forma, a inserção de camadas mais espessas poderiam reduzir em maior porcentual a M_s , visto que não foi observado uma saturação do efeito para as

espessuras de W utilizadas.

Indiretamente o EPM impacta na AMP das amostras por reduzir a M_s . Possivelmente o EPM tenha contribuído também para as modificações das outras propriedades como o campo de saturação, campo de anisotropia e campo coercivo. Estas modificações ressaltam a influência relevante do EPM nas propriedades magnéticas em filmes ultrafinos, as quais impactam na formação dos domínios magnéticos.

Impacto da AMP na formação dos domínios magnéticos

A AMP é um requisito para a formação de domínios magnéticos perpendiculares. O ajuste da AMP permite variar o tipo e a densidade dos domínios magnéticos. A forte AMP faz com que a amostra tenha uma alta magnetização de remanência (M_r) fora do plano. A alta M_r ocorre pela presença de mais domínios em determinada orientação do que em outra. Como observado na ref. [24], o ajuste da AMP para altos valores M_r permite com que o sistema estabilize skyrmions isolados em campo magnético zero, desde que a amostra apresente um baixo valor de interação DM.

Como visto anteriormente, a variação dos materiais e de suas espessuras permite ajustar a interação DM e o EPM, o mesmo ocorre com a AMP. O fato de as propriedades estarem interconectadas, faz com que o ajuste de uma sempre interfira também nas outras. A AMP é um efeito interfacial, assim é sensível a qualquer modificação que venha a ocorrer na estrutura, seja a troca de material ou a variação da espessura. No capítulo 2 não buscávamos modificar a AMP, mas ocorreu pela modificação da estrutura quando ajustamos a interação DM e o EPM.

Como observado no capítulo 3, a camada de Co com espessura de 0,5 nm não chega a formar uma camada contínua. Espessura esta que é a mesma utilizada nas amostras com inserção de W do capítulo 2. A inserção de um MP diferente sobre esta camada descontínua acaba por modificar também a anisotropia da amostra, efeito que pode ser observado pela alteração do campo de anisotropia. A inserção de finas espessuras de W (0,1-0,2 nm) prejudica a interação Co/Pt da interface superior, reduzindo a AMP. Para espessuras mais grossas, o próprio W reestabelece a AMP, visto que também é um MP e gera AMP.

A AMP pode ser estimada pela Eq. 1.15, a qual depende do campo de anisotropia (H_k) e da M_s . Desta forma, a AMP tem uma dependência com o EPM, visto que este impacta na M_s efetiva da multicamada. No capítulo 2, a inserção de W modificou a AMP pela redução de H_k e também pela redução de M_s . Um mínimo para a AMP foi observado para as espessuras de 0,1-0,2 nm de W. Notamos que, além da alta interação DM, a redução da AMP foram os ingredientes para estas amostras apresentarem um incremento de 2,5 vezes na densidade de domínios. Este aspecto reforça que não só a interação DM contribuiu para o fato, mas que foi um conjunto de fatores.

No capítulo 3, variamos a espessura do FM e observamos que é possível variar a AMP através desta estratégia, o que já é bem conhecido na literatura [42]. Este estudo foi desenvolvido com o intuito de ajustar a AMP e buscar uma alta magnetização de remanência. Nossa hipótese era que um material com maior ASO poderia apresentar skyrmions isolados em campo magnético zero com estratégia similar à referência [24]. Como observado no capítulo 3 a hipótese foi confirmada. Conseguimos obter skyrmions isolados em campo magnético zero com multicamadas de Pt/Co/Pt. Para a espessura de Co 0,5 nm observamos skyrmions de 290 nm de tamanho médio e densidade de 1 skyrmion por micrômetro quadrado. Se compararmos com os obtidos nas multicamadas de Pd/Co/Pd [24], houveram diferenças significativas. No caso da multicamada de Pd/Co/Pd o tamanho médio dos skyrmions em remanência foi de 165 nm e a densidade média de 0,25 skyrmion por micrômetro quadrado. Estas diferenças podem ser atribuídas a diferente AMP apresentada pelas amostras de Pd/Co/Pd e Pt/Co/Pt. A diferente AMP pode ser atribuída ao maior ASO da Pt comparada ao Pd. Além disso, as amostras que apresentaram skyrmions isolados em campo zero apresentam diferentes coercividades.

A coercividade está relacionada com o tamanho dos domínios magnéticos, é maior quanto maior forem os domínios. Domínios magnéticos maiores ocorrem para amostras com maior valor da constante de anisotropia, o que demanda um maior valor de campo para a inversão dos domínios. A coercividade pode estar relacionada com a rugosidade da amostra. Em uma amostra com maior rugosidade, a reversão da magnetização demanda mais energia devido à presença de centros de aprisionamento. Como visto, a amostra que apresentou skyrmions no capítulo 5 tem uma alta rugosidade, o que poderia estar atrelado a maior campo coercivo e maiores skyrmions. Porém, não podemos comparar com a amostra de Pd/Co/Pd nestes termos, visto que não houve uma análise da rugosidade nas amostras estudadas na referência [24].

Analisando o sistema de Co/Hf/Pt em termos da AMP e da formação de domínios, os resultados foram inesperados. A formação de domínios é muito similar entre as amostras, porém o campo de anisotropia e a M_s são muito diferentes. Para as amostras mais espessas de Hf houve uma redução de 70 % na M_s e 60 % no campo de anisotropia. O mais intrigante é a grande diferença na AMP e a similaridade dos domínios magnéticos. Neste caso, outra interação pode estar desenvolvendo um papel na estabilização dos domínios magnéticos perpendiculares. Como observado no capítulo 2, a interação DM contribui para a estabilização de domínios perpendiculares quando a AMP é muito reduzida.

Nesta tese, pudemos observar que, por ser um efeito interfacial, singelas modificações nos materiais e espessuras, tanto do FM quanto do MP, impactam na AMP. Além disso, foi observado que a variação da AMP geralmente causa uma modificação na formação dos domínios magnéticos.

Aspectos da interação DM e da M_s na dinâmica de domínios magnéticos

Aumentar a interação DM e reduzir a M_s pode contribuir para o aumento da velocidade de propagação de paredes de domínios [25]. No capítulo 2 observamos amostras que tiveram até 50 % de redução da M_s (1 nm de W) e outras que tiveram incremento de 4 vezes na interação DM (0,1-0,2 nm de W). Estas mesmas amostras de 0,1-0,2 nm de W tiveram uma redução de aproximadamente 25 % na M_s . Desta forma, as paredes de domínios das amostras de 0,1-0,2 nm de W poderiam ser movidas com uma velocidade 425 % maior do que a de referência.

No aspecto de propagação de paredes de domínios, as amostras do capítulo 4 (Pt/Co/Hf/Pt) teriam resultados ainda melhores. A redução em cerca de 3 vezes na M_s (Hf superior a 2 nm) possibilitaria um incremento em cerca de 300 % na velocidade de propagação. Considerando valores baixos para interação DM da amostra de referência (0,3 mJm⁻²) e os valores apresentados na referência [99] (1,5 mJm⁻²), a adição de Hf causou um incremento de cerca de 5 vezes na interação DM. Desta forma, as paredes de domínios das amostras com 2 nm de Hf na interface superior poderiam ser movimentadas com velocidades cerca de 1500 % maior que as da amostra de referência.

A alta M_s dos materiais inviabiliza certas aplicações. O efeito Hall de skyrmion é um dos problemas causados pela alta M_s . A redução da M_s pode contribuir para a minimização do efeito Hall de skyrmion, que é um dos problemas ainda enfrentados para tornar eficiente o movimento de skyrmions com corrente elétrica [26, 27]. Mostramos que, para espessuras superiores a 2 nm de Hf inseridas em uma multicamada de Pt/Co/Pt, podemos reduzir em cerca de 70 % a M_s . A equação de Thiele, a qual rege o movimento do skyrmion por corrente, é dependente de M_s . Portanto, reduzindo a M_s o skyrmion é menos defletido pelo efeito Hall de skyrmion. Embora não tenhamos observado skyrmions isolados, é possível converter domínios do tipo tira em skyrmions com a aplicação de um campo magnético perpendicular [101], caso o sistema apresente interação DM. Mover um skyrmion com M_s 70 % menor minimizaria o deslocamento transversal, podendo evitar a aniquilação do mesmo.

Apesar de não termos realizado um estudo da dinâmica de paredes de domínios e skyrmions, os resultados obtidos através da engenharia de interfaces possibilitou melhorar os parâmetros magnéticos para tal. Os resultados obtidos podem ser aplicados em estudos futuros e são esperadas contribuições positivas na velocidade de propagação de paredes de domínios e também de skyrmions.

6 CONCLUSÃO

Em multicamadas de filmes ultrafinos as contribuições interfaciais são muito intensas, e podem modificar drasticamente os mecanismos físicos presentes. Nesta tese, investigamos a influência dos efeitos interfaciais nas propriedades e domínios magnéticos de amostras com AMP. Focamos em analisar, principalmente, os aspectos da AMP, da interação DM e do EPM. Estes efeitos estão presentes nas interfaces FM/MP e governam tanto as propriedades magnéticas quanto a formação de domínios. O objetivo geral desta tese foi investigar o impacto de diferentes intensidades e sinais destes efeitos nas propriedades das amostras. Como estratégia para ajustar os efeitos, utilizamos a inserção de diferentes MP nas interfaces, e variações nas espessuras.

Em amostras assimétricas do tipo Pd/Co/W/Pd, observamos que altos valores de interação DM possibilitam aumentar a densidade de domínios magnéticos. Mas, a hipótese de estabilizar skyrmions sem campo magnético aumentando a interação DM não se confirmou, ao menos para os materiais e espessuras utilizadas. Além disso, a modificação realizada na estrutura para aumentar a interação DM modificou os outros efeitos. Este fato reforça, que nos filmes de espessuras sub-nanométricas, é o conjunto dos efeitos responsável pelo estado final, e que dificilmente é possível alterar apenas um efeito, visto que todos dependem dos materiais da interface FM/MP.

Outra pergunta respondida foi sobre a estabilização de skyrmions em campo magnético zero em amostra nominalmente simétrica de ASO maior que o já reportado na literatura. De fato, conseguimos estabilizar skyrmions nestas condições em amostras do tipo Pt/Co/Pt. Como a Pt apresenta maior ASO, a AMP foi afetada influenciando na densidade e no tamanho dos skyrmions. Além disso, mostramos que, para espessuras sub-nanométricas do FM, há uma alta contribuição do momento magnético adquirido por EMP. Alta desordem interfacial aumenta a interdifusão e a interação Co-Pt, induzindo mais momento na Pt. Como a desordem é diferente entre as interfaces inferior e superior, a interação DM não é totalmente cancelada. Estas observações sugerem que a estabilização de skyrmions em campo magnético zero foi uma combinação de resultados dos três efeitos interfaciais. A alta magnetização de remanência obtida pelo ajuste da AMP, a alta polarização da Pt devido ao EPM e a interação DM devido a desordem interfacial foram os principais ingredientes.

De modo geral, a estratégia de modificar as propriedades magnéticas e domínios magnéticos através do ajuste dos efeitos interfaciais apresentou resultados muito interessantes. Os resultados obtidos, além de contribuírem para o melhor entendimento da física de multicamadas, são promissores do ponto de vista de aplicações. O incremento em 2,5 vezes na densidade de domínios magnéticos possibilitaria o desenvolvimento de dispositivos de gravação magnética com maior capacidade de armazenamento de informações.

A obtenção de skyrmions isolados em campo magnético zero torna mais próximo de termos um dispositivo do tipo "racetrack memory" em dispositivos de memória. Além disso, em dois casos conseguimos aumentar a interação DM e reduzir a M_s , o que possibilitaria uma maior velocidade de propagação de paredes de domínios. Desta forma, ressaltamos a grande importância dos efeitos interfaciais aqui analisados para para aplicações tecnológicas eficientes.

Em suma, concluímos que os três efeitos interfaciais aqui estudados são bastante relevantes na formação dos domínios magnéticos em amostras com espessuras sub-nanométricas. Sendo assim, estes efeitos devem ser ajustados de forma cuidadosa para a obtenção de domínios magnéticos promissores para aplicações tecnológicas.

6.1 PERSPECTIVAS

As principais perspectivas estão relacionadas ao trabalho apresentado no capítulo 4. Este trabalho teve a sua execução comprometida devido as restrições impostas pela pandemia. Tínhamos como projeto o estudo detalhado da rugosidade através de XRR, o que será feito no futuro. Além disso, buscaremos analisar a evolução dos domínios magnéticos em função da aplicação de campo magnético externo. Como discutido anteriormente, é possível converter os domínios do tipo tiras em skyrmions quando a amostra apresenta interação DM. No caso das amostras com Hf superior a 2 nm, a obtenção de skyrmions isolados seria muito bom porque estas amostras apresentaram uma redução de 70 % na M_s , e isso poderia minimizar o efeito Hall de skyrmion. Dependendo das circunstâncias, analisar o efeito Hall de skyrmions movimentando os skyrmions com pulsos de corrente poderá ser desenvolvido também.

Além disso, já temos produzido um conjunto de amostras com diferentes espessuras de Co e com as mesmas espessuras de Hf para analisar o impacto da variação da espessura de Co.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] Piramanayagam, S. N. Perpendicular recording media for hard disk drives. *J. Appl. Phys.* **102** 11301 (2007).
- [2] Allwood, D. A. *et al.* Magnetic-wall logic. *Science* **309** 1688 (2005).
- [3] Gradmann, U.; Muller, J. Flat ferromagnetic, epitaxial 48Ni/52Fe (111) films of few atomic layers. *Physica status solidi (b)* **27(1)** 313 (1968).
- [4] Galanakis, I.; Alouani, M.; Dreysse, H. Perpendicular magnetic anisotropy of binary alloys: A total-energy calculation. *Phys. Rev. B* **62** 10 (2000).
- [5] Carcia, P. F.; Meinhaldt, A. D.; Suna, A. Perpendicular magnetic anisotropy in Pd/Co thin film layered structures. *Appl. Phys. Lett.* **47(2)** 178 (1985).
- [6] Carcia, P. F. Perpendicular magnetic anisotropy in Pd/Co and Pt/Co thin-film layered structures. *J. of Appl. Phys.* **63** 5066 (1988).
- [7] den Broeder, F. J. A. *et al.* Perpendicular Magnetic Anisotropy of Co-Au Multilayers Induced by Interface Sharpening. *Phys. Rev. Lett.* **60(26)** 2769 (1988).
- [8] Sakurai, M.; Takahata, T.; Moritani, I. Magnetic and Magneto-Optical Properties of Co/Ru Multilayers. *IEEE Trans. Journal on Mag. in Japan* **7(2)** 176 (1992).
- [9] den Broeder, F. J. A.; Hoving, W.; Bloemen, P. J. H. Magnetic anisotropy of multilayers. *J. of Mag. and Mag. Mat.* **93** 562 (1991).
- [10] Dzyaloshinsky, I. A thermodynamic theory of weak ferromagnetism of antiferromagnetics. *J. Phys. Chem. Solids* **4** 241-255 (1958).
- [11] Moriya, T. Anisotropic superexchange interaction and weak ferromagnetism. *Phys. Rev.* **120** 91-98 (1960).
- [12] Ederer, C.; Komelj, M.; Fahnle, M.; Schutz, G. Theory of induced magnetic moments and X-ray magnetic circular dichroism in Co/Pt multilayers. *Phys. Rev. B* **66** 094413 (2002).
- [13] Mühlbauer, S. *et al.* Skyrmion lattice in a chiral Magnet. *Science* **323** 915 (2009).
- [14] Parkin, S. S. P.; Hayashi, M.; Thomas, L. Magnetic Domain-Wall racetrack memory. *Science* **320** 190-194 (2008).
- [15] Jiang, W. *et al.* Skyrmions in magnetic multilayers. *Phys. Rep.* **704** (2017).
- [16] Wanjun, J. *et al.* Direct observation of the skyrmion Hall effect. *Nat. Phys.* **13** 162 (2017).
- [17] Kim, O. K. *et al.* Asymmetric magnetic proximity effect in a Pd/Co/Pd trilayer system. *Sci. Rep.* **6** 25391 (2016).
- [18] Moreau-Luchaire, C. *et al.* Additive interfacial chiral interaction in multilayers for stabilization of small individual skyrmions at room temperature. *Nat. Nanotechnol.* **11** 444-448 (2016).

- [19] Lin, T. *et al.* Observation of room-temperature magnetic skyrmions in Pt/Co/W structures with a large spin-orbit coupling. *Phys. Rev. B* **98** 174425 (2018).
- [20] Toneto, D. *et al.* First order reversal curve Hall analysis of zero-field skyrmions on Pt/Co/Ta multilayers. *J. Phys. D: Appl. Phys.* **53** 395001 (2020).
- [21] Hrabec, A. *et al.*, Measuring and tailoring the Dzyaloshinskii-Moriya interaction in perpendicularly magnetized thin films. *Phys. Rev. B* **90**, 020402 (2014).
- [22] Tolley, R.; Montoya, S. A.; Fullerton, E.E. Room-temperature observation and current control of skyrmions in Pt/Co/Os/Pt thin films. *Phys. Rev. Mater.* (2018).
- [23] Samardak, A. *et al.* Enhanced interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction and isolated skyrmions in the inversion-symmetry-broken Ru/Co/W/Ru films. *Appl. Phys. Lett.* **112** 192406 (2018).
- [24] Brandão, J. *et al.* Observation of magnetic skyrmions in unpatterned symmetric multilayers at room temperature and zero magnetic field. *Sci. Rep.* **9** 4144 (2019).
- [25] Thiaville, A. *et al.* films. *Europhysics Lett.* **100** 57002 (2012).
- [26] Thiele, A. Steady-state motion of magnetic domains. *Phys. Rev. Lett.* **30** 230 (1973).
- [27] Gobel, B.; Mook, A.; Henk, J.; Mertig I. Overcoming the speed limit in skyrmion racetrack devices by suppressing the skyrmion Hall effect *Phys. Rev. B* **99** 020405 (2019).
- [28] Buschow, K. H. J.; Boer, F. R. de. *Physics of magnetism and magnetic materials.* (1998).
- [29] Heisenberg, W. Zur Theorie des Ferromagnetismus. *Zeitschrift fur Physik.* **49** 619 (1928).
- [30] Massini, M. *Pauli's Exclusion Principle.* Cambridge University Press (2005).
- [31] Chikazumi, S. *Physics of Ferromagnetism.* Soshin Chikazumi. Oxford University Press, Oxford (1996).
- [32] Blundell, S. *Magnetism in Condensed Matter.* Oxford University Press, Oxford (2001).
- [33] Rezende, S. M. *Materiais e dispositivos eletrônicos.* Sergio M. Rezende. Livraria da Física, São Paulo (2015).
- [34] Chen, C.-W. *Magnetism and Metallurgy of Soft Magnetic Materials.* (1977).
- [35] Liu, X. *et al.* Exchange stiffness, magnetization, and spin waves in cubic and hexagonal phases of cobalt. *Phys. Rev. B* **53** 18 (1996).
- [36] Girt, E. *et al.* A method for measuring exchange stiffness in ferromagnetic films. *J. Appl. Phys.* **109** 07B765 (2011).
- [37] Shepley, P. M.; Burnell, G.; Moore, T. A. Domain wall energy and strain in Pt/Co/Ir thin films on piezoelectric transducers. *Journal of Physics: Condensed Matter* **30** 344002 (2018).

- [38] Manchon, A.; Belabbes, A. Spin-Orbitronics at Transition Metal Interfaces. *Solid State Physics* **68** 1-89 (2017).
- [39] Papaconstantopoulos, D. A. Handbook of the Band Structure of Elemental Solids. Springer, New York. (2015).
- [40] Weiss, P. L'hypothèse du champ moléculaire et la propriété ferromagnétique *J. Phys. Theor. Appl.* **6** 661-690 (1907).
- [41] Cullity, A. D. Introduction to magnetic materials. Reading: Addison-Wesley (1972).
- [42] Guimarães Filho, A. P. Magnetismo e Ressonância magnética em sólidos. São Paulo: Edusp (2009).
- [43] Livingston, J. D.; McConnell, M. D. Domainwall energy in cobalt rare earth compounds. *J. Appl. Phys.* **43** 11 (1972).
- [44] Hubert, A.; Schafer, R. Magnetic Domains: The Analysis of Magnetic Microstructures. Springer (1998).
- [45] Lee, D. *et al.* Mixed Bloch-Néel-Ising character of 180 ferroelectric domain walls. *Phys. Rev. B* **80** 060102(R) (2009).
- [46] Slonczewski, J. C.; Middelhoek, S. Energy of walls in thin magnetic double permalloy (NiFe) films. *Appl. Phys. Lett.* **6** 139 (1965).
- [47] Lakshmanan, M. The fascinating world of the Landau–Lifshitz–Gilbert equation: an overview. *Phil. Trans. R. Soc. A* **369** 1280 (2011).
- [48] Prabhakar, D. D. S. A. Spin Waves: Theory and Applications. Springer (2009).
- [49] Zhang, V. L. *et al.* Eigenmodes of Néel skyrmions in ultrathin magnetic films. *AIP Advances* **7** 055212 (2017).
- [50] Metaxas, P. J. *et al.* Creep and Flow Regimes of Magnetic Domain-Wall Motion in Ultrathin Pt/Co/Pt Films with Perpendicular Anisotropy. *Phys. Rev. Lett.* **99** 217208 (2007). REPETIDA
- [51] Gruszecki, P.; Banerjee, C.; Mruczkiewicz, M.; Hellwig, O.; Barman, A.; Krawczyk, M. The influence of the internal domain wall structure on spin wave band structure in periodic magnetic stripe domain patterns. *Recent Advances in Topological Ferroics and Their Dynamics*, 79–132. (2019).
- [52] Néel, L., Anisotropie magnétique superficielle et surstructures d'orientation. *J. Phys. Radium* **15** 225 (1954).
- [53] Nakajima, N. *et al.* Perpendicular Magnetic Anisotropy Caused by Interfacial Hybridization via Enhanced Orbital Moment in Co/Pt Multilayers: Magnetic Circular X-Ray Dichroism Study. *Phys. Rev. Lett.* **81** 23 (1998).
- [54] Stohr, J. Exploring the microscopic origin of magnetic anisotropies with X-ray magnetic circular dichroism (XMCD) spectroscopy. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **200(1)** 470-497 (1999).
- [55] Sbiaa, R. *et al.* Effect of magnetostatic energy on domain structure and magnetization reversal in (Co/Pd) multilayers. *J. Appl. Phys.* **107** 103901 (2010).

- [56] Liu, Z. et. al. Thickness dependent magnetization dynamics of perpendicular anisotropy Co/Pd multilayer films. *J. Mag. Mag. Mat.* **323** 1623 (2011).
- [57] Fert, A.; Cros, V.; Sampaio, J. Skyrmions on the track. *Nat. Nanotech.* **8** 152 (2013).
- [58] Jadaun, P. et. al. The microscopic origin of DMI in magnetic bilayers and prediction of giant DMI in new bilayers. *Computational Materials* **6** 88 (2020).
- [59] Hrabec, A. et al., Measuring and tailoring the Dzyaloshinskii-Moriya interaction in perpendicularly magnetized thin films. *Phys. Rev. B* **90** 020402 (2014).
- [60] Cho, J. et al. Thickness dependence of the interfacial Dzyaloshinsky-Moriya interaction in inversion symmetry broken systems. *Nat. Commun.* **6** 7635 (2015).
- [61] Chaurasiya, A. K. Direct observation of interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction from asymmetric spin-wave propagation in W/CoFeB/SiO₂ heterostructures down to sub-nanometer CoFeB thickness. *Sci. Rep.* **6** 32592 (2016).
- [62] Pollard, S. D. et al. Observation of stable Néel skyrmions in cobalt/palladium multilayers with Lorentz transmission electron microscopy. *Nat. Com.* **8** 14761 (2016).
- [63] Khadka, D. et. al. Dzyaloshinskii-Moriya interaction in Pt/Co/Ir and Pt/Co/Ru multilayer films. *J. Appl. Phys.* **123** 123905 (2018).
- [64] Yang, H. et al. Anatomy of Dzyaloshinskii-Moriya Interaction at Co/Pt Interfaces. *Physical Review Letters* **115**(26) 267210 (2015).
- [65] Deger, C. Strain-enhanced Dzyaloshinskii-Moriya interaction at Co/Pt interfaces. *Sci. Rep.* **10** 12314 (2020).
- [66] Soumyanarayanan, A. et al. Tunable room-temperature magnetic skyrmions in Ir/Fe/Co/Pt multilayers. *Nat. Mater.* **16** 898–904 (2017).
- [67] Panagopoulos, C. et al. Geometrically tailored skyrmions at zero magnetic field in multilayered nanostructures. *Phys. Rev. Appl.* **11** 024064 (2019).
- [68] Heide, M.; Bihlmayer, G.; Blugel, S. Dzyaloshinskii-Moriya interaction accounting for the orientation of magnetic domains in ultrathin films: Fe/W(110). *Phys. Rev. B* **78** 140403(R) (2008).
- [69] Boule, O. et al. Creation of magnetic skyrmion bubble lattices by ultrafast laser in ultrathin films. *Nano Lett.* **18** 7263–7271 (2018).
- [70] Hrabec, A. Measuring and tailoring the Dzyaloshinskii-Moriya interaction in perpendicularly magnetized thin films. *Phys. Rev. B* **90** 020402 (2014).
- [71] Chaurasiya, A. K. Direct observation of interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction from asymmetric spin-wave propagation in W/CoFeB/SiO₂ heterostructures down to sub-nanometer CoFeB thickness. *Sci. Rep.* **6** 32592 (2016).
- [72] Shahbazi, K. et. al. Domain-wall motion and interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interactions in Pt/Co/Ir(t)/Ta multilayers. *Phys. Rev. B* **99** 094409 (2019).
- [73] Bogdanov, A.; Yablonskii, A. Thermodynamically stable 'vortices' in magnetically ordered crystals. *IETP Lett* **68** 101-103 (1989).

- [74] Skyrme, T. H. R. Non-linear field theory. *Proc. R. Soc. A* **260** 127 (1961).
- [75] Skyrme, T. H. R. A unified field theory of mesons and baryons. *Nucl. Phys.* **31** 556 (1962).
- [76] Hrabec, A.; Porter, N. A.; Wells, A.; Benitez, M. J.; Burnell, G.; McVitie, S.; McGrouther, D.; Moore, T. A.; Marrows, C. H. Measuring and tailoring the Dzyaloshinskii-Moriya interaction films. *Phys. Rev. B* **90** 020402(R) (2014).
- [77] Kézsmárki, I. *et al.* Néel-type skyrmion lattice with confined orientation in the polar magnetic semiconductor Ga V4S8 *Nat. Mater.* **14** (2015).
- [78] Chen, G. *et al.* Novel chiral magnetic domain wall structure in Fe/Ni/Cu(001) films. *Phys. Rev. Lett.* **110** 177204 (2013).
- [79] Rózsa, L. *et al.* Formation and stability of metastable skyrmionic spin structures with various topologies in an ultrathin film. *Phys. Rev. B* **95** 094423 (2017).
- [80] Ribeiro, R. S. Skyrmions magnéticos em nanodiscos de cobalto induzidos por interação de Dzyaloshinskii-Moriya e a anisotropia magnética perpendicular. Universidade Federal de Alagoas (2016).
- [81] Jiang, W. *et al.* Direct observation of the skyrmion Hall effect. *Nature Phys.* **13** 162 (2017).
- [82] Zuckermann, M. J. The proximity effect for weak itinerant ferromagnets. *Solis State Comm.* **12** 745 (1973).
- [83] Bergmann, G. Transition from Pauli Paramagnetism to Band Ferromagnetism in Very Thin Ni Films. *Phys. Rev. Lett.* **41** 264 (1978).
- [84] Stoner, E. C. Collective electron ferromagnetism. *Proc. R. Soc. Lond. A* **165** 372 (1938).
- [85] Cox, B.; Tahir-Kheli, R. A.; Elliott, R. J. Thin films of itinerant-electron ferromagnets on a nonmagnetic metallic substrate. *Phys. Rev. B* **20** 2864 (1979).
- [86] Huttel, Y.; van der Laan, G. ; Johal, T. K.; Telling, N. D.; Bencok, P. Induced V and reduced Co magnetic moments at the V/Co interface. *Phys. Rev. B* **68** 174405 (2003).
- [87] Grytsyuk, S. *et al.* k-asymmetric spin splitting at the interface between transition metal ferromagnets and heavy metals. *Phys. Rev. B* **93** 174421 (2016).
- [88] Geissler, J. *et al.* Pt magnetization profile in a Pt/Co bilayer studied by resonant magnetic X-ray reflectometry. *Phys. Rev. B* **65** 020405(R) (2001).
- [89] Akai, H. Nuclear spin-lattice relaxation of impurities in ferromagnetic iron. *Hyperfine Interact* **43** 253 (1998).
- [90] Wienke, R.; Schutz, G. Determination of local magnetic moments of 5d impurities in Fe detected via spin-dependent absorption. *J. Appl. Phys.* **69** 6147 (1991).
- [91] Kuschel, T. *et al.* Static Magnetic Proximity Effect in Pt Layers on Sputter-Deposited NiFe₂O₄ and on Fe of Various Thicknesses Investigated by XMRM. *IEEE Trans. Mag.* **52** 4500104 (2016).

- [92] Soumyanarayanan, A. *et al.* Tunable room-temperature magnetic skyrmions in Ir/Fe/Co/Pt multilayers. *Nat. Mater* **16** 898–904 (2017).
- [93] Chauleau, J. C. *et al.* Chirality in magnetic multilayers probed by the symmetry and the amplitude of dichroism in X-ray resonant magnetic scattering. *Phys. Rev. Lett.* **120** 037202 (2018).
- [94] Dhital, C.; DeBeer-Schmitt, L.; Zhang, Q.; Xie, W.; Young, D. P.; DiTusa, J. F. Exploring the origins of the Dzyaloshinskii-Moriya interaction in MnSi. *Phys. Rev. B* **96**, 214425 (2017).
- [95] Guan, Y.; Koyama, T.; Chiba, D. Current-induced magnetic domain wall motion in Pt/Co/Pd and Pd/Co/Pt structure with opposite signs of Dzyaloshinskii-Moriya interaction. *AIP Adv.* **7** 085123 (2017).
- [96] Moreau-Luchaire, C. *et al.* Additive interfacial chiral interaction in multilayers for stabilization of small individual skyrmions at room temperature. *Nat. Nanotech.* **11**, 444 (2016).
- [97] Kolesnikov, A. G. *et al.* Nanoscale control of perpendicular magnetic anisotropy, coercive force and domain structure in ultrathin Ru/Co/W/Ru films. *J. Mag. Mater.* **454**, 78 (2018).
- [98] Thiaville, A. *et al.* Dynamics of Dzyaloshinskii domain walls in ultrathin magnetic films. *Europhys. Lett.* **100**, 57002 (2012).
- [99] Shahbazi, K. Dzyaloshinskii-Moriya Interaction and Domain Wall Motion in Polycrystalline and Epitaxial Magnetic Multilayers. Doctor of Philosophy. University of Leeds. Leeds (2018).
- [100] Davydenko, A. V. *et al.* Dzyaloshinskii-Moriya interaction in symmetric epitaxial [Co/Pd(111)]_N superlattices with different numbers of Co/Pd bilayers. *Phys. Rev. B* **99**, 014433 (2019).
- [101] Milde, P. *et al.* Unwinding of a Skyrmion Lattice by Magnetic Monopoles. *Science*. **340**, 6136 (2013).
- [102] Vansteenkiste, A. *et al.* The design and verification of mumax, *AIP Advances* **4** 107133 (2014).
- [103] Jain, N. K. *et al.* Metal Deposition: Plasma-Based Processes. *Encyclopedia of Plasma Technology* (2017).
- [104] CET scientific. Vibrating Sample Magnetometer (VSM). Disponível em: <http://www.cet-science.com/products/testing-methods/other-analysis/vibrating-sample-magnetometer-vsm/>.
- [105] Neves, B. R. A.; Vilela, J. M. C.; Andrade, M. S. Microscopia de varredura por sonda mecânica: uma introdução. *Cerâmica* **44** 290 (1998).
- [106] Schutz, G. *et al.* Absorption of circularly polarized x-rays in iron,” *Phys. Rev. Lett.* **58** (7) 737 (1987).
- [107] Laan, G. van der; Figueroa, A. I. X-ray magnetic circular dichroism - A versatile tool to study magnetism. *Coord. Chem. Rev.* **277** 95 (2014).

- [108] Thole, B. T.; Carra, P.; Sette, F.; Laan, G. van der. X-ray circular dichroism as a probe of orbital magnetization. *Phys Rev. Lett*, **68** (12), 1943 (1992).
- [109] Carra, P.; Thole, B. T.; Altarelli, M.; Wang, X. X-ray circular dichroism and local magnetic fields. *Phys. Rev. Lett.*, **70** (5) 694 (1993).
- [110] Chen, C.T. et. al. Experimental Confirmation of the X-Ray Magnetic Circular Dichroism Sum Rules for Iron and Cobalt. *Phys. Rev. Lett.*, **75** 1 (1995).
- [111] Cezar, J. C. et. al. The U11 PGM beam line at the Brazilian National Synchrotron Light Laboratory J. Phys.: Conf. Ser.425 072015 (2013).
- [112] Kaliva, M.; Vamvakaki, M. Chapter 17 - Nanomaterials characterization. Editor(s): Ravin Narain. *Polymer Science and Nanotechnology*. p. 401. Elsevier (2020).
- [113] Ribera, R. C. Growth and thermal oxidation of Ru and ZrO₂ thin films as oxidation protective layers. PhD Thesis. University of Twente. Enschede (2017).
- [114] Chae, S. R. *et al.* Advanced Nanoscale Characterization of Cement Based Materials Using X-Ray Synchrotron Radiation: A Review. *International Journal of Concrete Structures and Materials* (2013).
- [115] Shapiro, D. et al. Development of coherent scattering and diffractive imaging and the COSMIC facility at the Advanced Light Source. *J. Phys.: Conf. Ser.*, **425** 192011 (2013).

APÊNDICE A – SIMULAÇÕES MICROMAGNÉTICAS

As simulações micromagnéticas foram realizadas através da plataforma Mumax³. O Mumax³ é um programa desenvolvido no grupo DyNaMat do Prof. Van Waeyenberge na Universidade de Ghent. O código é escrito e mantido por Arne Vansteenkiste [102].

Para realizar as simulações é preciso um processador gráfico "Graphics Processing Unit" (GPU). Nas nossas simulações utilizamos a placa GPU Tesla K80 (11441 MB) do grupo de Computação Científica e também uma estação de trabalho com placa NVIDIA Quadro P1000, ambos do Laboratório Nacional de Luz Síncrotron (LNLS).

O MuMax³ é baseado na resolução da equação fenomenológica de Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG). A equação foi apresentada na seção 1.2.1.5 desta tese e, como visto, ela resolve a dinâmica da magnetização baseada nos parâmetros magnéticos.

Os parâmetros experimentais que tivemos a condição de medir experimentalmente foram a magnetização de saturação (M_s) e a constante de anisotropia (K), os quais foram obtidos pela técnica de VSM. Estes parâmetros são inseridos na simulação na forma do H_{ef} na equação de LLG. Outros parâmetros são necessários para o cálculo, como o amortecimento de Gilbert (α) e a constante de rigidez de troca (A_{ex}). Como não tivemos acesso à aparatos experimentais para medir estes termos, utilizamos valores fornecidos pela literatura para amostras similares. O valor da constante de rigidez de troca utilizado nas simulações foi de $A_{ex} = 12 \text{ pJm}^{-1}$ no capítulo 2 e $A_{ex} = 13,5 \text{ pJm}^{-1}$ no capítulo 3. Para o α utilizamos 0,3.

Além disso, é possível implementar a interação DM na simulação. Este parâmetro foi estimado através das simulações comparado as imagens experimentais com as simuladas. A interação DM também é inserida através do termo de campo efetivo, \mathbf{H}_{ef} juntamente com os demais parâmetros.

Em todas as simulações a magnetização inicial partiu do estado aleatório e relaxou até o equilíbrio. O tempo de relaxação foi de aproximadamente 50 ns para as simulações apresentadas no capítulo 2 e de 2 μs para as apresentadas no capítulo 3. Esta diferença ocorreu porque os estados simulados nos dois casos foram diferentes. No caso do capítulo 3, foi necessário mais tempo porque o sistema ainda apresentava pequenas variações para tempos de centenas de ns. Para obter o estado de equilíbrio utilizamos o algoritmo "relax", o qual é o mais apropriados para simulações sem campo magnético externo ou corrente elétrica.

Os sistemas simulados foram discretizados em células com tamanho de $3 \times 3 \text{ nm}^2$ para os eixos do plano (x e y) e para o eixo de espessura (z) o tamanho da própria espessura das amostras. Além disso, utilizamos condições de contorno para evitar que os efeitos de borda influenciassem o tipo de domínio magnético formado. A condição de contorno introduz um sistema virtual igual ao original na direção que é inserida. No capítulo 2,

por exemplo, utilizamos condições de contorno $N = 10$ no plano do sistema simulado (coordenadas x e y), isto quer dizer que o cálculo está considerando virtualmente uma área 20 vezes maior que a original.

Abaixo um exemplo de código utilizado para as simulações micromagnéticas:

```
//Geometry
Nx := 1500/3
Ny := 1500/3
Nz := 1
setGridsize(Nx, Ny, Nz)
setCellsize(3e-9,3e-9,21e-9) //Unidade: m

//Boundary Conditions
SetPBC(10, 10, 0)

//Magnetic Parameters
Msat = 475e3 //Unidade: A/m
Aex = 13.5e-12 //Unidade: J/m
alpha = 0.3
anisU = vector(0,0,1)
Ku1 = 0.51e6 //Unidade:J/m3
Dind = 0.3e-3 //Unidade:J/m2

// Initial Magnetization
m = RandomMag()
save(m)

autosave(m, 5e-9)
tableautosave(0.1e-9)

saveas(m,"m_initial")
run(2000e-9)
relax()
saveas(m,"m_final")
```

APÊNDICE B – TÉCNICAS EXPERIMENTAIS

Neste apêndice são apresentados detalhes sobre as técnicas de caracterização aplicadas nesta tese. Dentre elas *magnetron sputtering*, perfilometria, magnetometria de amostra vibrante, microscopia de força magnética, espectroscopia de absorção de raios X e dicroísmo circular magnético de raios X, refletividade e difração de raios X e microscopia de transmissão de raios X por varredura.

B.1 – MAGNETRON SPUTTERING

A técnica de *magnetron sputtering* é uma das mais convencionais para a deposição de filmes finos por vapor físico. Consiste em arrancar material de um alvo desejado através da colisão de íons de argônio. Uma diferença de potencial elétrico ioniza e acelera o argônio contra o alvo arrancando partículas do material, as quais são depositadas no substrato. Na Fig. B.1 está ilustrado o interior de uma câmara de *magnetron sputtering*. Na esquerda da figura estão as entradas para bombas de vácuo, responsáveis pelo vácuo da câmara, e a entrada de argônio. Na direita está a fonte de potência, a qual é responsável por estabelecer uma diferença de potencial elétrico entre o alvo (parte inferior) e o substrato (parte superior). Embaixo do alvo do material estão localizados ímãs (que formam o *magnetron*) com a finalidade de concentrar os íons mais próximos à superfície do alvo do material.

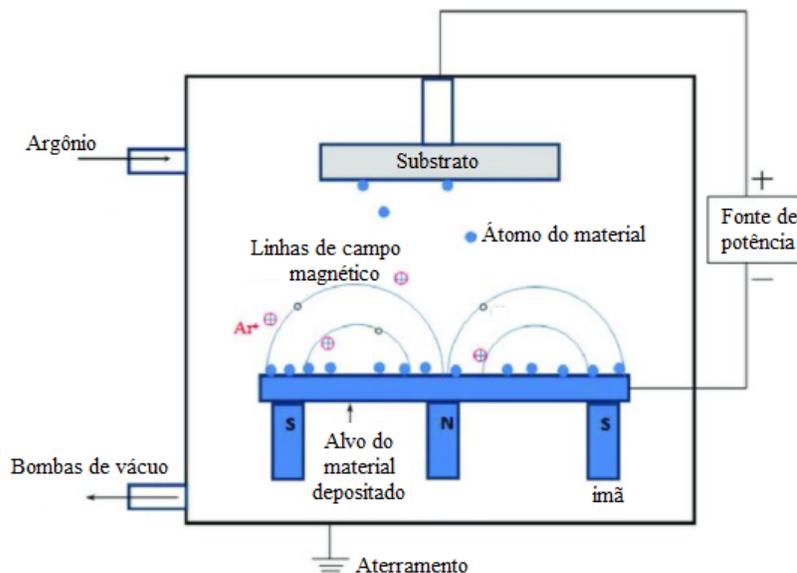


Figura B.1 – Ilustração da deposição por *magnetron sputtering*. Adaptado de [103].

As amostras desta tese foram fabricadas no Laboratório de Microfabricação (LMF)

do Laboratório Nacional de Nanotecnologia (LNNano), do Centro Nacional de Pesquisa em Energias e Materiais (CNPEM). O equipamento utilizado é da marca AJA international conforme imagem da Fig. B.2. O equipamento do LMF conta com um sistema de *load-lock*, em destaque na Fig. B.3, o que permite a inserção de substratos e a retirada de amostras sem a quebra do vácuo da câmara principal. Com este sistema conseguimos retirar amostras e inserir novos substratos em menos de 1 hora, mantendo uma pressão na ordem de 10^{-8} mTorr. Além disso, há disponibilidade de inserir 6 alvos de materiais diferentes para serem utilizados na mesma deposição.

Para realizar a deposição, o substrato é colocado em um disco (porta-substrato) o qual gira na frequência de 0,5 Hz durante a deposição. Esta característica contribui para uma melhor uniformidade no crescimento do filme. O porta-substrato fica no centro da câmara, onde está o foco de todos os canhões de deposição (estrutura onde são colocados os alvos dos materiais).



Figura B.2 – Fotografia do *magnetron sputtering* utilizado no crescimento das amostras. Este equipamento pertence ao LMF do CNPEM.

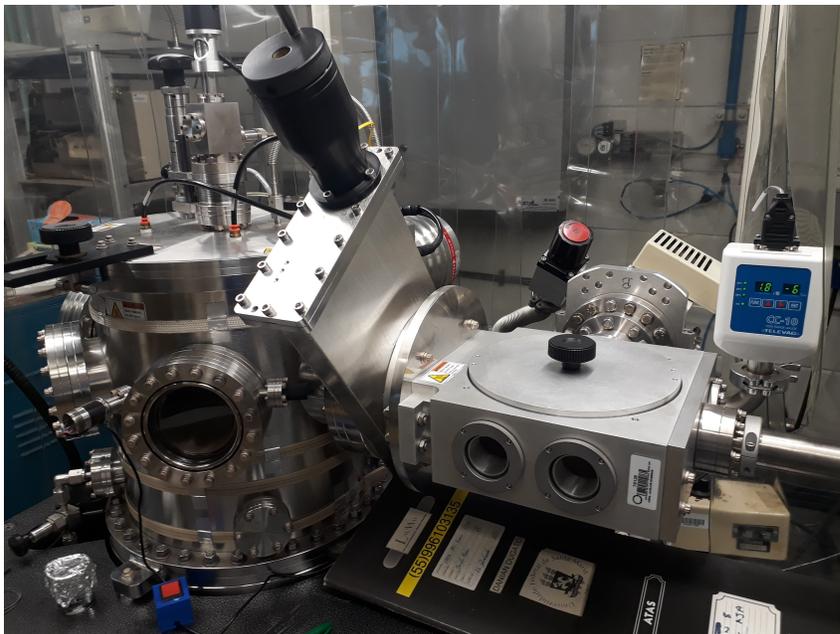


Figura B.3 – Câmara de deposição de amostras do *magnetron sputtering* (à esquerda) e a câmara *load-lock* (à direita).

B.2 – PERFILOMETRIA

A técnica de perfilometria permite medir a espessura de filmes finos com centenas de nanômetros. O princípio do seu funcionamento é a varredura de uma ponta sobre o filme depositado. A ponta é sensível à profundidade, assim, se existir alguma ranhura ou um buraco no filme será detectada e medido a sua amplitude. Ao fazer a deposição do filme, cobrimos uma região do substrato para que não seja depositado material. Desta forma, quando realizamos a varredura com a ponta conseguimos medir a diferença de altura entre o filme e substrato, sendo este valor a espessura do filme.

As medidas desta técnica foram utilizadas para calibrar as taxas de deposição dos materiais aqui estudados. O cálculo da taxa de deposição é feito através da divisão da espessura do filme pelo tempo da sua deposição. As taxas de deposição podem ser controladas pela distância entre alvo e substrato, potências e pressões utilizadas na deposição. Neste estudo utilizamos taxas de deposição de aproximadamente 0,02 nm/s para obter um bom controle das espessuras.

O equipamento utilizado nesta técnica é o perfilômetro, uma imagem do utilizado é apresentada na Fig. B.4. A marca do perfilômetro é Veeco e o modelo é Dektak 150. Este equipamento pertence ao LMF do CNPEM. O equipamento fica localizado dentro de uma sala limpa para evitar que contaminantes interfiram na medida.

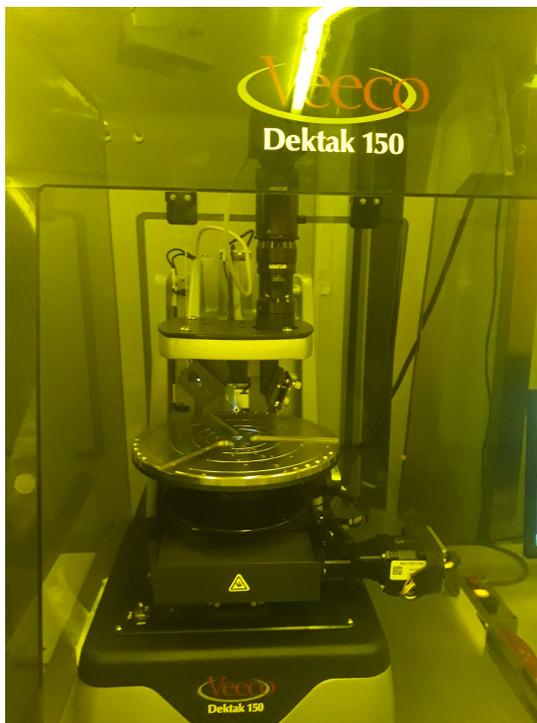


Figura B.4 – Perfilômetro utilizado para medir as espessuras dos materiais. O equipamento pertence ao laboratório de microfabricação (CNPEM).

B.3 – MAGNETOMETRIA DE AMOSTRA VIBRANTE

A magnetometria de amostra vibrante é uma das principais e mais práticas técnicas de caracterização de amostras magnéticas. O equipamento utilizado é o magnetômetro de amostra vibrante, mais conhecido como VSM (do inglês *vibrating sample magnetometer*). O princípio de funcionamento do VSM é baseado na lei de Faraday. Esta lei afirma que uma corrente elétrica é induzida em um enrolamento condutor na presença de um campo magnético variado. Uma amostra magnética pode funcionar como um pequeno ímã, e o campo por ela gerado ser variado, desde que ela esteja movimentando-se. Assim, basicamente é preciso a amostra estar em movimento e um enrolamento de fio condutor para detectarmos um sinal elétrico proveniente da magnetização da amostra.

Na Fig. B.5 é mostrado uma ilustração de um VSM. No centro da figura podemos observar a amostra, a qual está fixa em uma haste. A haste está conectada à cabeça de vibração, a qual fará a vibração da amostra em determinada frequência, variando o fluxo magnético emitido pela mesma. Nas proximidades da amostra estão colocadas 4 bobinas sensoras. Estas são basicamente enrolamentos de fio de cobre, onde uma corrente elétrica é induzida pela variação do campo magnético da amostra. A corrente elétrica induzida é proporcional ao momento magnético da amostra. Para quantificar o momento magnético é realizada a calibração do sinal com uma amostra de momento magnético conhecido, que no caso deste trabalho foi um padrão de Ni.

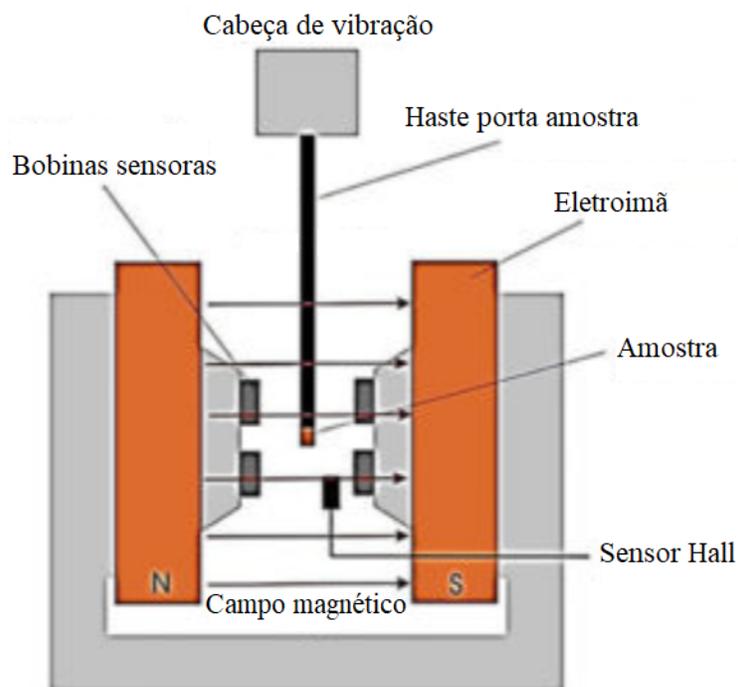


Figura B.5 – Esquema ilustrativo de um VSM. Adaptado de [104]

Para realizarmos uma análise da magnetização (ou do momento) da amostra em função do campo magnético externo aplicado, o VSM possui um eletroímã como fonte de campo magnético. O controle do campo gerado é feito através da corrente aplicada no eletroímã e da leitura do campo pelo sensor Hall.

Através das curvas de magnetização obtidas por VSM, diferentes propriedades físicas foram extraídas incluindo magnetização de saturação, campo coercivo, campo de anisotropia, constante de anisotropia e magnetização de remanência.

O equipamento utilizado é da marca Lake Shore e pertence ao Laboratório de Materiais e Baixas Temperaturas (LMBT) do Instituto de Física Gleb Wataghin (IFGW) da Universidade Estadual de Campinas (UNICAMP). Uma fotografia do VSM utilizado pode ser observada na Fig. B.6. O equipamento permite aplicar campo de até 2 Tesla no plano e fora do plano da amostra.

B.4 – MICROSCOPIA DE FORÇA MAGNÉTICA

A microscopia de força magnética (MFM) permite a visualização dos domínios magnéticos formados nas amostras. A técnica é uma variante da microscopia de força atômica. A principal distinção é o tipo de ponta utilizada. Na microscopia de força magnética, é

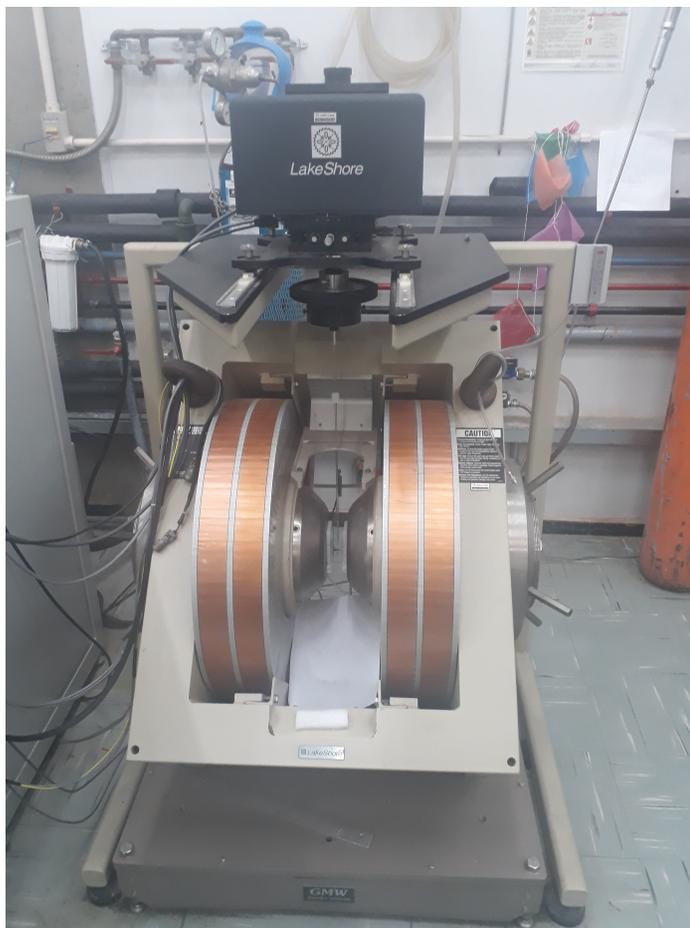


Figura B.6 – Magnetômetro de amostra vibrante do LMBT. Na parte superior na cor preta podemos identificar a cabeça de vibração e, na parte inferior de cor cobre, o eletroímã.

coberta por uma camada de material magnético, enquanto que na microscopia de força atômica a ponta normalmente é de Si. Os domínios magnéticos podem ser vistos como pequenos ímãs e, ao estarem próximos à ponta magnética, que também pode ser vista como um pequeno ímã, ocorrerá uma interação magnética de atração ou repulsão dependendo da orientação dos domínios magnéticos. A identificação e o mapeamento dos domínios é feita pelo monitoramento da mudança na frequência de ressonância da ponta que ocorre quando ela interage com os domínios magnéticos. Na Fig. B.7 podemos observar a interação ponta-amostra e o sinal proveniente da interação.

Na Fig. B.8 está ilustrado como é detectado o sinal da interação ponta-amostra. A interação da ponta com a amostra altera a frequência de ressonância da ponta. Um laser que incide sobre a parte superior da ponta, região chamada cantilever. A movimentação da ponta altera a posição em que o laser reflete em um fotodetector de quatro quadrantes. Assim, o sinal elétrico gerado no fotodetector é demodulado por amplificador lock-in em sincronia com o sinal de excitação da ponta, o que permite a análise da interação magnética.

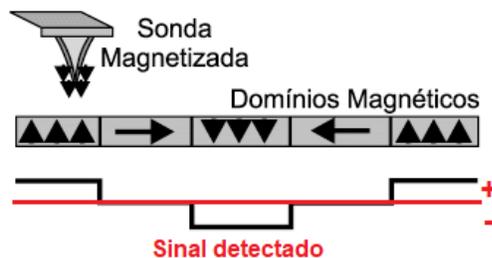


Figura B.7 – Ilustração da interação ponta-amostra e o sinal detectado. Adaptado de [105].

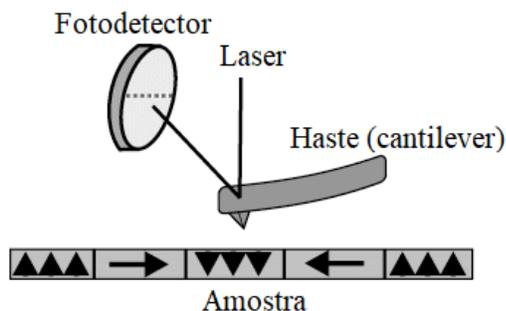


Figura B.8 – Ilustração de como a interação magnética é convertida em sinal elétrico. Adaptado de [105].

O modo de operação das medidas de MFM é não contato, e a ponta é mantida a uma distância da superfície da amostra que pode variar de 30 nm a 120 nm. Para realizar o mapeamento dos domínios da amostra a ponta é movimentada e a amostra mantida fixa.

Dependendo do tipo de amostra e dos domínios magnéticos é preciso escolher pontas magnéticas com características específicas. Utilizamos pontas Multi75-G MFM da marca Budget Sensors. Estas pontas possuem momento magnético de 10^{-16} Am² e coercividade de 24 kA/m. A frequência de ressonância para esta ponta é de aproximadamente 75 kHz.

O microscópio de força magnética utilizado é o modelo Flex da marca Nanosurf. A Fig. B.9 mostra duas imagens do microscópio utilizado.

B.5 – ESPECTROSCOPIA DE ABSORÇÃO DE RAIOS X E DICROÍSMO CIRCULAR MAGNÉTICO

A espectroscopia de absorção de raios X (XAS) permite sondar estados eletrônicos desocupados de um material específico. Incidindo raios X com energias específicas, alguns elétrons podem transitar de seus níveis energéticos originais para estados desocupados acima da energia de Fermi. Após a absorção ocorre o processo de decaimento, pelo qual os átomos retornam ao estado fundamental. A conservação de energia implica na

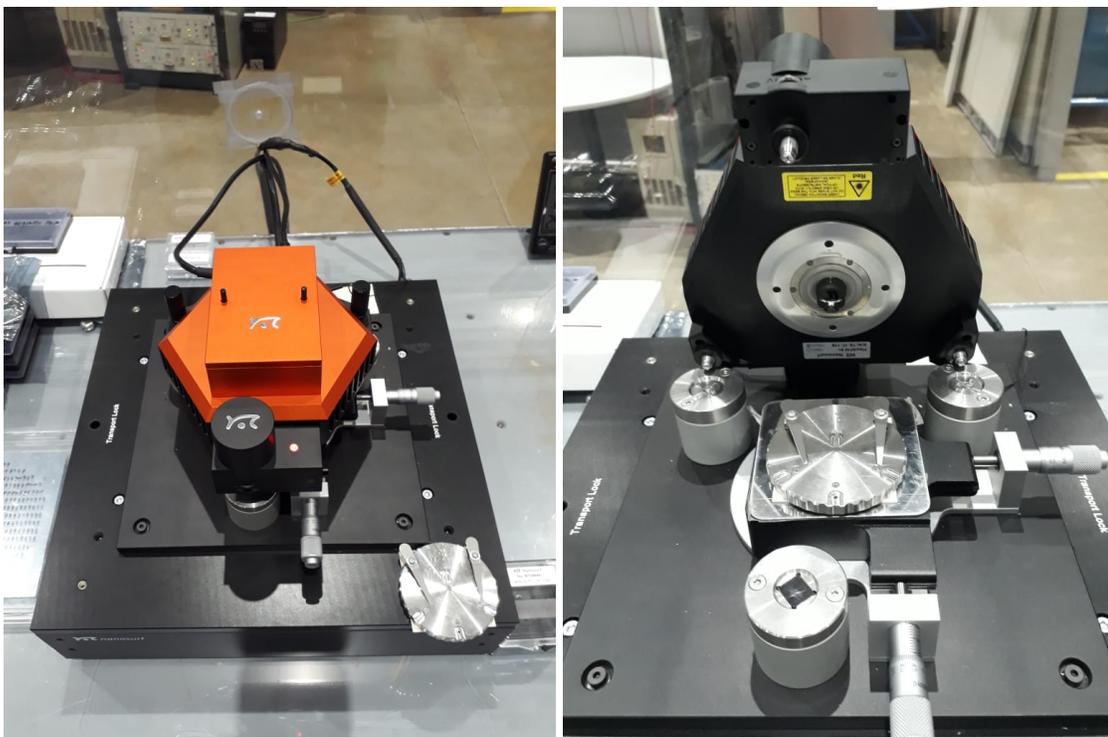


Figura B.9 – Fotografia do microscópio de força magnética (MFM) da marca Nanosurf utilizado.

emissão de fótons (fluorescência) ou elétrons Auger. Elétrons Auger acabam provocando uma reação em cascata onde muitos elétrons secundários são gerados. Dependendo do livre caminho médio destes elétrons na matéria, alguns deles são ejetados da superfície da amostra. A contagem deles (*total electron yield*) proporciona uma medida indireta do coeficiente de absorção da amostra. Tecnicamente, os elétrons ejetados são repostos devido a amostra estar aterrada e o fluxo de elétrons é detectado na forma de corrente elétrica. O coeficiente de absorção permite identificar as transições específicas, ou seja, quando incidimos uma radiação com energia que corresponde a transição um máximo na absorção é observado.

O uso de radiação síncrotron circularmente polarizada permite analisar anisotropias da amostra, como o desemparelhamento de spins, através do dicroísmo circular magnético de raios X (XMCD). A técnica de XMCD usando radiação síncrotron tornou-se uma das mais importantes para estudar momentos magnéticos localizados em filmes finos e multicamadas desde o primeiro estudo em 1987 [106]. O XMCD proporciona uma maneira de obter o momento magnético da amostra através de medidas de XAS utilizando polarizações opostas da radiação circularmente polarizada. Ao utilizar diferentes polarizações da radiação, caso o material apresente spins desemparelhados, ou momento magnético líquido, os espectros de XAS são diferentes, e esta diferença é proporcional ao momento magnético do elemento específico.

Para o caso de XMCD em metais 3d o sinal é mais intenso se a energia dos raios X corresponder à transição $2p \rightarrow 3d$. Para o Co, por exemplo, o subnível p é dividido em dois subníveis devido à interação spin-órbita, assim dois valores de energia fazem a transição $2p \rightarrow 3d$, e dois picos de absorção são observados. Na análise de XAS a energia de transição dos subníveis é chamada de borda de absorção. Para o Co as bordas L_3 e L_2 correspondem ao subnível $2p$, as quais são acessadas com energias de aproximadamente 781 eV e 795 eV, respectivamente. Na Fig. B.10a podemos observar dois espectros de XAS com radiações opostamente polarizadas, assim como a soma dos espectros ou espectro isotrópico. Este último corresponderia ao caso em que a amostra não apresentasse spins desemparelhados.

Ainda na Fig. B.10(a) podemos visualizar o espectro de XMCD (parte inferior), o qual corresponde a diferença entre o espectro laranja e o verde da mesma figura. Note que o sinal de XMCD (região A e B) é oposto entre as bordas L_3 e L_2 , isso advém do sinal oposto da interação spin-órbita para estes subníveis. A área destas regiões está diretamente ligada ao momento magnético do material sondado.

Na Fig. B.10(b) estão ilustradas as bordas de absorção do Co que são acessadas para quantificar o magnetismo do mesmo. Na presença de campo magnético, há um desbalanço entre as bandas de spins majoritários e minoritários. Quando incidimos uma radiação circularmente polarizada esta é mais absorvida por spins que estão alinhados paralelamente a sua incidência e menos absorvida por spins que estão alinhados antiparalelamente. Havendo um desemparelhamento entre spins, a absorção é diferente para polarizações opostas. Logo, esta diferença é uma maneira de estimar o quão magnético é o metal em estudo. Quando incidimos energia da borda L_3 temos um sinal mais intenso devido a maior quantidade de elétrons que ocupam este subnível, visto que a L_3 corresponde a transição do subnível $2p_{3/2}$.

O espectro de XMCD, juntamente com o de XAS isotrópico, nos permite estimar os momentos magnéticos orbital e de spin para o metal de transição analisado. Para isso, faz-se uso da metodologia bem estabelecida pelas regras de soma do XMCD. As regras de soma de XMCD foram primeiramente propostas por Thole et al. em 1992 [108] e Carra et al. em 1993 [109]. Eles mostraram que a partir da integração dos sinais de XMCD e XAS é possível quantificar o momento orbital e de spin. As regras de soma pode ser aplicada a uma transição entre duas camadas eletrônicas bem definidas, que no caso é a transição de um estado de caroço $2p$ para estados de valência $3d$ do metal de transição $3d$, que neste estudo é o Co.

Para aplicar as regras de soma precisamos de três espectros: com radiação circularmente polarizada horária, com radiação circularmente polarizada anti-horária (que fornecem o sinal de XMCD) e a soma dos espectros medidos com as duas polarizações (XAS isotrópico). Inicialmente faz-se a integração dos espectros com a finalidade de quantificar os parâmetros p e q do espectro de XMCD (Fig. B.11b) e r do espectro de XAS isotrópico

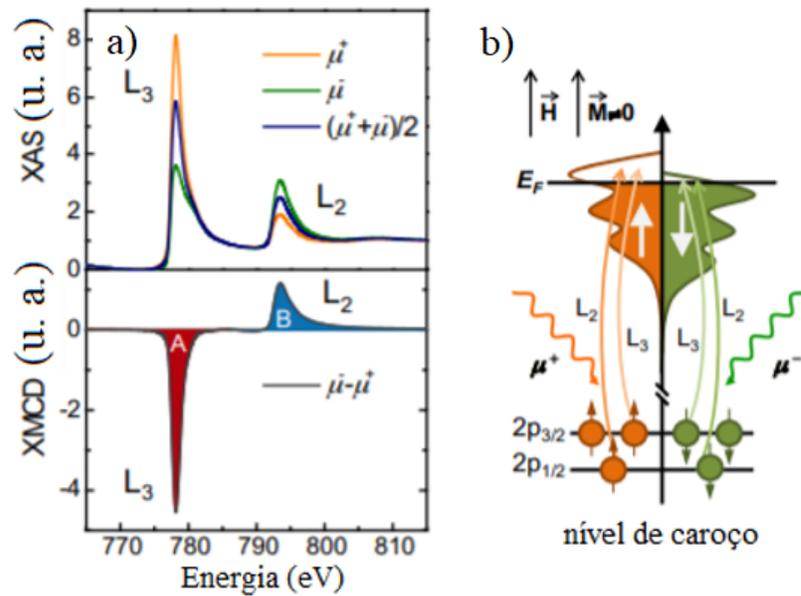


Figura B.10 – (a) Exemplos de espectros de absorção na borda L_3 e L_2 do cobalto para diferentes polarizações de raios X. (b) Níveis energéticos excitados na medida de XMCD do Co. Adaptado de [107].

(Fig. B.11(c)). Ao integrar o espectro de XAS é preciso tomar um certo cuidado. Existe um *background* entre a pré-borda L_3 e a pós-borda L_2 , caso seja feita uma integração direta a mesma não convergirá. Para a integral convergir e uma correta aplicação das regras de soma é preciso descontar uma função degrau do espectro de XAS isotrópico, assim como ilustrado na Fig. B.11c. Outro cuidado que deve ser tomado é com a amplitude entre os degraus. Precisamos conhecer a área abaixo dos dois picos de absorção, os quais correspondem a subnível $2p_{3/2}$ (L_3) e $2p_{1/2}$ (L_2), assim esta diferença entre os sub-níveis precisa ser considerada. Mais especificamente, o primeiro degrau (L_3) deve ter $2/3$ da amplitude e o segundo degrau (L_2) $1/3$. Além disso, os degraus devem estar posicionados exatamente na energia que corresponde à borda de absorção. Descontada a função degrau, a integral tem a forma da ilustrada na Fig. B.11(c) em linha tracejada, e sua amplitude nos fornece o parâmetro r .

O momento magnético total é a soma da contribuição orbital com a contribuição de spin. Utilizando os parâmetros p , q e r nas equações das regras de soma podemos obter a contribuição orbital e de spin separadamente [110]:

$$m_{orb} = N_H \frac{4q}{3r}, \quad (\text{B.1})$$

$$m_{spin} = N_H \frac{6p - 4q}{r}, \quad (\text{B.2})$$

onde N_H é o número de buracos, o que corresponde ao número de orbitais 3d vazios.

Desta forma, podemos ter o momento magnético total (m_{total}) para o Co por:

$$m_{total} = m_{orbital} + m_{spin}. \quad (B.3)$$

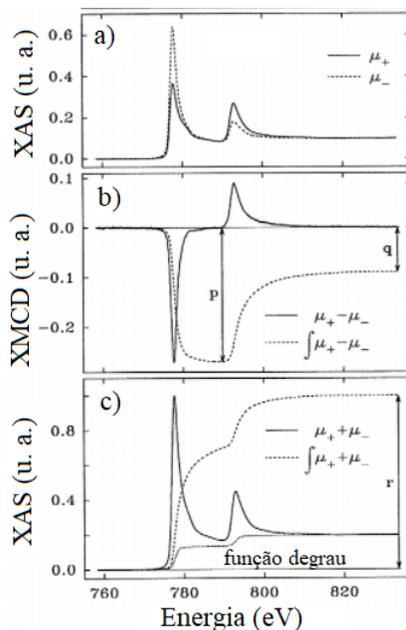


Figura B.11 – Obtenção dos parâmetros para as regras de soma do XMCD. Adaptado de ref. [110].

As medidas de XAS e XMCD apresentadas no capítulo 3 desta tese foram realizadas na linha de luz U11-PGM [111] instalada no acelerador UVX do Laboratório Nacional de Luz Síncrotron (LNLS - CNPEM), desativado em agosto de 2019. A linha de luz U11-PGM é uma linha de luz de raios X moles, com intervalo de energia disponível de ~ 100 eV até ~ 2000 eV. Por isso, todos os experimentos são realizados em ultra alto vácuo ($\sim 10^{-9}$ mBar). Os raios X podem ser polarizados linearmente ou circularmente (sentidos horário e anti-horário) através da movimentação dos cassetes magnéticos de um dispositivo de inserção chamado ondulator. Na Fig. B.12 podemos observar uma ilustração da estação experimental.

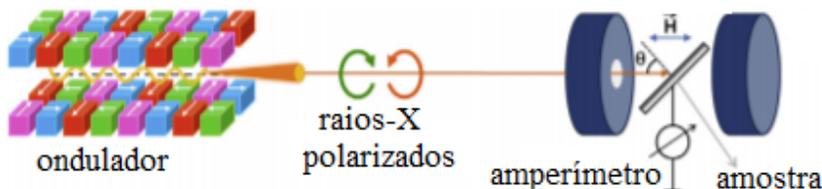


Figura B.12 – Ilustração da estação de espectroscopia de absorção de raios X com campo magnético aplicado. Adaptado de [107].

Devido à necessidade de aplicação de campo magnético, para obtermos o momento magnético total saturado, foi utilizada a estação experimental com bobina supercondutora

(BSC). Na Fig. B.13 podemos observar uma fotografia desta estação experimental. A estação BSC permite realizar medidas de absorção de raios X com aplicação de campo magnético de até 4 T nos dois sentidos da direção paralela ao feixe de raios X. A aplicação de um campo magnético maior que o de saturação das amostras permite obter através destas medidas o momento atômico dos átomos de Co.

Observando a Fig. B.13, a câmara da BSC é a parte maior no centro da imagem. Na parte superior ficam os motores responsáveis pela translação e rotação da amostra. A esquerda da BSC é o braço por onde o feixe de raios X chega até a amostra. Ao lado direito da BSC estão as câmaras de manipulação das amostras, as quais estão acopladas às bombas de vácuo (mecânicas, turbomoleculares e iônicas) necessárias para manter a baixa pressão.

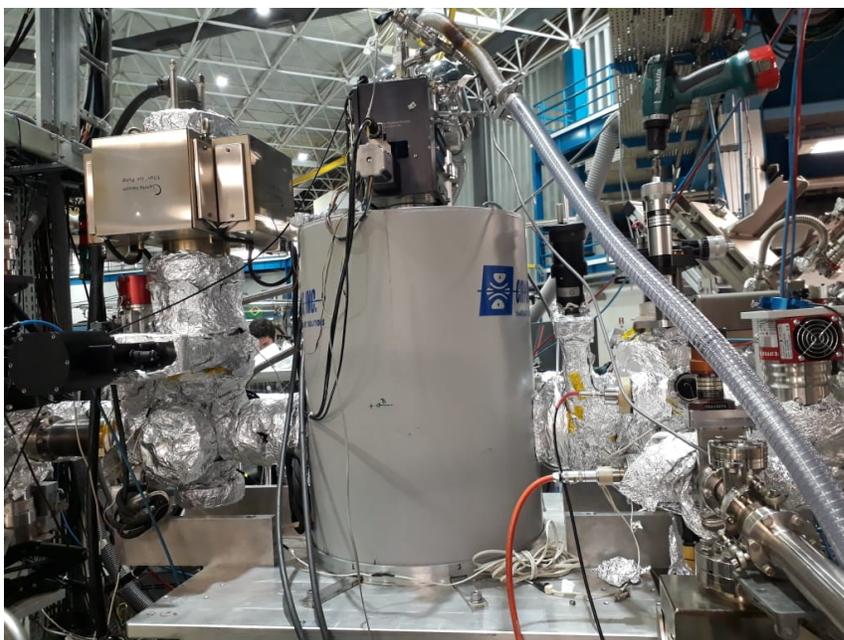


Figura B.13 – Fotografia da estação experimental com bobina super condutora. A esquerda da imagem é por onde o feixe de raios X chega até a amostra e a parte a direita da imagem é para a manipulação das amostras. Esta estação estava instalada na linha de luz PGM do LNLS.

Nas medidas realizadas, utilizamos raios X circularmente polarizados no sentido horário e anti-horário (com grau de polarização em torno de 80 %) e campos magnéticos de + 1 T e - 1 T. Todas as medidas foram realizadas em temperatura ambiente e em pressão da ordem de 10^{-9} mBar. Variamos a energia no intervalo de 760 a 830 eV para abranger as bordas L_3 e L_2 do Co. A variação da energia é feita através de um monocromador, o qual faz o movimento relativo entre uma grade e um espelho plano selecionando uma energia específica conforme a orientação. O monocromador de grade planar é que dá nome a linha PGM (*Planar Grating Monochromator*).

B.6 – DIFRAÇÃO E REFLETIVIDADE DE DE RAIOS X

Os raios X interagem de diferentes maneiras com a matéria, sendo que efeitos de difração e reflexão podem ser observados dependendo do ângulo de incidência. A difração de raios X, ou XRD (do inglês *X-ray diffraction*) é uma excelente técnica para analisar a estrutura cristalina da amostra.

A difração pode ser entendida através da lei de Bragg, a qual descreve para quais distâncias interatômicas (d) e ângulos entre os raios X incidente e difratado ocorre interferência construtiva. A lei de Bragg é expressa por:

$$d = \frac{\lambda n}{2 \sin \theta} \quad (\text{B.4})$$

onde λ é o comprimento de onda, n é o índice de Bragg e θ é ângulo entre a superfície da amostra e o feixe de raios X. Para incidência de raios X com alto ângulo a condição de Bragg é satisfeita para distâncias sub-nanométricas, sendo assim sensível aos planos atômicos, revelando a estrutura cristalina dos átomos como podemos observar na Fig. B.14.

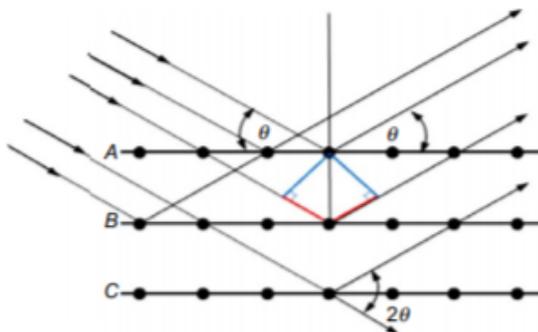


Figura B.14 – Ilustração da interação dos raios X com os planos atômicos do material. Adaptado de [112].

Para ângulos bem baixos a lei de Bragg é satisfeita para distâncias nanométricas, da mesma ordem das espessuras das multicamadas. Nesta condição, técnica de análise dos raios X refletidos é a XRR (do inglês *X-ray reflectivity*). A técnica de XRR mede o padrão de interferência na condição especular. Desta forma, trata-se de espalhamento que ocorre entre as interfaces da multicamada. Portanto, o padrão de XRR fornece a modulação química da amostra, ou seja, o perfil de profundidade da densidade eletrônica da multicamada.

Realizando uma medida de XRR com variação angular identificamos oscilações na medida devido as interferências entre as ondas, estas oscilações são chamadas franjas de Kiessing, e podemos observar na Fig. B.16. Além da espessura a medida de XRR

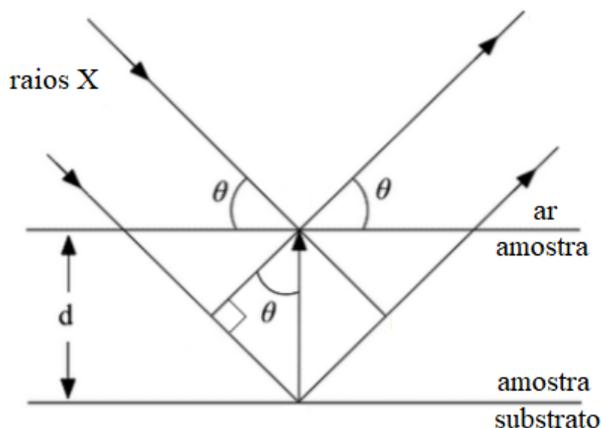


Figura B.15 – Ilustração das reflexões de raios X em uma monocamada.

permite analisar a rugosidade das interfaces e a densidade da amostra. Na Fig. B.16 é apresentado um exemplo de medida de XRR e características que definem a forma da medida. A rugosidade da amostra traz consequências para a medida principalmente na amplitude das franjas de Kiessing e no decaimento na intensidade do sinal. A densidade do material também influencia na amplitude das oscilações, além de interferir no ângulo crítico.

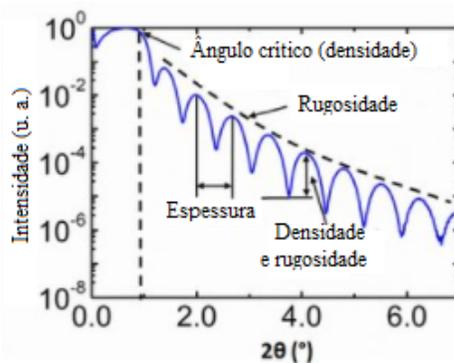


Figura B.16 – Exemplo de uma medida de XRR de um filme fino e as informações que podem ser extraídas. Adaptado de [113].

O equipamento utilizado para as medidas de XRR e DRX foi um Bruker D8 Advance com geometria do goniômetro Bragg-Brentano ($\theta - 2\theta$). A fonte de raios X K_{α} do cobre, sendo assim o comprimento de onda igual a 0,154 nm. Na Fig. B.17 está apresentado uma fotografia do equipamento utilizado.

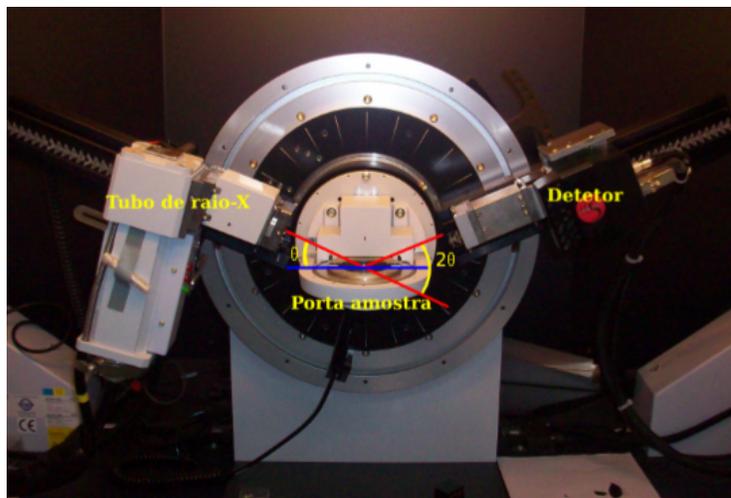


Figura B.17 – Fotografia do difratômetro de raios X utilizado.

B.7 – MICROSCOPIA DE TRANSMISSÃO DE RAIOS X POR VARREDURA

A técnica de microscopia de transmissão de raios X por varredura, normalmente chamada de STXM (do inglês *scanning transmission X-ray microscopy*), permite sondar domínios magnéticos usando o contraste do dicroísmo circular magnético de raios X. Novamente utilizando raios X circularmente polarizados e uma energia característica da transição eletrônica do subnível 2p do Co, podemos analisar uma diferente interação da radiação conforme a orientação magnética da amostra. Nesta técnica não há a necessidade de aplicar campo magnético, visto que não queremos analisar o momento magnético saturado e sim os domínios magnéticos. A presença de domínios magnéticos orientados em sentidos opostos proporciona uma diferente absorção dos raios X circularmente polarizados e, conseqüentemente, um contraste na intensidade dos raios X transmitidos.

A Fig. B.18 ilustra como é realizada a medida de STXM. Ao lado esquerdo da imagem temos o feixe de raios X circularmente polarizado, o qual é focalizado por lentes do tipo *zone plate* em direção à amostra. Antes de chegar até a amostra, o feixe é dimensionado pela estrutura OSA (*order selecting aperture*). Ao incidir na amostra o feixe é parcialmente absorvido e a atravessa. Do outro lado da amostra uma câmera CCD (*charge-coupled device*) converte os raios X em sinal elétrico. Para obter uma imagem STXM de uma determinada área, o feixe varre a amostra através do movimento relativo entre o porta-amostra e a lente *zone plate*. No caso do microscópio utilizado, a amostra permanece parada e o *zone plate* movimentado o feixe com a correção de um interferômetro. Este sistema permite obter resoluções recordes da ordem de 30 nm. Além disso, é possível rotacionar a amostra e obter imagens com diferentes ângulos de incidência dos raios X, ou seja, diferentes projeções.

Para realizar as medidas de STXM, as amostras foram crescidas sobre finas membranas de nitreto de silício (Si_3N_4), isto para que sejam transparentes aos raios X moles.

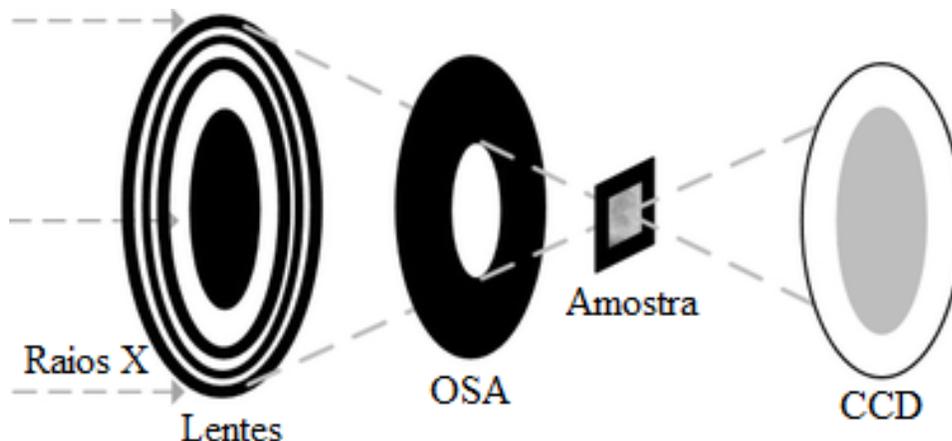


Figura B.18 – Ilustração do processo de medida por STXM. À esquerda temos o feixe de raios X, ao meio a amostra e à direita a câmera CCD [114].

O equipamento utilizado pertence ao *Advanced Light Source (ALS)*, que é um síncrotron do Laboratório Nacional Lawrence Berkeley, na cidade de Berkeley, estado da Califórnia (EUA). O feixe de raios X é coerente, bem focalizado e tem diâmetro de ~ 50 nm. As medidas foram realizadas na linha de luz 7.0.1 Cosmic (*coherent scattering and microscopy*) [115]. Os raios X utilizados foram circularmente polarizados em sentido horário e anti-horário, e com energia fixa de 781 eV que corresponde a borda L_3 do Co. Nas Fig. B.19 e Fig. B.20 são apresentadas imagens do microscópio utilizado para as medidas.

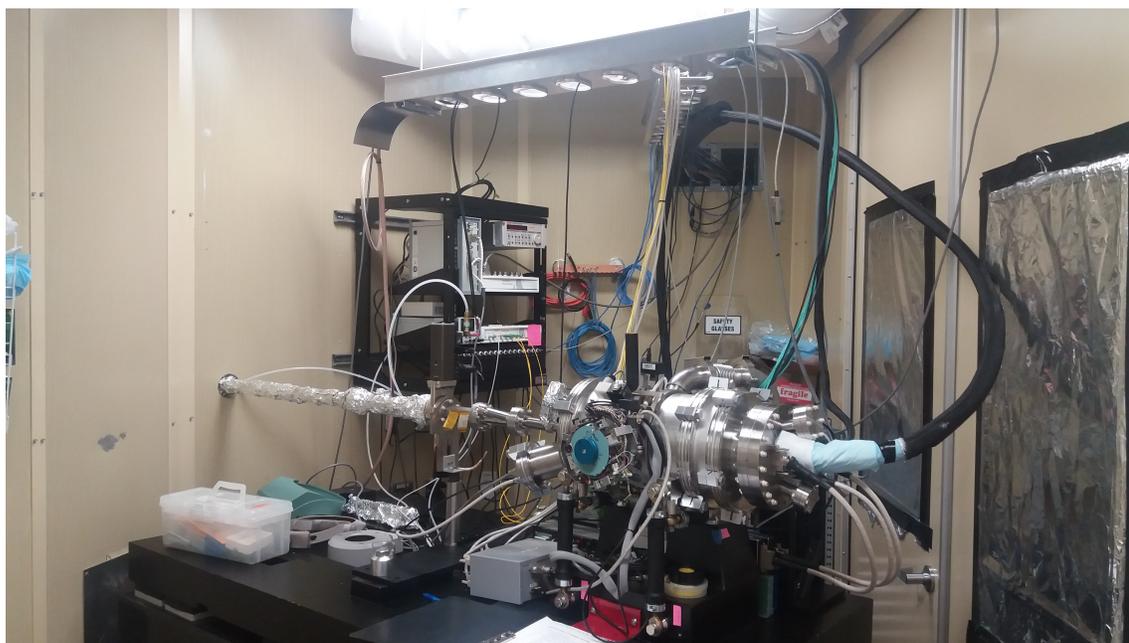


Figura B.19 – Fotografia do equipamento utilizado para medidas de STXM. À esquerda podemos observar o tubo de raios X que vem do anel de luz Síncrotron. Este equipamento pertence ao ALS.

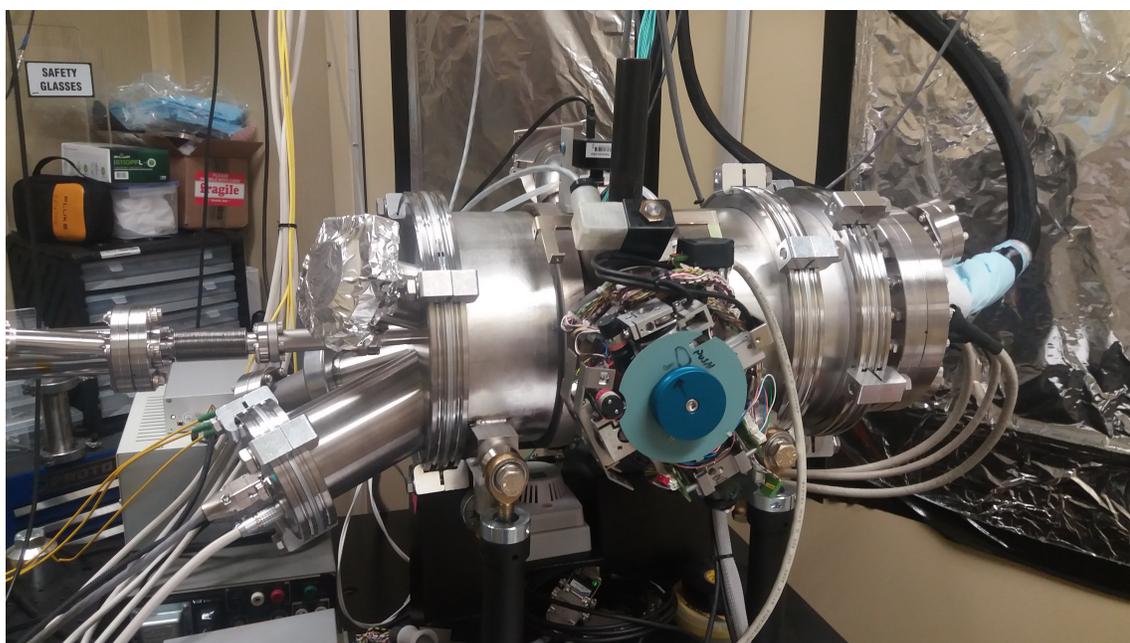


Figura B.20 – Fotografia mais próxima do equipamento de STXM. Ao centro da imagem, na cor azul, podemos ver o motor que está ligado a amostra, o qual determina a inclinação da mesma.

APÊNDICE C – ARTIGOS

- (Em preparação) Saturation magnetization reduction in asymmetric Pt/Co/Hf/Pt multilayers: implications for domain wall and skyrmions motion. D. A. Dugato, J. Brandão, F. Béron, S. Flewett, L. S. Dorneles, T. J. A. Mori.
- (Submetido) Magnetic proximity effect at Pt/Co interfaces and isolated skyrmion bubble stabilization at zero magnetic field. D. A. Dugato, J. Brandão, F. Béron, R. B. da Silva, S. Flewett, D. Shapiro, J. C. Cezar, L. S. Dorneles, T. J. A. Mori.
- Magnetic domain size tuning in asymmetric Pd/Co/W/Pd multilayers with perpendicular magnetic anisotropy. D. A. Dugato, J. Brandão, R. L. Seeger, F. Béron, J. C. Cezar, L. S. Dorneles, T. J. A. Mori. *Appl. Phys. Lett.* 115, 182408 (2019). DOI: <https://doi.org/10.1063/1.5123469>
- Annealed Cobalt-Carbon Nanocomposites for Room-Temperature Spintronic Applications. M. V. P. dos Santos, J. Brandão, D. A. Dugato, F. Béron, K. R. Pirota, I. Utke. *ACS Appl. Nano Mater.* 3, 71437151 (2020). DOI: 10.1021/acsanm.0c01497
- Evolution of Zero-Field Ferrimagnetic Domains and Skyrmions in Exchange-Coupled Pt/CoGd/Pt Confined Nanostructures: Implications for Antiferromagnetic Devices. J. Brandão, D. A. Dugato, M. V. P. dos Santos, J. C. Cezar. *ACS Appl. Nano Mater.* 2, 75327539 (2019). DOI: 10.1021/acsanm.9b01593
- Observation of magnetic skyrmions in unpatterned symmetric multilayers at room temperature and zero magnetic field. J. Brandão, D. A. Dugato, R. L. Seeger, J. C. Denardin, T. J. A. Mori, J. C. Cezar. *Sci. Rep.* 4144 (2019). DOI: <https://doi.org/10.1038/s41598-019-40705-4>
- Tailoring the magnetic and magneto-transport properties of Pd/Co multilayers and pseudo-spin valve antidots. D. R. Saldanha, D. A. Dugato, T. J. A. Mori, N. F. Daudt, L. S. Dorneles, J. C. Denardin. *J. Phys. D: Appl. Phys.* 51 395001 (6pp) (2018). DOI: <https://doi.org/10.1088/1361-6463/aad7ad>
- Wireless power transfer exploring spin rectification and inverse spin Hall effects. R. L. Seeger, W. J. S. Garcia, D. A. Dugato, R. B. da Silva, A. Harres. *Phys. D: Appl. Phys.* 51 165002 (7pp) (2018). DOI: <https://doi.org/10.1088/1361-6463/aab40>

