

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

Paula Roberta Kern

**EXCHANGE BIAS EM BICAMADAS DE NiFe/FeMn: UM ESTUDO EM  
FUNÇÃO DA ESPESSURA DA CAMADA ANTIFERROMAGNÉTICA**

Santa Maria, RS  
2018

**Paula Roberta Kern**

**EXCHANGE BIAS EM BICAMADAS DE NiFe/FeMn: UM ESTUDO EM FUNÇÃO DA  
ESPESSURA DA CAMADA ANTIFERROMAGNÉTICA**

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 **Doutora em Física.**

ORIENTADOR: Prof. Marcos Carara

Santa Maria, RS  
2018

Kern , Paula Roberta

Exchange bias em bicamadas de NiFe/FeMn: um estudo em função da espessura da camada antiferromagnética / Paula Roberta Kern .- 2018.

94 p.; 30 cm

Orientador: Marcos Carara

Tese (doutorado) - Universidade Federal de Santa Maria, Centro de Ciências Naturais e Exatas, Programa de Pós-Graduação em Física, RS, 2018

1. Exchange bias 2. Ressonância ferromagnética 3. Desalinhamento 4. Largura de linha 5. Anisotropia I. Carara, Marcos II. 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.

---

©2018

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

End. Eletr.: paulafisicakern@gmail.com

**Paula Roberta Kern**

**EXCHANGE BIAS EM BICAMADAS DE NiFe/FeMn: UM ESTUDO EM FUNÇÃO DA  
ESPESSURA DA CAMADA ANTIFERROMAGNÉTICA**

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 **Doutora em Física.**

**Aprovado em 4 de dezembro de 2018:**



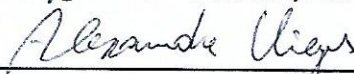
---

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



---

**Juliano Casagrande Denardin, Dr. (USACH)**



---

**Alexandre da Cas Viegas, Dr. (UFRGS)**



---

**Artur Harres de Oliveira, Dr. (UFSM)**



---

**Leandro Barros da Silva, Dr. (UFSM)**

## AGRADECIMENTOS

*Com a conclusão desta tese gostaria de agradecer a todos que de uma forma ou de outra contribuíram no seu desenvolvimento. Em especial, agradeço:*

*- A Deus, pelo dom da vida e seu infinito amor. Com a certeza de que existe algo maior, a caminhada torna-se muito mais leve.*

*- Ao professor Marcos Carara, pelos anos de orientação, dedicação, amizade, confiança e, principalmente, por sua infinita paciência.*

*- Aos demais professores do LMMM, Luiz F. Schelp, Lucio S. Dorneles, Ricardo Barreto, Juliano Denardin e Artur Harres, por suas contribuições em minha formação.*

*- Aos colegas e grandes amigos do LMMM, Angélica, Junara, Oreci, Denilson, Gazola, Diego, Tássia, Callega, Luciane, Josué, Dieivase, Wagner, Rafael, Dugato, Pedro, Bruno, Tulio, Heloisa e Andrés, pela parceria, ajuda com os equipamentos e interpretação dos resultados.*

*- À universidade pública, gratuita e de qualidade.*

*- Ao PPGFIS da UFSM, especialmente à Saionara, por sua disponibilidade em ajudar sempre.*

*- À CAPES<sup>1</sup>, pelos anos de financiamento (mestrado e doutorado) e pela oportunidade de ter participado do programa de doutorado sanduíche no exterior.*

*- Ao pessoal do EMAÚS/SM, onde fiz verdadeiros amigos pela fé.*

*- Aos meus amigos, de Santa Maria e de Cristal do Sul, por dividirem alegrias e angústias e sempre ouvirem minhas reclamações.*

*- Ao meu namorado, Anderson, pelo amor, respeito e paciência.*

*- Aos meus irmãos, Juliana e Robert, primeiros amigos que a vida me deu, pela cumplicidade sem igual.*

*- Aos meus pais, Gilnei e Clarice, minhas referências em caráter e força de vontade, obrigada por sempre terem me incentivado a estudar e por entenderem a minha ausência ao longo desses anos.*

---

<sup>1</sup>O presente trabalho foi realizado com apoio da Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior - Brasil (CAPES) - Código de Financiamento 001.

*Esta é uma história simples, mas não é fácil contá-la. Como uma fábula, há dor e, como uma fábula, está cheia de admiração e felicidade.*

*(A vida é bela)*

## RESUMO

### EXCHANGE BIAS EM BICAMADAS DE NiFe/FeMn: UM ESTUDO EM FUNÇÃO DA ESPESSURA DA CAMADA ANTIFERROMAGNÉTICA

AUTORA: Paula Roberta Kern  
ORIENTADOR: Marcos Carara

O *exchange bias* (EB) surge, comumente, do acoplamento interfacial entre uma camada ferromagnética (FM) e uma camada antiferromagnética (AFM). As duas manifestações mais bem conhecidas desse fenômeno, em amostras com uma interface FM/AFM, são o deslocamento em campo das curvas de magnetização e o aumento da coercividade quando comparada à do material FM desacoplado. A maior parte dos resultados experimentais tem mostrado que os campos de *exchange bias* ( $H_{eb}$ ) e coercivo ( $H_C$ ) de bicamadas FM/AFM são inversamente proporcionais à espessura da camada FM. Por outro lado, a relação entre esses parâmetros e a camada AFM é mais complicada, sendo que as particularidades de cada sistema definirão como será a evolução de  $H_{eb}$  e  $H_C$  com a espessura AFM. A regra geral é que existirá uma espessura AFM crítica abaixo da qual o EB desaparecerá. Nessa tese, com o objetivo de investigar o aparecimento e a evolução do EB em função da espessura da camada AFM, foram produzidas bicamadas de NiFe(50 nm)/FeMn( $t_{AFM}$ ) com  $3 \text{ nm} \leq t_{AFM} \leq 30 \text{ nm}$ . O trabalho foi realizado por intermédio de técnicas de caracterização estrutural e magnética, tais como difração e refletividade de raios-X, magnetometria e ressonância ferromagnética (com frequência fixa e banda larga). Os resultados encontrados por meio da caracterização magnética estática e dinâmica mostraram que, para esse sistema FM/AFM, o EB surge quando  $t_{AFM} \approx 6 \text{ nm}$ . Uma descrição feita para a evolução angular do campo de ressonância ferromagnética, considerando a energia Zeeman e as energias de anisotropias magnetostática, uniaxial, unidirecional e rodável, confirmou a existência de um desalinhamento entre os eixos das anisotropias uniaxial e unidirecional, o qual se revelou dependente da espessura da camada AFM. Além disso, a avaliação da largura de linha da ressonância ferromagnética em função da temperatura, realizada para duas amostras, apresentou um pico em, aproximadamente, 75 K, o qual foi interpretado em termos de inomogeneidades nas amostras.

**Palavras-chave:** *Exchange bias*. Ressonância ferromagnética. Desalinhamento. Largura de linha. Anisotropia. Temperatura.

## ABSTRACT

### EXCHANGE BIAS IN NiFe/FeMn BILAYERS: A STUDY AS A FUNCTION OF THE ANTIFERROMAGNETIC LAYER THICKNESS

AUTHOR: Paula Roberta Kern  
ADVISOR: Marcos Carara

The exchange bias (EB) arises, generally, from the interfacial coupling between a ferromagnetic layer (FM) and an antiferromagnetic layer (AFM). The most well-known manifestations of this phenomenon, in samples with a FM/AFM interface, are the field shift in the magnetization curves and the increase in the coercive field when compared to the uncoupled FM material. Many experimental results have shown that the exchange bias field ( $H_{eb}$ ) and coercivity ( $H_C$ ) in FM/AFM bilayers are inversely proportional to the FM layer thickness. On the other hand, the relationship between these parameters and the AFM layer is more complicated and the particularities of each system will define how the evolution of  $H_{eb}$  and  $H_C$  with the AFM thickness will be. The general rule is that there exists a critical thickness of the AFM below which the EB vanishes. In this thesis, in order to investigate the emergence and evolution of EB as a function of the AFM layer thickness, NiFe(50 nm)/FeMn( $t_{AFM}$ ) bilayers were produced with  $3 \text{ nm} \leq t_{AFM} \leq 30 \text{ nm}$ . The work was carried out by means of structural and magnetic characterization techniques, such as X-ray reflectivity and diffraction, magnetometry and ferromagnetic resonance (at a fixed frequency and broadband). The results obtained by static and dynamic magnetic characterization have shown that, for this FM/AFM system, the EB arises when  $t_{AFM} \approx 6 \text{ nm}$ . A description of the angular evolution of the ferromagnetic resonance field, considering the Zeeman, demagnetization, uniaxial, unidirectional and rotatable energies, confirmed the existence of a misalignment between the uniaxial and unidirectional anisotropies axes, which was found to be dependent on the AFM layer thickness. In addition, the evaluation of the ferromagnetic resonance linewidth as a function of temperature, performed for two samples, presented a peak at approximately 75 K, which was interpreted in terms of inhomogeneities in the samples.

**Keywords:** Exchange bias. Ferromagnetic Resonance. Misalignment. Linewidth. Anisotropy. Temperature.



## SUMÁRIO

1	<b>INTRODUÇÃO</b>	7
2	<b>EXCHANGE BIAS</b>	10
2.1	FERROMAGNETISMO E ANTIFERROMAGNETISMO	10
2.2	A DESCOBERTA DO <i>EXCHANGE BIAS</i>	11
2.3	MODELO INTUITIVO PARA A DESCRIÇÃO DO <i>EXCHANGE BIAS</i>	13
2.4	PRINCIPAIS CARACTERÍSTICAS DO <i>EXCHANGE BIAS</i>	15
2.4.1	<b>Campo de <i>exchange bias</i> e campo coercivo</b>	15
2.4.2	<b>Dependência de <math>H_{eb}</math> e <math>H_c</math> com a espessura da camada FM</b>	16
2.4.3	<b>Dependência de <math>H_{eb}</math> e <math>H_c</math> com a espessura da camada AFM</b>	18
2.4.4	<b>Temperatura de bloqueio</b>	20
2.4.5	<b>Efeito de treinamento</b>	21
2.4.6	<b>Configuração dos <i>spins</i> interfaciais</b>	23
2.4.7	<b>Rugosidade interfacial</b>	26
2.4.8	<b>Textura cristalográfica e tamanho de grão AFM</b>	26
2.5	MODELOS PARA A DESCRIÇÃO DO <i>EXCHANGE BIAS</i>	26
2.6	DINÂMICA DA MAGNETIZAÇÃO	30
2.6.1	<b>Ressonância ferromagnética</b>	31
2.6.2	<b>Equação de movimento da magnetização e formulação de Smit e Beljers</b>	31
2.6.3	<b>Dinâmica da magnetização em sistemas com EB</b>	33
3	<b>TÉCNICAS E PROCEDIMENTOS EXPERIMENTAIS</b>	36
3.1	PRODUÇÃO DAS AMOSTRAS	36
3.1.1	<b>Deposição por <i>magnetron sputtering</i></b>	37
3.2	CARACTERIZAÇÃO ESTRUTURAL	41
3.2.1	<b>Difração e refletividade de raios-X</b>	41
3.3	CARACTERIZAÇÃO MAGNÉTICA ESTÁTICA	42
3.3.1	<b>Magnetômetro de Amostra Vibrante</b>	42
3.3.2	<b>Magnetômetro de Gradiente de Campo Alternado</b>	43
3.4	CARACTERIZAÇÃO MAGNÉTICA DINÂMICA	45
3.4.1	<b>Espectroscopia de ressonância ferromagnética por onda contínua</b>	45
3.4.2	<b>Espectroscopia de ressonância ferromagnética de banda larga - VNA</b>	46
3.4.3	<b>Espectroscopia de ressonância ferromagnética em função da temperatura</b>	49
4	<b>RESULTADOS E DISCUSSÕES</b>	50
4.1	PROPRIEDADES ESTRUTURAIS	50
4.2	PROPRIEDADES MAGNÉTICAS ESTÁTICAS	56
4.3	PROPRIEDADES MAGNÉTICAS DINÂMICAS	67
4.3.1	<b>Ressonância ferromagnética - banda-X</b>	68
4.3.2	<b>Ressonância ferromagnética - banda larga</b>	75
4.3.3	<b>Ressonância ferromagnética em função da temperatura</b>	78
4.4	MEDIDAS ESTÁTICAS <i>VERSUS</i> MEDIDAS DINÂMICAS	84
5	<b>CONCLUSÕES E PERSPECTIVAS</b>	86
	<b>REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS</b>	88

## 1 INTRODUÇÃO

O fenômeno *exchange bias* (EB) foi descoberto há mais de 60 anos (MEIKLEJOHN; BEAN, 1956, 1957) e, atualmente, continua sendo um tópico de interesse no que tange à aplicações tecnológicas ou à pesquisa básica em Magnetismo (DZHUN et al., 2017; TORRES et al., 2017). A origem do EB está no acoplamento interfacial, geralmente, entre uma camada ferromagnética (FM) e uma camada antiferromagnética (AFM). As duas manifestações mais bem conhecidas do fenômeno, em amostras com uma interface FM/AFM, são o deslocamento em campo das curvas de magnetização e o aumento da coercividade quando comparada à do material FM desacoplado.

A física relacionada ao EB vem sendo amplamente aplicada em sensores, cabeças de leitura magnética baseadas em válvulas de *spin* e magnetorresistência gigante, além de memórias magnéticas de acesso aleatório - MRAM (XI; WHITE, 2000). Ademais, o efeito encontra aplicações em dispositivos de alta frequência (MCCORD et al., 2008).

Um melhor entendimento do *exchange bias* é um dos desafios atuais do Magnetismo tanto do ponto de vista teórico, quanto do experimental. Técnicas como magnetometria (CHOI; YOU; KIM, 2016; RIGUE et al., 2015), magnetorresistência anisotrópica (SILVA et al., 2018), ressonância ferromagnética (GALLARDO et al., 2017) e espalhamento Brillouin (FERMIN et al., 2000) têm sido adotadas para caracterizar sistemas que apresentam EB. Por outro lado, o desenvolvimento de modelos tem buscado descrever os resultados experimentais quantitativamente, o que tem mostrado-se uma tarefa difícil, uma vez que são vários os parâmetros que podem influenciar na ocorrência e na magnitude do EB (SCHULLER et al., 2016).

Apesar da grande quantidade de trabalhos publicados, existem características associadas ao EB em amostras FM/AFM que ainda não são bem compreendidos. Citam-se, por exemplo, o fato de diferentes técnicas de medidas resultarem em valores distintos para o campo de *exchange bias* (GALLARDO et al., 2017; KHANAL et al., 2014; RODRÍGUEZ-SUÁREZ et al., 2003), o aumento da largura de linha de ressonância ferromagnética com o decréscimo da temperatura (ADAMS et al., 2018) e a possível existência de um desalinhamento entre os eixos das anisotropias uniaxial e unidirecional (BARRETO et al., 2014; CHOI et al., 2010; DEKADJEVI et al., 2011; GRAET et al., 2009; KHANAL et al., 2014; SILVA et al., 2018).

Ao investigar tricamadas de NiFe/FeMn/CoFe, com diferentes espessuras para a camada AFM, Choi e colaboradores concluíram que os eixos de anisotropias uniaxial e unidirecional coexistiam, mas não eram colineares. O estudo foi feito através da dependência angular do campo de ressonância ferromagnética e mostrou um desalinhamento entre anisotropias para determinadas espessuras do AFM (CHOI et al., 2010). Por outro lado, para bicamadas de NiFe/NiO foi verificado que a presença, ou não, do desalinha-

mento depende da espessura da camada FM (GRAET et al., 2009). Além disso, resultados que também podem estar relacionados a um desalinhamento entre eixos de anisotropias já foram obtidos em multicamadas de FeNi/IrMn (KHANAL et al., 2014).

Quanto às técnicas experimentais para a caracterização de propriedades magnéticas, os experimentos que envolvem ressonância ferromagnética têm se mostrado eficazes. Por meio desses é possível sondar informações a respeito das anisotropias magnéticas, do acoplamento entre camadas e dos processos envolvidos na relaxação da magnetização. Para uma amostra que apresenta EB, a existência de um desalinhamento entre os eixos das anisotropias FM e AFM produz uma assimetria no comportamento azimutal do campo de ressonância ferromagnética, de forma que o ângulo de desalinhamento pode ser determinado (GRAET et al., 2009).

Através de magnetometria podem ser obtidas medidas do campo de *exchange bias* e da coercividade em função do ângulo em que o campo magnético externo é aplicado com relação ao eixo de EB. A análise dessa dependência angular do *exchange bias* (ADEB) possibilita o entendimento de uma série de questões, tais como a relação entre o campo de EB e o aumento da coercividade, reversão assimétrica da magnetização, anisotropias magnéticas colineares e não-colineares, desordem de *spins* e efeitos de treinamento em bicamadas FM/AFM policristalinas (FERNANDEZ-OUTON; O'GRADY, 2005; HU et al., 2015).

Nos últimos anos, alguns sistemas exibindo EB vêm sendo explorados no Laboratório de Magnetismo e Materiais Magnéticos (LMMM) da UFSM por meio de várias técnicas experimentais (GARCIA et al., 2017; RIGUE, 2014; SILVA, 2016; SIQUEIRA, 2015). Para essa tese, foi proposto um estudo do EB em função da espessura da camada antiferromagnética em bicamadas FM/AFM.

Com o intuito de contribuir no entendimento do EB, mais especificamente investigando sua evolução com a espessura da camada AFM, chegou-se nos objetivos para esse doutorado:

- Produzir bicamadas FM/AFM, na forma de filmes finos, variando a espessura da camada AFM.
- Estudar as propriedades estruturais das amostras, tais como cristalinidade, tamanho de grão e rugosidade, uma vez que podem influenciar nas propriedades magnéticas.
- Por meio de magnetometria e experimentos envolvendo ressonância ferromagnética, investigar as propriedades magnéticas das amostras, tais como campo de *exchange bias*, coercividade, campo de anisotropia, magnetização de saturação e largura de linha.
- Identificar um possível desalinhamento entre os eixos de anisotropias uniaxial e unidirecional das amostras.

- Avaliar a evolução da largura de linha com o decréscimo da temperatura das amostras.
- Comparar os resultados obtidos por meio das diferentes técnicas de medidas.
- Descrever os resultados obtidos experimentalmente com base nas teorias correntes.

Essa tese foi elaborada sob a orientação do professor Dr. Marcos Carara, sendo que o trabalho experimental que a compõe realizou-se no LMMM, em Santa Maria, e no *Advanced Materials Research Institute* (AMRI), situado na Universidade de New Orleans - EUA. A estadia no AMRI foi de, aproximadamente, 4 meses e ocorreu por meio do Programa de Doutorado Sanduíche no Exterior (PDSE) da CAPES, contando com a colaboração do professor Dr. Leonard Spinu.

Quanto à organização, a tese está dividida em cinco capítulos. A seguir, faz-se uma revisão do *exchange bias*, efeito que norteia esse trabalho. No terceiro capítulo, as técnicas e procedimentos experimentais que foram adotados para alcançar os objetivos propostos acima são descritos. No capítulo posterior, apresentam-se os resultados obtidos, os quais referem-se às propriedades estruturais e magnéticas das amostras produzidas. Por fim, elencam-se as conclusões e perspectivas.

## 2 EXCHANGE BIAS

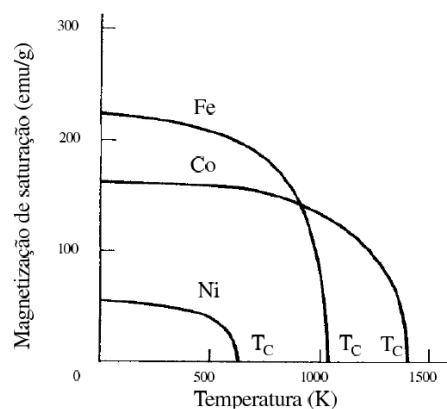
Nesse capítulo, apresenta-se uma breve discussão a respeito de materiais ferromagnéticos e antiferromagnéticos e, posteriormente, faz-se uma revisão acerca do *exchange bias*, fenômeno que pode resultar do acoplamento interfacial entre tais materiais magnéticos.

### 2.1 FERROMAGNETISMO E ANTIFERROMAGNETISMO

A manifestação mais marcante do magnetismo em sólidos é a magnetização espontânea de materiais como o ferro, o cobalto e o níquel, puros ou em ligas com outros elementos. Esses materiais são denominados ferromagnéticos (FM) e apresentam momento magnético resultante mesmo na ausência de um campo magnético externo ( $H$ ). Na presença de  $H$ , a magnetização ( $M$ ) dos materiais FM pode aumentar até atingir um valor máximo, o qual é conhecido como magnetização de saturação ( $M_S$ ).

A figura 2.1 mostra a relação entre a magnetização de saturação e a temperatura ( $T$ ) para o ferro, o cobalto e o níquel. Conforme a temperatura aumenta,  $M_S$  diminui, devido à agitação térmica dos momentos magnéticos, até atingir um valor nulo. Isso ocorre numa temperatura crítica, denominada temperatura de Curie ( $T_C$ ), que é uma propriedade intrínseca de cada material. Quando  $T > T_C$ , a energia térmica predomina sobre a energia de ordenamento FM e o material passa a ter um comportamento paramagnético. As temperaturas de Curie do ferro, do cobalto e do níquel são 1044 K, 1388 K e 628 K, respectivamente (COEY, 2009).

Figura 2.1 – Magnetização de saturação em função da temperatura para o ferro, o cobalto e o níquel.



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

A interação de troca (*exchange*) que ocorre entre os momentos magnéticos atômicos de um material, resultante do princípio de exclusão de Pauli, está associada à energia de troca. Essa energia é dada por:

$$E_{ex} = -2J_{ex}\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j = -2J_{ex}S_iS_j \cos \phi, \quad (2.1)$$

onde  $\vec{S}_i$  e  $\vec{S}_j$  representam os momentos de *spin* de dois átomos vizinhos ( $i$  e  $j$ ),  $\phi$  é o ângulo entre eles e  $J_{ex}$  é a integral de troca (CULLITY; GRAHAM, 2009).

Em um material magnético, a ordem existente é determinada pelo sinal de  $J_{ex}$ . A interação de troca induz um alinhamento paralelo ou antiparalelo dos *spins* a fim de minimizar a energia livre magnética do sistema. Dessa forma, quando  $J_{ex} > 0$  a ordem é ferromagnética, pois o alinhamento paralelo dos *spins* minimiza  $E_{ex}$ . Quando  $J_{ex} < 0$  o material apresenta uma ordem antiferromagnética ou ferrimagnética, pois o alinhamento antiparalelo dos *spins* é que minimiza  $E_{ex}$ .

Nos materiais antiferromagnéticos (AFM), os momentos magnéticos são iguais em magnitude, o que resulta em uma magnetização total nula. Entretanto, nos materiais ferrimagnéticos, os momentos magnéticos vizinhos são diferentes em magnitude, o que resulta em uma magnetização diferente de zero.

Para os materiais AFM também existe uma temperatura crítica acima da qual, devido a agitação térmica, desaparece o ordenamento magnético. Essa temperatura é denominada temperatura de Néel ( $T_N$ ).

## 2.2 A DESCOBERTA DO EXCHANGE BIAS

O fenômeno que atualmente é conhecido por *exchange bias* (EB) foi primeiramente relatado por W. H. Meiklejohn e C. P. Bean, na década de 1950 (MEIKLEJOHN; BEAN, 1956, 1957). Eles referiram-se ao fenômeno descoberto como nova anisotropia magnética, ou ainda anisotropia de troca, e concluíram que resultava da interação de troca entre um material ferromagnético e um material antiferromagnético.

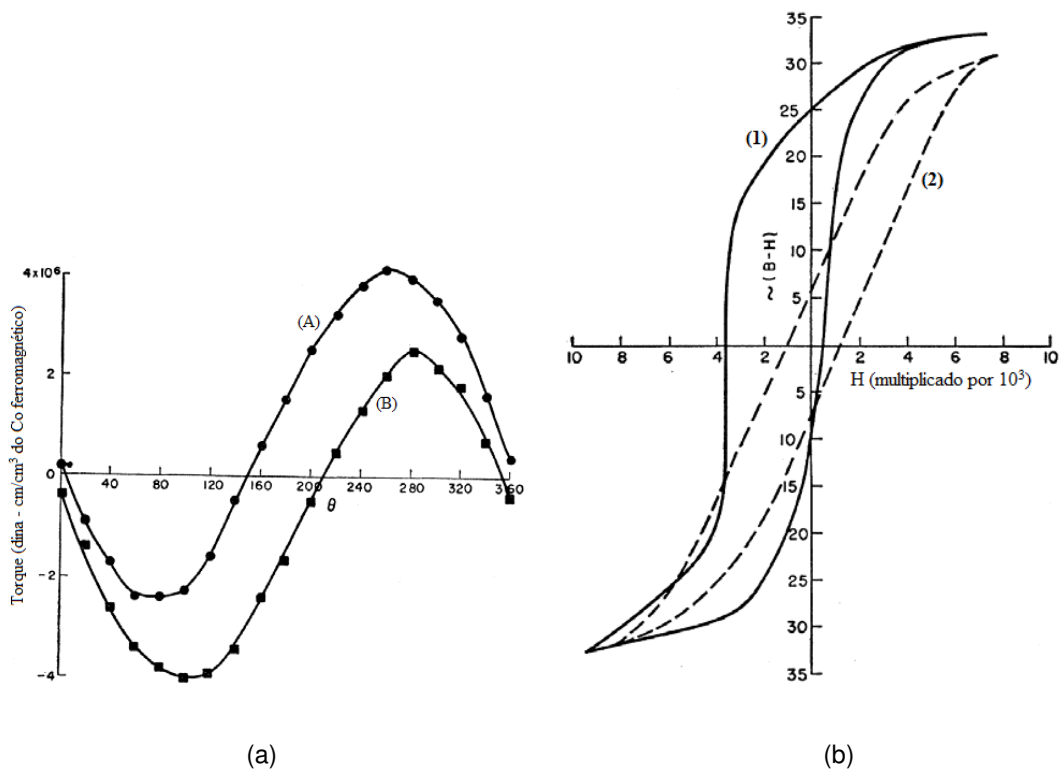
A descoberta foi feita através do estudo de partículas finas de cobalto (Co), eletrodepositadas com mercúrio, envolvidas no seu próprio óxido antiferromagnético (CoO). Meiklejohn e Bean observaram que acima da temperatura de Néel do óxido de cobalto (293 K), no estado paramagnético, as partículas revestidas de óxido apresentavam um comportamento típico de partículas de cobalto puro. No entanto, abaixo de tal temperatura foi observado um comportamento distinto, ou seja, deveria existir uma interação entre os *spins* do cobalto (material FM) e o óxido de cobalto (material AFM).

Resfriando uma amostra desde 300 K até 77 K (do estado paramagnético para o antiferromagnético do CoO) em um campo magnético suficiente para saturá-la, Meiklejohn

e Bean verificaram que o fenômeno tratava-se de uma anisotropia unidirecional, isto é, que existia um sentido de fácil magnetização. As consequências da existência dessa anisotropia foram percebidas em medidas de torque e curvas de magnetização (MEIKLEJOHN; BEAN, 1957).

Pode-se ver na figura 2.2 (a) que a curva de torque obtida é proporcional a uma função  $\sin \theta$  e não  $\sin 2\theta$ , como em materiais que exibem anisotropia uniaxial, por exemplo, o cobalto puro. Já a curva de magnetização deslocou-se no eixo do campo magnético aplicado, como pode ser visto na figura 2.2 (b) - linha contínua. Na ausência de um campo magnético durante o processo de resfriamento até 77 K, a amostra respondeu com uma curva de magnetização simétrica, figura 2.2 (b) - linha tracejada.

Figura 2.2 – Medidas obtidas a 77 K para partículas de Co envolvidas por CoO. (a) Nas curvas de torque,  $\theta$  é o ângulo entre o eixo da amostra em que o campo magnético foi aplicado durante o resfriamento e a direção do campo de medida. As curvas (A) e (B) representam os torques medidos nos sentidos horário e anti-horário, respectivamente. (b) Curvas de magnetização medidas após o resfriamento da amostra na ausência de campo magnético (linha tracejada) e na presença de um campo magnético de 10000 Oe (linha contínua).



Fonte: Adaptação de (MEIKLEJOHN; BEAN, 1957).

O torque medido para as partículas de Co envolvidas por CoO pode ser escrito como

$$T = -\frac{\partial F}{\partial \theta} = -K_u \sin \theta. \quad (2.2)$$

Logo, a energia magnética é dada por

$$F = \int K_u \sin \theta d\theta = -K_u \cos \theta + K_0, \quad (2.3)$$

onde  $K_u$  é uma constante de proporcionalidade e  $K_0$  é uma constante de integração.

A equação 2.3 mostra que para um sistema FM/AFM, como o descrito acima, a energia associada à curva de torque tem apenas um mínimo, em  $\theta = 0^\circ$ . Para um sistema puramente FM, onde  $F \propto \sin^2 \theta$ , devem-se apresentar dois mínimos de energia, em  $\theta = 0^\circ$  e  $\theta = 180^\circ$ . Ao invés de uma anisotropia uniaxial, com duas configurações de fácil magnetização em sentidos opostos, sistemas FM/AFM com EB possuem uma anisotropia unidirecional, com um único sentido fácil de magnetização (NOGUÉS; SCHULLER, 1999).

Ainda, considerando as medidas de torque, pode-se ver que as curvas (A) e (B) da figura 2.2 (a), que representam os torques para  $\theta$  diminuindo e aumentando, são diferentes. A região entre as curvas é denominada histerese rotacional. Esse tipo de histerese se apresenta em uma faixa estreita de campos para amostras puramente FM. Todavia, para amostras FM/AFM a histerese rotacional não desaparece, mesmo para campos magnéticos altos (NOGUÉS; SCHULLER, 1999).

### 2.3 MODELO INTUITIVO PARA A DESCRIÇÃO DO *EXCHANGE BIAS*

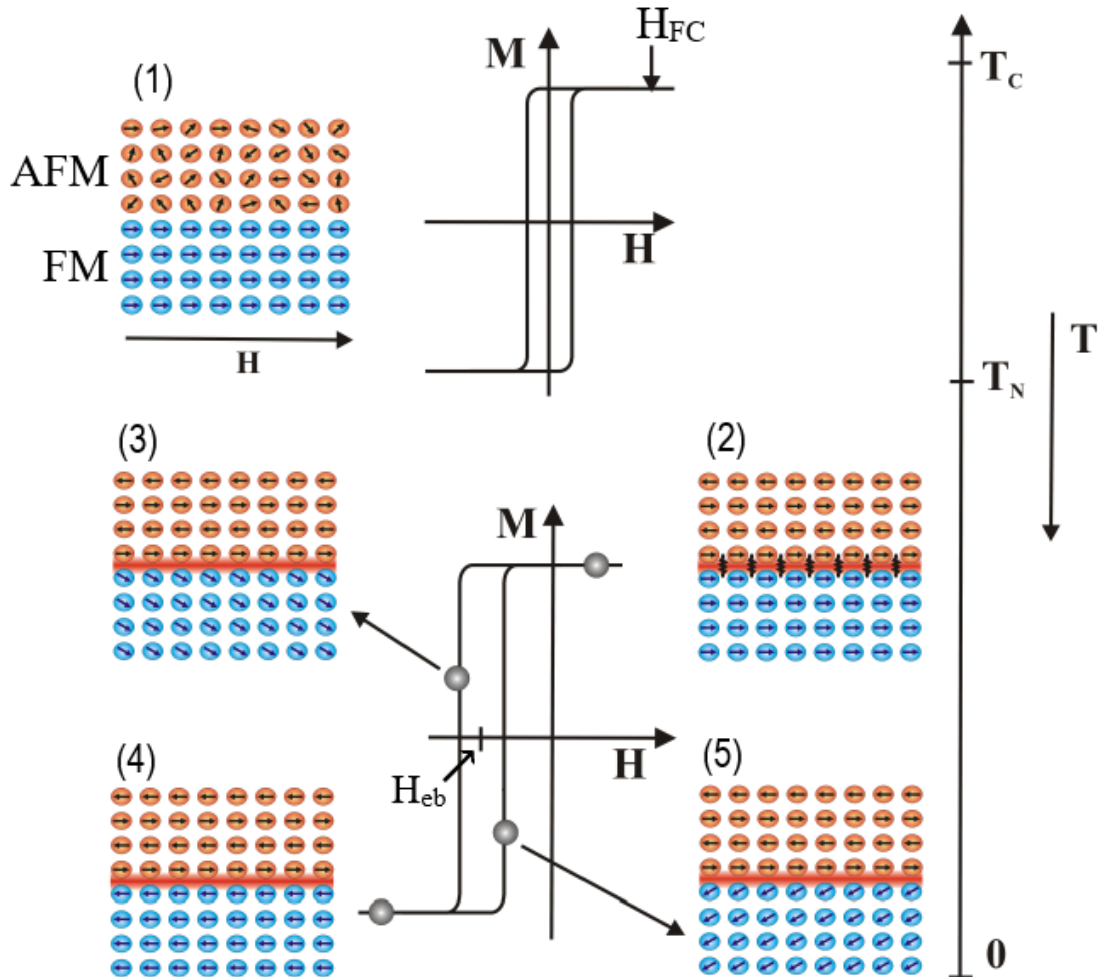
O modelo intuitivo, discutido na revisão de Nogués e Schuller, considera uma configuração microscópica de *spins* na interface FM/AFM de uma bicamada (NOGUÉS; SCHULLER, 1999). Esse modelo, baseado nos primeiros trabalhos sobre *exchange bias* (MEIKLEJOHN, 1962), permite uma compreensão inicial do fenômeno, sendo capaz de explicar a origem do deslocamento em campo da curva de magnetização.

Nesse modelo, esquematizado na figura 2.3, considera-se uma camada FM em contato com uma camada AFM que possui uma anisotropia magnetocristalina alta. Além disso, considera-se que a temperatura de Curie do material FM é maior que a temperatura de Néel do AFM.

Quando a bicamada encontra-se em uma temperatura tal que  $T_N < T < T_C$ , a aplicação de um campo magnético fará com que os *spins* do FM sigam sua orientação, enquanto que os *spins* do AFM, em seu estado paramagnético, permanecerão aleatoriamente distribuídos, como pode ser visto na figura 2.3 (1). Nessas condições, a curva de magnetização da amostra será simétrica em torno da origem, não sendo afetada pelo contato com a camada AFM (MANNA; YUSUF, 2014).



Figura 2.3 – Modelo intuitivo do *exchange bias* para uma bicamada FM/AFM. (1) Configuração de *spins* nas camadas FM e AFM quando  $T_N < T < T_C$ . (2) - (5) Configuração de *spins* nas camadas FM e AFM, em diferentes estágios da curva de magnetização, quando  $T < T_N$ .



Fonte: Adaptação de (RADU, 2005).

O deslocamento da curva de magnetização será observado quando a bicamada for resfriada até  $T < T_N$ , na presença de um campo magnético, o qual geralmente é denominado campo de resfriamento ( $H_{FC}$  - FC são as iniciais de *field cooling*). Esse procedimento irá saturar a camada FM no sentido de  $H_{FC}$ , levando, também, à orientação dos *spins* da camada AFM. A seguir, serão analisados os diferentes estágios da curva de magnetização dessa bicamada, após seu resfriamento em campo.

Quando  $H$  é aplicado no sentido positivo do eixo X (mesmo sentido que  $H_{FC}$  foi aplicado), tem-se a configuração que foi induzida durante o resfriamento em campo. Os *spins* do AFM mais próximos da interface se alinharam aos *spins* do FM. Obedecendo a ordem antiferromagnética, os demais planos de *spins* do AFM organizaram-se de forma que a magnetização total da camada fosse nula, figura 2.3 (2).

Observa-se, na figura 2.3 (3), que quando  $H$  é invertido os *spins* do FM começam a girar e, devido a existência de uma anisotropia suficientemente alta na camada AFM, seus *spins* não se realinham. A interação FM/AFM tentará manter o alinhamento original na interface, através de um torque microscópico exercido pelos *spins* do AFM nos do FM. Assim, a camada AFM tem uma única configuração estável, pois sua anisotropia é unidirecional. Para que toda a camada FM seja invertida, quando existe acoplamento com uma camada AFM, faz-se necessário um campo magnético mais intenso, já que é preciso superar o torque microscópico gerado na interface, figura 2.3 (4).

Ao inverter  $H$  novamente, um valor menos intenso fará com que os *spins* da camada FM reorientem-se. Isso acontece, pois o torque, exercido pelos *spins* da interface AFM, agora atua na mesma direção de  $H$ , figura 2.3 (5).

A consequência do torque microscópico produzido na interface FM/AFM, que de acordo com o sentido de  $H$  dificulta ou ajuda na inversão, será o deslocamento em campo da curva de magnetização, conhecido como campo de *exchange bias*. É importante mencionar que se a anisotropia da camada AFM for pequena, não existirá deslocamento em campo e aparecerá um aumento na coercividade (NOGUÉS; SCHULLER, 1999).

Esse modelo fenomenológico fornece uma boa explicação qualitativa para o EB. Contudo, falha na análise quantitativa, não conseguindo prever a magnitude do campo de *exchange bias*, por exemplo. Além disso, o papel de parâmetros tais como rugosidade e domínios magnéticos não é levado em conta. Na seção 2.5, serão abordados modelos que conseguiram e conseguem descrever melhor sistemas com EB.

## 2.4 PRINCIPAIS CARACTERÍSTICAS DO *EXCHANGE BIAS*

### 2.4.1 Campo de *exchange bias* e campo coercivo

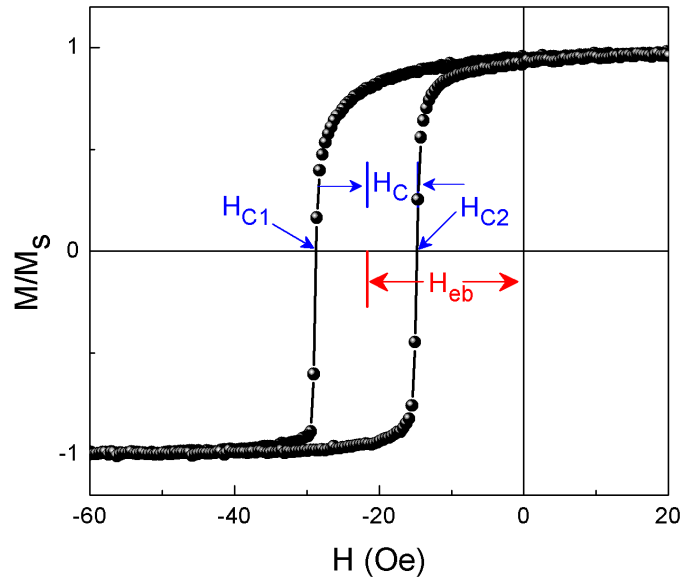
A figura 2.4 exemplifica o comportamento que se espera, de uma maneira geral, de uma curva de magnetização de um sistema com EB. O deslocamento em campo magnético é conhecido como campo de *exchange bias* ( $H_{eb}$ ) e, devido a esse deslocamento, existem dois valores diferentes em módulo para a coercividade ( $H_{C1}$  e  $H_{C2}$ ).

Conforme indicado na figura 2.4, o campo de *exchange bias* e o campo coercivo ( $H_C$ ) podem ser calculados, respectivamente, por

$$H_{eb} = \frac{H_{C1} + H_{C2}}{2} \quad (2.4)$$

$$H_C = -\frac{H_{C1} - H_{C2}}{2}. \quad (2.5)$$

Figura 2.4 – Curva de magnetização característica de um sistema com *exchange bias*. A localização de  $H_{eb}$  e  $H_C$  é evidenciada.



Fonte: Autora.

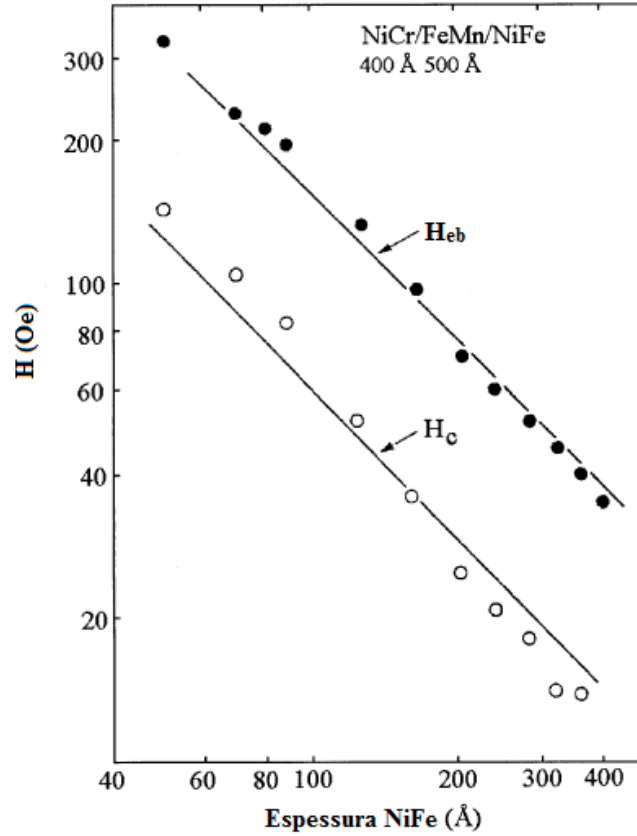
#### 2.4.2 Dependência de $H_{eb}$ e $H_c$ com a espessura da camada FM

Muitos resultados experimentais têm mostrado que em bicamadas FM/AFM o  $H_{eb}$  e o  $H_c$  são inversamente proporcionais à espessura da camada FM ( $t_{FM}$ ), o que indica que o *exchange bias* é um efeito de interface (MAURI et al., 1987a; POLISETTY; SAHOO; BINEK, 2007). Matematicamente,

$$H_{eb} \propto \frac{1}{t_{FM}}. \quad (2.6)$$

Esse comportamento pode ser observado na figura 2.5, na qual se apresenta a dependência de  $H_{eb}$  e de  $H_c$  com a espessura da camada ferromagnética para bicamadas de FeNi/FeMn(500 Å).

Figura 2.5 – Dependência de  $H_{eb}$  (símbolos cheios) e de  $H_c$  (símbolos vazados) com a espessura da camada FM para bicamadas de  $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}/\text{FeMn}$ . As bicamadas têm uma camada AFM com espessura de 500 Å.



Fonte: Adaptação de (MAURI et al., 1987a).

A relação 2.6 é válida para uma camada FM espessa, da ordem de dezenas de nm. Essa espessura, no entanto, deve ser menor que a largura da parede de domínio FM que nela se forma. Uma camada muito fina (poucos nm) pode se tornar descontínua, nesse caso a relação deixa de ser válida. A espessura em que isso ocorre varia de sistema para sistema e depende da estrutura em estudo, assim como das condições de crescimento (NOGUÉS; SCHULLER, 1999).

No caso apresentado na figura 2.5, a dependência de  $H_C$  com a espessura FM é semelhante a de  $H_{eb}$ . Porém, em alguns sistemas FM/AFM a relação entre  $H_C$  e  $t_{FM}$  é mais complicada,

$$H_C \propto \frac{1}{(t_{FM})^b}, \quad (2.7)$$

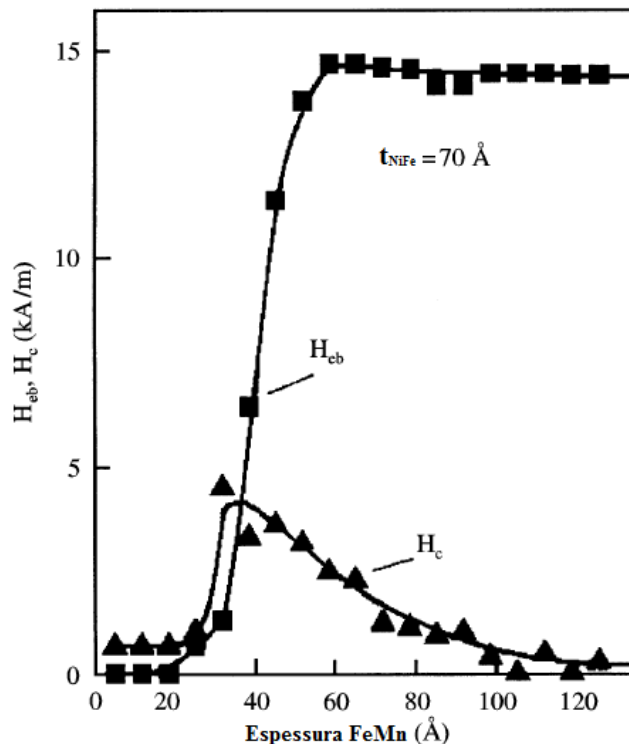
e pode envolver um expoente ( $b$ ) que, conforme verificado experimentalmente, admite valores entre 1 e 1,5 (ZHANG et al., 1999).

### 2.4.3 Dependência de $H_{eb}$ e $H_c$ com a espessura da camada AFM

A dependência de  $H_{eb}$  e de  $H_c$  com a espessura da camada AFM ( $t_{AFM}$ ), em uma bicamada FM/AFM, necessita de uma análise mais elaborada. Segundo Nogués, a tendência geral é que para camadas antiferromagnéticas espessas, acima de 20 nm,  $H_{eb}$  seja independente de  $t_{AFM}$ . Conforme a espessura da camada AFM é reduzida, espera-se que  $H_{eb}$  decresça abruptamente, normalmente sendo acompanhado por um pico no valor do campo coercivo. Por fim, existirá uma espessura crítica da camada AFM (poucos nm), abaixo da qual o *exchange bias* desaparecerá. A espessura AFM exata em que cada um dos estágios ocorre dependerá das particularidades do sistema em estudo, sua microestrutura, bem como da temperatura em que se realiza a medida (NOGUÉS; SCHULLER, 1999).

Na figura 2.6, exemplifica-se essa tendência geral com um resultado para bicamadas de FeNi(70 Å)/FeMn.

Figura 2.6 – Dependência de  $H_{eb}$  (quadrados) e de  $H_c$  (triângulos) com a espessura da camada AFM para bicamadas de Fe<sub>80</sub>Ni<sub>20</sub>/FeMn. As bicamadas têm uma camada FM com espessura de 70 Å.



Fonte: Adaptação de (JUNGBLUT et al., 1994).

No trabalho de Nogués, afirma-se que o decréscimo de  $H_{eb}$  para camadas AFM finas pode estar relacionado aos seguintes fatores:

- Uma possível mudança da temperatura de Néel para camadas AFM finas.

- A condição para observação do EB dada por  $K_{AFM}t_{AFM} \geq J_{INT}$ , onde  $J_{INT}$  é a constante de acoplamento na interface e  $K_{AFM}$  é a constante de anisotropia AFM, pode ser violada com a redução de  $t_{AFM}$  (MEIKLEJOHN, 1962). Nesse caso, os *spins* do AFM seguem o movimento da camada FM e não observa-se um deslocamento na curva de magnetização, apenas um aumento na coercividade da amostra. Além disso, a dependência de  $K_{AFM}$  com a espessura da camada AFM pode influenciar no valor de  $H_{eb}$ .
- Se a espessura da camada AFM torna-se comparável ao tamanho de suas paredes de domínios o  $H_{eb}$  pode ser afetado.
- O decréscimo da espessura da camada AFM pode alterar o tamanho de grão, o qual influencia na espessura crítica AFM em que o EB desaparece.

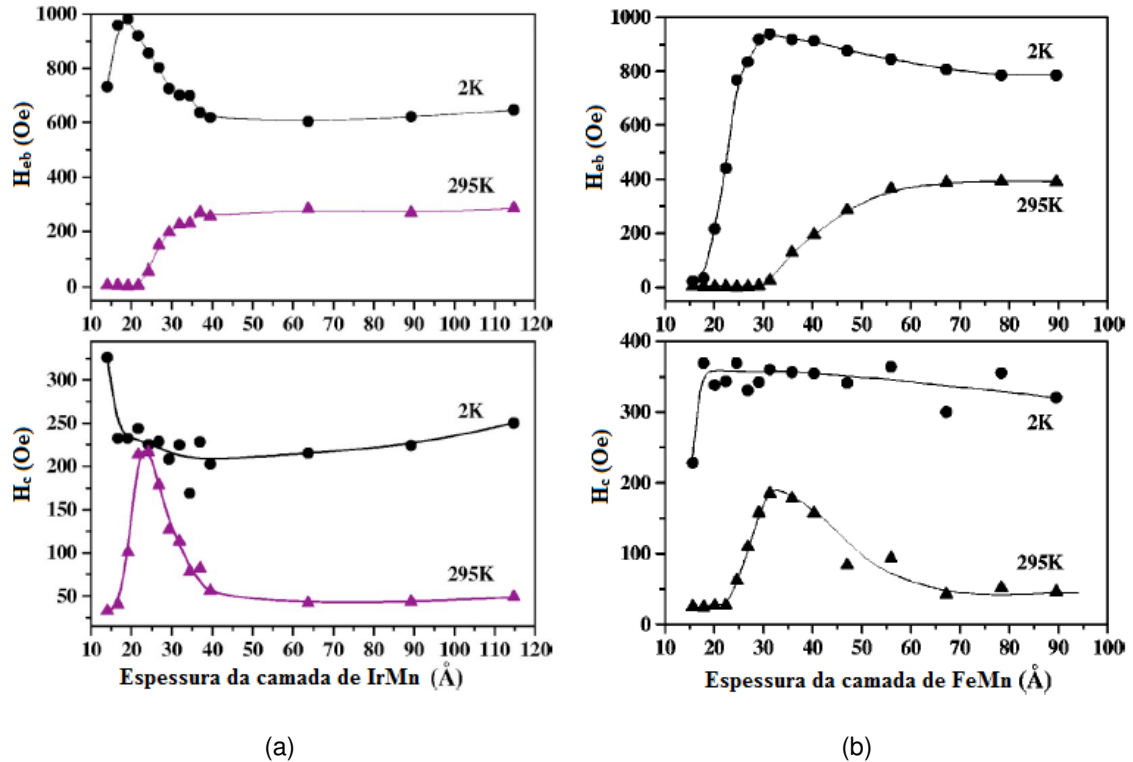
Nas figuras 2.7 (a) e (b), extraídas da referência (ALI; MARROWS; HICKEY, 2003), apresentam-se os comportamentos de  $H_{eb}$  e de  $H_c$  em função das espessuras das camadas de IrMn e de FeMn, respectivamente, ambas acopladas a uma camada de cobalto. As constantes de anisotropia AFM do IrMn e do FeMn são  $1,8 \times 10^5 \text{ J/m}^3$  e  $1,3 \times 10^4 \text{ J/m}^3$ , respectivamente. As medidas exibidas foram feitas em duas temperaturas distintas, 2 K e 295 K.

Analisando as medidas feitas a 295 K, pode-se ver que no sistema com IrMn o EB surge a partir de uma camada AFM com  $\approx 20 \text{ \AA}$  de espessura, acompanhado por um pico no valor do campo coercivo. O campo de *exchange bias* torna-se constante quando  $t_{IrMn} \approx 40 \text{ \AA}$ . Já para um sistema com FeMn, o EB aparece a partir de uma camada com  $\approx 30 \text{ \AA}$  de espessura, também acompanhado por um pico em  $H_c$ . Nesse caso,  $H_{eb}$  atinge o valor de saturação quando  $t_{FeMn} \approx 80 \text{ \AA}$ . A discrepância nas espessuras AFM em que ocorre o aparecimento do EB deve-se aos diferentes valores de  $K_{AFM}$  para esses materiais, uma vez que o IrMn tem uma anisotropia AFM maior.

Da mesma forma, para as medidas feitas a 2 K o EB passa a se fazer presente em diferentes valores de espessuras para o IrMn ( $\approx 10 \text{ \AA}$ ) e o FeMn ( $\approx 15 \text{ \AA}$ ). Em ambos os sistemas, a magnitude de  $H_{eb}$  aumenta para todas as espessuras AFM, quando comparado às medidas realizadas a temperatura ambiente. Por exemplo, a 295 K não existe EB quando a espessura da camada de IrMn é de  $15 \text{ \AA}$ , porém a 2 K o campo de *exchange bias* passa a ser da ordem de 1000 Oe.

Com os resultados obtidos nesse trabalho, Ali e colaboradores mostraram que o EB apresenta-se já em uma bicamada com a camada AFM muito fina ( $\approx 10 \text{ \AA}$ ), a qual não poderia acomodar paredes de domínios planares ( $\approx 200 \text{ \AA}$ ), como as sugeridas no modelo de Mauri (será discutido na seção 2.5). No entanto, foram consideradas paredes de domínios perpendiculares à interface para explicar alguns dos resultados experimentais (ALI; MARROWS; HICKEY, 2003).

Figura 2.7 – Dependência de  $H_{eb}$  e de  $H_c$  com a espessura da camada AFM de (a) IrMn e (b) FeMn. Os círculos representam medidas feitas numa temperatura de 2 K, já os triângulos medidas feitas a 295 K.



Fonte: Adaptação de (ALI; MARROWS; HICKEY, 2003).

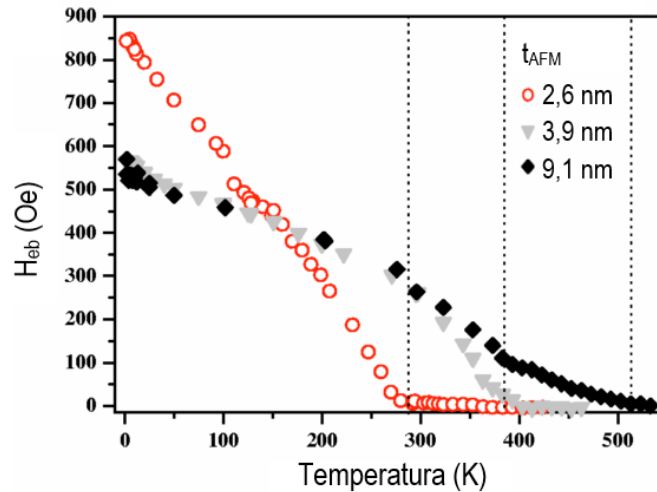
#### 2.4.4 Temperatura de bloqueio

A temperatura de bloqueio ( $T_B$ ) é definida como sendo a temperatura em que  $H_{eb}$  converge ao zero (O'GRADY; FERNANDEZ-OUTON; VALLEJO-FERNANDEZ, 2010). Para alguns sistemas,  $T_B \approx T_N$ , porém, em outros, observa-se que  $T_B < T_N$ . Tratando-se do FeMn, material AFM utilizado nesse trabalho, a temperatura de Néel é de aproximadamente 220 °C e a temperatura de bloqueio varia entre 110 e 210 °C (NOGUÉS; SCHULLER, 1999).

A temperatura de bloqueio de um sistema com EB pode estar relacionada ao tamanho dos grãos na interface FM/AFM, à anisotropia AFM e à espessura da camada AFM - sendo que esta tem maior influência quando se tratam de espessuras pequenas. Acima de uma dada espessura, que varia conforme o material AFM em estudo, o valor de  $T_B$  tende a estabilizar. Na figura 2.8, mostra-se a evolução do campo de *exchange bias* com a temperatura para amostras de Co/IrMn, sendo possível ver que diferentes espessuras da camada de IrMn resultam em valores distintos para a temperatura de bloqueio. Esses

resultados foram extraídos, a título de exemplo, da referência (ALI et al., 2003).

Figura 2.8 – Campo de *exchange bias* em função da temperatura para amostras de Co/IrMn com diferentes espessuras da camada de IrMn. As linhas verticais pontilhadas indicam a temperatura de bloqueio para cada uma das amostras.



Fonte: Adaptação de (ALI et al., 2003).

#### 2.4.5 Efeito de treinamento

A realização de consecutivos ciclos de histerese magnética em uma amostra em que se induziu EB pode resultar numa redução de  $H_{eb}$  e  $H_c$ . Essa é uma manifestação do efeito de treinamento (*training effect*), o qual foi observado primeiramente por Paccard, em 1966, ao estudar o acoplamento FM/AFM em sistemas compostos por Co/CoO, NiFe/NiFeMn e NiFe/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (PACCARD et al., 1966).

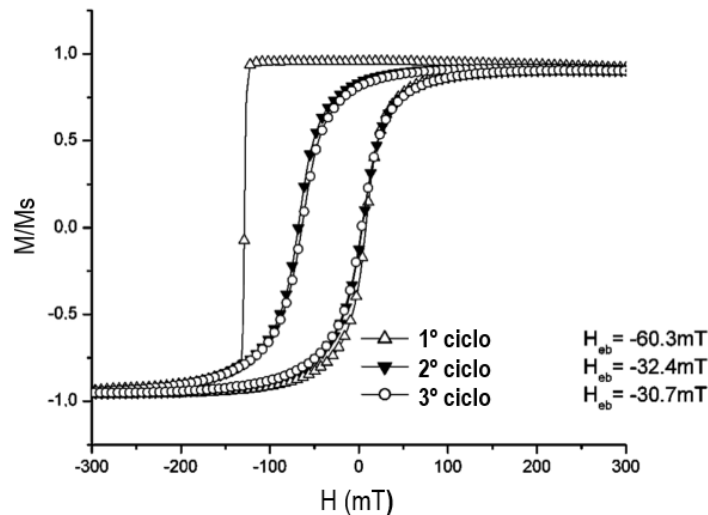
Embora sua origem ainda seja motivo de discussões, na maioria dos trabalhos supõe-se que o efeito de treinamento em amostras FM/AFM deve-se à mudanças irreversíveis, depois do primeiro ciclo de histerese magnética, na microestrutura da camada antiferromagnética.

A figura 2.9 mostra os três primeiros ciclos de histerese magnética, medidos na temperatura 5 K através de um VSM, para uma bicamada de CoO(2 nm)/Co(20 nm). Comparando os dois primeiros ciclos, percebe-se uma alteração na forma da curva de magnetização, bem como no valor para  $H_{eb}$ . Os pesquisadores que obtiveram tais resultados (BREMS et al., 2005) afirmam que a assimetria no primeiro ciclo reflete mecanismos de reversão da magnetização (da camada FM) diferentes. A primeira reversão, em campos negativos, é governada por nucleação e propagação de paredes de domínio, o que leva a



uma mudança abrupta na magnetização. No entanto, nas reversões subsequentes, predomina a rotação da magnetização, por isso o formato mais arredondado e a simetria do ciclo de histerese. Nesse caso, interpretou-se o efeito de treinamento como consequência da fragmentação da camada AFM em domínios magnéticos durante a primeira reversão (WELP et al., 2003).

Figura 2.9 – Efeito de treinamento em uma bicamada de CoO(2 nm)/Co(20 nm). O campo magnético aplicado é dado em Tesla (1 mT = 10 Oe).



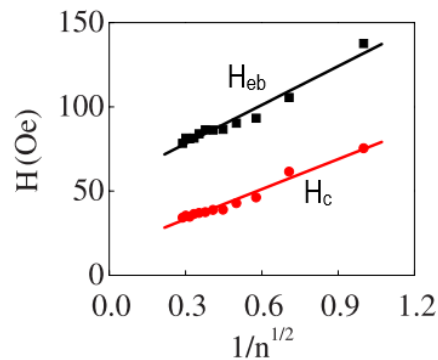
Fonte: Adaptação de (BREMS et al., 2005).

Hoffmann, através de simulações numéricas em um modelo que utiliza rotação coerente, sugeriu que a simetria da anisotropia na camada AFM é a chave para compreender o efeito de treinamento em sistemas FM/AFM com EB (HOFFMANN, 2004). Segundo ele, a existência de uma anisotropia biaxial na camada AFM pode levar seus *spins* a se estabilizarem inicialmente em uma configuração não colinear (que seja mais favorável energeticamente). Entretanto, após a primeira reversão da magnetização da camada FM, irá ocorrer uma relaxação dos *spins* da camada AFM, levando-os a organizarem-se de forma colinear. No segundo ciclo de histerese, percebe-se que houve uma mudança na organização da camada AFM pela redução da intensidade dos campos de *exchange bias* e coercivo. A partir do terceiro ciclo não se observam modificações consideráveis nas curvas. Por fim, somente a aplicação de um campo magnético mais intenso que o campo de *spin-flop* do AFM conseguirá recuperar a configuração original (anterior ao primeiro ciclo de histerese).

O efeito de treinamento nos primeiros ciclos de histerese, da forma como explicado por Hoffmann, não está relacionado à temperatura. Dessa forma, refere-se ao mesmo como efeito de treinamento atômico, sendo que é, geralmente, mais acentuado quando trabalha-se com amostras que têm camadas antiferromagnéticas finas (HOFFMANN, 2004; HUNG et al., 2000).

Os resultados na figura 2.10 são de uma bicamada de NiFe(3 nm)/FeMn(3,2 nm) que apresenta efeito de treinamento (GAO et al., 2009). Os valores de  $H_{eb}$  e  $H_c$  diminuem com o número do ciclo de histerese magnética ( $n$ ) e é possível perceber que a maior variação ocorre do primeiro ( $n = 1$ ) para o segundo ( $n = 2$ ), o que pode ser explicado pelo modelo de Hoffmann.

Figura 2.10 –  $H_{eb}$  e  $H_c$  versus o número do ciclo de histerese magnética ( $n$ ) para uma bicamada de NiFe(3 nm)/FeMn(3,2 nm) que apresenta efeito de treinamento.



Fonte: (GAO et al., 2009).

A redução de  $H_{eb}$  e  $H_c$  para  $n > 2$  pode ser entendida como resultado de um outro tipo de efeito de treinamento. Admite-se um processo termicamente ativado, o qual leva a um gradual desprendimento (*depinning*) dos *spins* AFM não compensados e uma redução na anisotropia unidirecional (CHAN et al., 2008). A relação entre  $H_{eb}$  e o número do ciclo de histerese magnética é dada por

$$H_{eb} \propto \frac{1}{\sqrt{n}}. \quad (2.8)$$

A contribuição desse tipo de efeito de treinamento é menor, em comparação ao atérmico. Ademais, ele tem uma fraca dependência na espessura da camada AFM (CHAN et al., 2008).

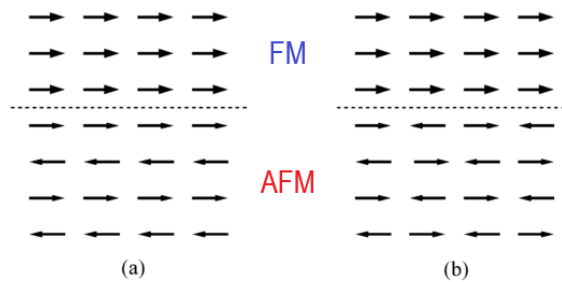
Ressalta-se que nem todas as amostras com *exchange bias* apresentarão efeito de treinamento. Dessa forma, é importante certificar-se da existência - ou não - desse efeito, avaliando o comportamento de  $H_{eb}$  e  $H_c$  nos dez primeiros ciclos de histerese magnética.

#### 2.4.6 Configuração dos *spins* interfaciais

A configuração microscópica na interface FM/AFM da bicamada considerada no modelo intuitivo, figura 2.3, é uma configuração colinear, o que significa que os *spins* interfaciais nas camadas FM e AFM alinham-se na mesma direção. Conforme ilustrado nas figuras 2.11 (a) e (b), existem dois tipos de configurações interfaciais colineares: não-compensada

(a magnetização líquida da camada AFM na interface não é nula) e compensada (a magnetização líquida da camada AFM na interface é nula).

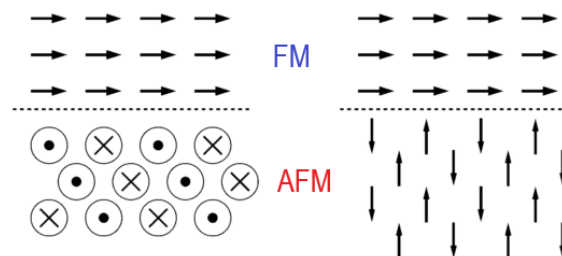
Figura 2.11 – Configurações interfaciais colineares. (a) Interface não-compensada e (b) interface compensada.



Fonte: Adaptação de (KIWI, 2001).

É possível, ainda, que os *spins* interfaciais se organizem de forma não-colinear. Nesse caso, o ângulo entre as direções das magnetizações resultantes na interface das camadas FM e AFM pode estar entre  $0^\circ$  e  $180^\circ$ . A figura 2.12 ilustra duas situações de não-colinearidade, para o caso de alinhamentos perpendiculares.

Figura 2.12 – Configurações interfaciais não-colineares formando um ângulo de  $90^\circ$ .



Fonte: Adaptação de (KIWI, 2001).

Faz-se necessário investigar a configuração de *spins* na interface FM/AFM, pois o *exchange bias* trata-se de um fenômeno interfacial. A partir do modelo intuitivo, descrito anteriormente, é difícil entender que o EB também manifeste-se em sistemas com configurações interfaciais não-colineares ou colineares compensadas. Contudo, tem-se verificado o aparecimento do EB em diversos sistemas com tais arranjos interfaciais (KIWI et al., 1999; NOGUÉS; SCHULLER, 1999; SUESS et al., 2003).

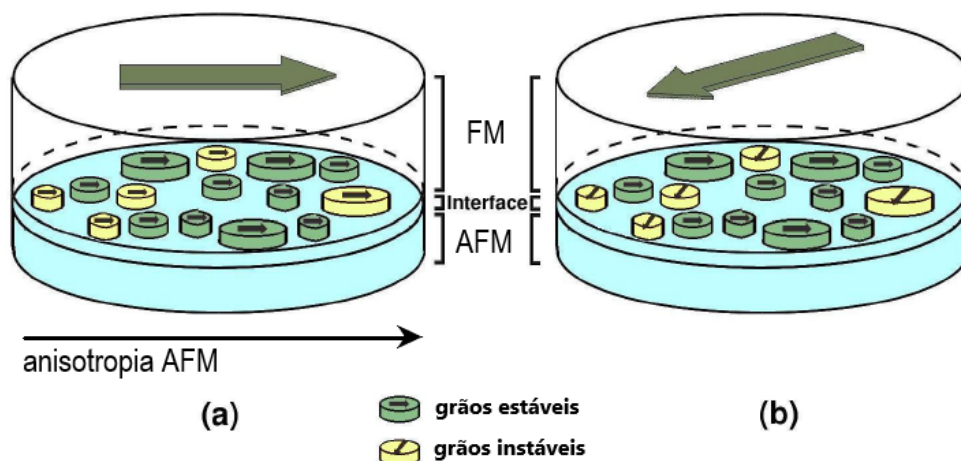
Alguns modelos têm sugerido outras possibilidades, ainda mais complexas, de configurações de *spins* na interface FM/AFM. Por exemplo, pode ocorrer a formação de paredes de domínios nos materiais FM e AFM (ALI et al., 2003; MAURI et al., 1987b). Para materiais policristalinos, tem-se considerado uma interface que pode ser dividida em, pelo

menos, dois diferentes tipos de grãos, ou *clusters* de grãos, que se comportam individualmente como monodomínios (BERKOWITZ et al., 2010; FUJIWARA et al., 1999; HARRES; GESHEV, 2012; RIGUE et al., 2015).

A divisão desses grãos, ou *clusters* de grãos, é feita de acordo com a estabilidade que eles apresentam, em relação à direção de anisotropia da camada AFM, quando a orientação da magnetização da camada FM é alterada.

Na figura 2.13, ilustra-se uma interface FM/AFM dividida em grãos interfaciais estáveis e instáveis (FUJIWARA et al., 1999; RIGUE et al., 2015). Na parte (a), demonstra-se o comportamento dos *spins* interfaciais não-compensados da camada AFM para a situação em que um campo magnético externo é aplicado na direção de anisotropia AFM. Nessa situação, os momentos magnéticos líquidos de ambas as camadas apontam na mesma direção. Quando a magnetização da camada FM gira no plano da amostra, devido à inversão do campo magnético externo, os grãos interfaciais estáveis irão manter-se alinhados à direção de anisotropia da camada AFM. Os grãos instáveis, entretanto, vão girar irreversivelmente e com uma defasagem em relação ao eixo de anisotropia da camada FM, como pode ser visto na figura 2.13 (b).

Figura 2.13 – Interface FM/AFM dividida em grãos estáveis e instáveis. (a) Todos os grãos interfaciais estão alinhados com o eixo de anisotropia da camada AFM. (b) A mudança de orientação da magnetização da camada FM (representada pela flecha verde) leva os grãos instáveis a se reorientarem.



Fonte: Adaptação de (RIGUE et al., 2015).

Segundo Fujiwara, os grãos interfaciais estáveis contribuem para o surgimento da anisotropia unidirecional e, conseqüentemente, do *exchange bias*. Contudo, aos grãos instáveis, deve-se o aumento da coercividade quando existe um acoplamento FM/AFM (FUJIWARA et al., 1999).

### 2.4.7 Rugosidade interfacial

A rugosidade interfacial também exerce influência no fenômeno *exchange bias* (NOGUÉS; SCHULLER, 1999). Na literatura, encontram-se trabalhos descrevendo resultados experimentais, para filmes finos texturizados, em que a magnitude de  $H_{eb}$  aumenta (FLEISCHMANN et al., 2010) e diminui (PARK; MIN; SHIN, 1996) com o aumento da rugosidade interfacial.

A refletividade de raios-X (XRR) é frequentemente utilizada para avaliar a rugosidade em interfaces FM/AFM, uma vez que esse parâmetro relaciona-se à atenuação das franjas de Kiessig e à mudança no decaimento do espectro, podendo ser obtido por meio de um ajuste sob os pontos experimentais, como na referência (FLEISCHMANN et al., 2010).

### 2.4.8 Textura cristalográfica e tamanho de grão AFM

A textura com que a camada AFM cresce é determinante para o aparecimento, ou não, do EB em sistemas FM/AFM, visto que define como os domínios localizados na interface se organizarão para interagirem com a camada FM. Para os materiais IrMn e FeMn, por exemplo, o crescimento com textura cristalográfica (111) é fundamental para a observação do *exchange bias*, conforme discutido nas referências (CASTRO et al., 2013; CHEN, Y. T., 2008; TONG et al., 2000).

O tamanho de grão AFM é um parâmetro de difícil compreensão quando se refere à amostras com EB. Alguns trabalhos relatam que  $H_{eb}$  aumenta com o tamanho de grão, outros afirmam o contrário. Tais resultados devem-se ao fato de que esse parâmetro não varia de forma independente, podendo afetar a rugosidade, a textura cristalográfica e a anisotropia da camada AFM, por exemplo (NOGUÉS; SCHULLER, 1999).

## 2.5 MODELOS PARA A DESCRIÇÃO DO *EXCHANGE BIAS*

O desenvolvimento de modelos teóricos para o EB busca descrever quantitativamente os resultados experimentais, o que tem sido uma tarefa árdua. Vários modelos foram apresentados e melhorados desde a década de 50, muitos dos quais obtiveram resultados satisfatórios. Entretanto, nenhum modelo foi capaz de explicar o fenômeno em sua totalidade. Dentre as dificuldades para desenvolver modelos para o EB destacam-se duas:

1. A variedade de sistemas que podem apresentar EB. Desde a sua descoberta, o fenômeno tem sido observado em diferentes tipos de amostras que possuem interfaces

FM/AFM: pequenas partículas (MEIKLEJOHN; BEAN, 1957), materiais inhomogêneos (MARCH; LAMBIN; HERMAN, 1984), filmes FM sobre monocristais AFM (MORAN; GALLEGO; SCHULLER, 1995) e filmes finos (JUNGBLUT et al., 1994; SHEN; KIEF, 1996; SILVA et al., 2018).

2. O fato de o EB ser um efeito interfacial. A caracterização experimental de interfaces, na maioria das vezes, é difícil de ser realizada. Com isso, as informações sobre alguns parâmetros interfaciais podem não ser bem conhecidas.

A seguir, faz-se uma breve revisão a respeito de alguns modelos para o EB dando-se destaque aos que tiveram grande importância para o avanço na compreensão desse fenômeno e que servem de base para modelos atuais. A descrição de outros modelos pode ser encontrada em artigos de revisão como (KIWI, 2001; NOGUÉS; SCHULLER, 1999; NOGUÉS et al., 2005).

O primeiro modelo desenvolvido para explicar o EB foi proposto por Meiklejohn e Bean, pesquisadores que o descobriram. Eles propuseram um modelo simples, com o intuito de quantificar o deslocamento da curva de magnetização em sistemas magnéticos FM/AFM (MEIKLEJOHN, 1962). Para tal, foram consideradas as seguintes premissas:

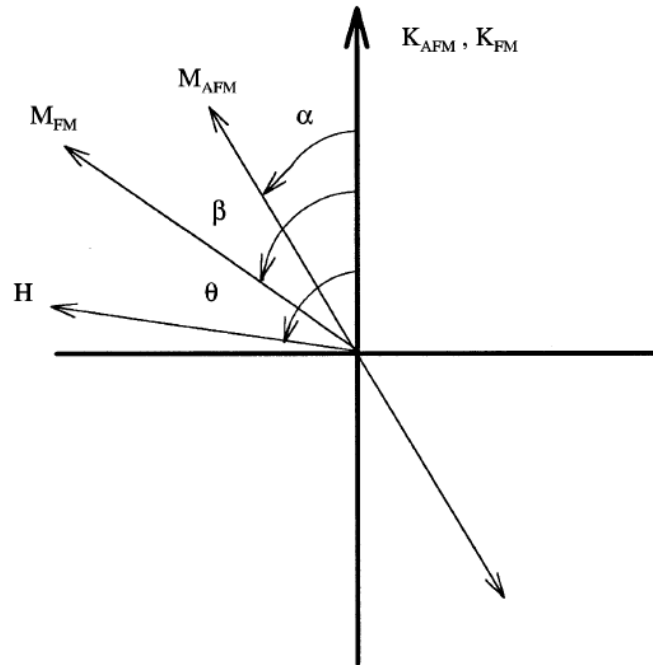
- A camada FM é um monodomínio e rotaciona de forma rígida.
- A camada AFM, possuindo uma anisotropia uniaxial no plano, também é um monodomínio e a orientação de seus *spins* permanece inalterada durante a rotação dos *spins* da camada FM.
- A interface FM/AFM é atômica e sem imperfeições, sendo que os *spins* interfaciais da camada AFM estão na configuração não-compensada (ver figura 2.11 (a)).
- A interação de troca na interface FM/AFM é caracterizada por  $J_{INT}$ , a constante de acoplamento na interface.

Nesse modelo, considerando a rotação coerente da magnetização (STONER; WOHLFARTH, 1947), a energia por unidade de área para um sistema com EB pode ser escrita como

$$F = -HM_{FM}t_{FM} \cos(\theta - \beta) + K_{FM}t_{FM} \sin^2(\beta) + K_{AFM}t_{AFM} \sin^2(\alpha) - J_{INT} \cos(\beta - \alpha). \quad (2.9)$$

A figura 2.14 mostra a geometria dos vetores envolvidos no modelo de Meiklejohn e Bean para um sistema FM/AFM. O ângulo entre a magnetização da camada FM ( $M_{FM}$ ) e o eixo de anisotropia FM é  $\beta$ , o ângulo entre a magnetização da camada AFM ( $M_{AFM}$ ) e o eixo de anisotropia AFM é  $\alpha$  e o ângulo entre os eixos das anisotropias FM e AFM (considerados colineares) e o campo aplicado é definido como  $\theta$ .

Figura 2.14 – Geometria dos vetores envolvidos no modelo de Meiklejohn e Bean para um sistema com EB. Assume-se que os eixos das anisotropias FM e AFM são colineares e que  $M_{AFM}$  tem duas direções opostas.



Fonte: (NOGUÉS; SCHULLER, 1999).

Os quatro termos da equação 2.9 correspondem à relação entre  $H$  e a camada FM, às anisotropias FM e AFM e ao acoplamento interfacial, respectivamente. Ou seja, os principais parâmetros envolvidos no *exchange bias*. Ao considerar que  $K_{FM}t_{FM} \ll K_{AFM}t_{AFM}$  e minimizar a energia com relação a  $\alpha$  e  $\beta$  obtém-se

$$H_{eb} = \frac{J_{INT}}{M_{FM}t_{FM}}. \quad (2.10)$$

O modelo de Meiklejohn e Bean fornece uma visão básica do EB. No entanto, o valor previsto para  $H_{eb}$  pode ser duas ordens de magnitude maior que o valor medido experimentalmente. Além disso, o modelo deixa a desejar uma vez que não considera, por exemplo, domínios nas camadas FM ou AFM, a rugosidade na interface e que os eixos de anisotropia FM e AFM podem não ser colineares. Um importante resultado, obtido na equação 2.10, é que  $H_{eb} \propto 1/t_{FM}$ , o que caracteriza o EB como um fenômeno interfacial e vem sendo comprovado nas investigações experimentais, conforme mostra a figura 2.5.

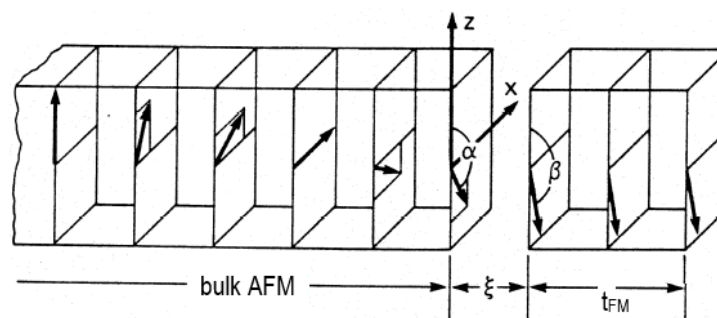
Néel foi o primeiro pesquisador a perceber que o acoplamento em sistemas FM/AFM envolve muitos aspectos, isto é, que não seria explicado por um modelo tão simples como o descrito anteriormente. Considerando uma interface AFM não-compensada, que poderia sofrer deformações irreversíveis, introduziu o conceito de parede de domínio planar. Esse modelo, apresentado em 1967, sugere que quando  $H$  é invertido, e a camada FM rotaci-

ona, forma-se uma parede de domínio na camada AFM. Segundo Néel, essa parede de domínio armazenaria uma parte da energia de acoplamento, logo o valor do  $H_{eb}$  seria reduzido. Apesar das considerações inovadoras, não foi possível encontrar valores para  $H_{eb}$  compatíveis com resultados experimentais. De qualquer forma, a teoria de Néel deve ser reconhecida, pois serviu de base para o desenvolvimento de novos modelos (GESHEV, 2000; KIWI et al., 1999; MAURI et al., 1987b).

No modelo de Fulcomer e Charap, proposto em 1972, considerou-se uma amostra composta por grãos AFM (com diferentes tamanhos e orientações) acoplados a uma camada ferromagnética. O modelo conseguiu prever a dependência dos campos de *exchange bias* e coercivo com a temperatura. Ademais, explicou efeitos de treinamento e um pico em  $H_c$ , perto da temperatura de bloqueio - ao considerar mudanças termicamente ativadas nas orientações de *spins* interfaciais não-compensados. Essa teoria serve de base para a maior parte dos modelos granulares baseados em flutuações térmicas (FULCOMER; CHARAP, 1972a, 1972b).

Mauri, em 1987, aperfeiçoou a ideia de parede de domínio planar na camada AFM. Conforme seu modelo, a formação de uma parede de domínio, causada pela reversão da magnetização da camada FM, acontece nas proximidades da interface FM/AFM, a qual considerou perfeitamente lisa e com espessura  $\xi$  (MAURI et al., 1987b).

Figura 2.15 – Representação da formação de uma parede de domínio na camada AFM de acordo com o modelo de Mauri.



Fonte: Adaptação de (MAURI et al., 1987b).

Como pode ser visto na figura 2.15, o modelo assume uma camada AFM de espessura infinita e com uma anisotropia uniaxial na direção  $z$ . Escolhe-se uma espessura para a camada FM que seja muito menor que a largura de uma parede de domínio. Dessa forma, a parede de domínio proposta por Mauri deverá evoluir dentro da camada AFM. Além disso, seu surgimento fará com que o valor da energia interfacial seja menor e, conseqüentemente, será imposto um limite superior para  $H_{eb}$ . Embora o modelo de Mauri forneça valores para  $H_{eb}$  mais próximos aos medidos experimentalmente, não são expli-



cados o aumento de  $H_c$ , o efeito de treinamento e o surgimento do EB em filmes onde a camada AFM é pouco espessa.

Malozemoff, também em 1987, introduziu a ideia de uma interface FM/AFM aleatoriamente rugosa. Nesse modelo, as imperfeições dão origem a campos magnéticos aleatórios que atuam sobre os *spins* interfaciais, levando ao surgimento de uma anisotropia unidirecional. Assim como Mauri, esse pesquisador obteve valores para  $H_{eb}$  compatíveis com resultados experimentais. Todavia, os pontos fracos dessa proposta são sua difícil aplicação no caso de materiais AFM policristalinos e sua incapacidade de prever o aparecimento do EB em interfaces perfeitamente compensadas (MALOZEMOFF, 1987).

O modelo de Stiles e McMichael apresenta a ideia de bicamadas FM/AFM policristalinas, onde grãos interfaciais da camada AFM dividem-se em estáveis e instáveis. Esses grãos, não interagentes entre si, acoplam-se à camada FM via interação de troca e *spin-flop*. Durante a reversão da magnetização da camada FM, os grãos AFM estáveis mantêm sua ordem magnética, sendo responsáveis pelo deslocamento em campo da curva de magnetização. Os grãos AFM instáveis, entretanto, sofrem mudanças irreversíveis e associam-se a efeitos histeréticos observados em medidas de torque e ressonância ferromagnética (STILES; MCMICHAEL, 1999).

Por fim, descreve-se a contribuição de Harres e Geshev, publicada em 2012. Eles introduziram um modelo para descrever o comportamento magnético de amostras FM/AFM policristalinas com interfaces granulares. A proposta considera que, para um acoplamento de troca interfacial forte, a camada AFM quebra a camada FM adjacente em pequenos domínios. Além do mais, considera-se que na interface existem grãos com *spins* não-compensados interagindo com a magnetização FM. Dependendo da anisotropia AFM e do acoplamento magnético com a camada FM adjacente, esses grãos são classificados como instáveis (rodáveis - responsáveis por um aumento na coercividade) ou estáveis (responsáveis pelo EB). O diferencial desse modelo é o fato de a anisotropia rodável mudar com a variação de um campo magnético externo, resultando numa coercividade diferente de zero ao longo do eixo duro da amostra. Essa característica geralmente é observada experimentalmente, porém, na maioria das vezes, é ignorada nos modelos (HARRES; GESHEV, 2012).

## 2.6 DINÂMICA DA MAGNETIZAÇÃO

Nessa seção, apresenta-se a ideia geral de um experimento de ressonância ferromagnética (FMR), bem como o método para se calcular a frequência ou o campo de ressonância ferromagnética. A título de exemplo, serão mostrados alguns resultados para propriedades magnéticas dinâmicas que são característicos de sistemas com *exchange bias*.

### 2.6.1 Ressonância ferromagnética

Para realizar um experimento envolvendo ressonância ferromagnética, a ideia básica é aplicar um campo magnético alternado, na faixa de micro-ondas, em uma amostra magnetizada por um campo estático  $H$ . A fim de perturbar os momentos magnéticos atômicos, responsáveis pela magnetização da amostra, e desviá-los da posição de equilíbrio, o campo alternado deve ser aplicado perpendicularmente a  $H$ .

A magnetização da amostra desenvolve um movimento de precessão em torno de  $H$  quando é desviada de sua posição de equilíbrio. Sendo assim, se a frequência ( $f$ ) de oscilação do campo alternado é igual à de precessão da magnetização, ocorre a maior absorção possível de radiação eletromagnética pela amostra e o sistema entra na chamada ressonância ferromagnética.

A ressonância ferromagnética foi observada pela primeira vez por Griffiths em 1946. Em seu experimento, um filme fino de ferro foi colocado na extremidade de uma cavidade ressonante de micro-ondas. Paralelamente à superfície do filme fez-se variar um campo magnético estático  $H$ . Mantendo a frequência de micro-ondas constante, Griffiths verificou que um máximo de absorção de energia ocorria para um determinado valor de  $H$  (GRIFFITHS, 1946). Em 1947, Kittel discutiu a teoria relacionada a esse fenômeno e demonstrou, matematicamente, a condição de ressonância ferromagnética (KITTEL, 1947). No ano seguinte, Kittel incluiu em sua teoria o efeito da forma da amostra ferromagnética e de sua orientação cristalina (KITTEL, 1948).

### 2.6.2 Equação de movimento da magnetização e formulação de Smit e Beljers

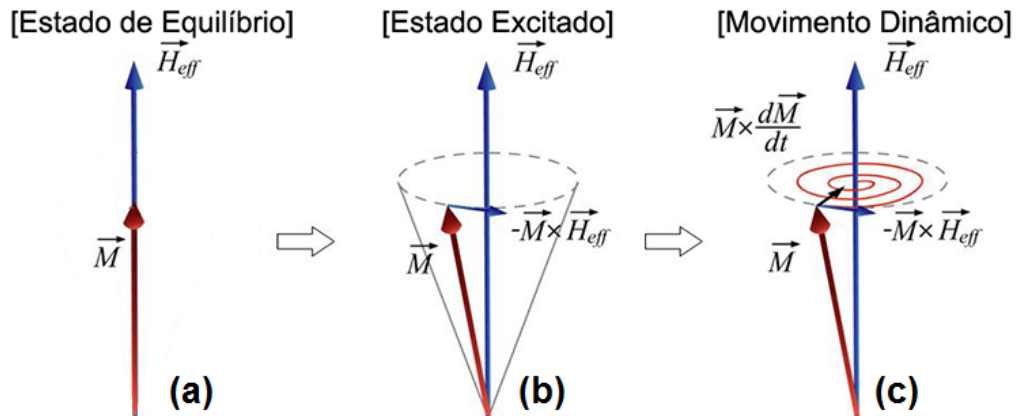
A dinâmica da magnetização para uma amostra magnética pode ser descrita pela equação de Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG),

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = -\gamma\vec{M} \times \vec{H}_{eff} + \frac{\alpha}{M} \left( \vec{M} \times \frac{d\vec{M}}{dt} \right), \quad (2.11)$$

onde  $\alpha > 0$  é o parâmetro de amortecimento de Gilbert e  $\gamma/2\pi = 2,8$  MHz/Oe é o fator giromagnético do elétron. O campo efetivo ( $\vec{H}_{eff}$ ) que aparece nessa equação deve-se às interações (anisotropias) existentes na amostra e ao campo magnético aplicado (GILBERT, 2004).

O papel de cada um dos termos da equação 2.11 na evolução espacial e temporal da magnetização está ilustrado na figura 2.16. O primeiro termo da equação 2.11 descreve o movimento de precessão da magnetização em torno do campo efetivo (figura 2.16 (b)). O segundo termo é associado a um torque de amortecimento, o qual descreve as perdas de energia durante o movimento de precessão da magnetização (figura 2.16 (c)).

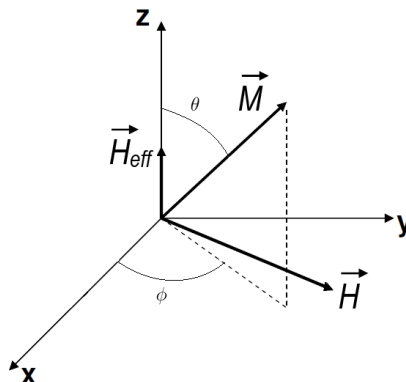
Figura 2.16 – (a) A magnetização e o campo efetivo de uma amostra encontram-se em um estado de equilíbrio. (b) Precessão da magnetização em torno do campo efetivo. (c) O termo de amortecimento descreve a trajetória na forma de espiral da magnetização.



Para obter uma expressão para a frequência de ressonância ferromagnética ( $f_{res}$ ), considera-se o primeiro termo da equação 2.11 e a formulação de Smit e Beljers. Essa fornece um método para o cálculo de  $f_{res}$  a partir da energia livre magnética  $F$ , ou seja, a partir da soma das interações existentes na amostra (SMIT; BELJERS, 1955).

Na formulação de Smit e Beljers, adota-se um sistema de coordenadas esféricas, em que o vetor magnetização tem uma orientação definida pelos ângulos polar ( $\theta$ ) e azimutal ( $\phi$ ), como na figura 2.17. O campo efetivo  $\vec{H}_{eff}$  pode ser determinado a partir do gradiente de  $F$  por unidade de volume da amostra magnética. Ademais, a orientação de equilíbrio de  $\vec{M}$ , definida pelos ângulos de equilíbrio  $\theta_0$  e  $\phi_0$ , pode ser encontrada por meio das equações que expressam a situação de mínima energia livre,  $F_\theta \equiv \frac{\partial F}{\partial \theta} = 0$  e  $F_\phi \equiv \frac{\partial F}{\partial \phi} = 0$ .

Figura 2.17 – Orientação de  $\vec{M}$  num sistema de coordenadas esféricas. Supõe-se que  $\vec{H}_{eff}$  e  $H$  estão em diferentes direções.



Seguindo o procedimento proposto por Smit e Beljers, detalhado na referência (VONSOVSKII, 1966), obtém-se a condição de ressonância ferromagnética

$$f_{res} = \left( \frac{\gamma}{M \sin \theta_0} \right) \sqrt{F_{\theta\theta} F_{\phi\phi} - F_{\theta\phi}^2}. \quad (2.12)$$

Como pode ser visto na equação anterior, a frequência de ressonância ferromagnética depende das segundas derivadas da energia livre magnética em relação aos ângulos de equilíbrio da magnetização ( $F_{\theta\theta}$ ,  $F_{\phi\phi}$  e  $F_{\theta\phi}$ ). Desse modo, para seu cálculo, necessita-se de uma expressão para  $F$  que considere todas as interações presentes na amostra, isto é, a energia Zeeman e as energias de anisotropias magnetostática, uniaxial e unidirecional, por exemplo. Uma discussão a respeito desses termos de energia pode ser encontrada na referência (KERN, 2014) ou em livros de Magnetismo como (COEY, 2009; CULLITY; GRAHAM, 2009).

Quando, na dedução da equação 2.12, considera-se o amortecimento da precessão da magnetização (segundo termo da equação 2.11), a  $f_{res}$  é pouco modificada. No entanto, pode-se obter uma expressão para a largura de linha da ressonância ferromagnética,

$$\Delta f = \frac{\alpha\gamma}{M} \left( \frac{F_{\phi\phi}}{\sin \theta_0} + F_{\theta\theta} \right). \quad (2.13)$$

Essa grandeza carrega informações sobre os mecanismos microscópicos de relaxação da magnetização. Porém, na equação 2.13, apenas o amortecimento de LLG está sendo considerado.

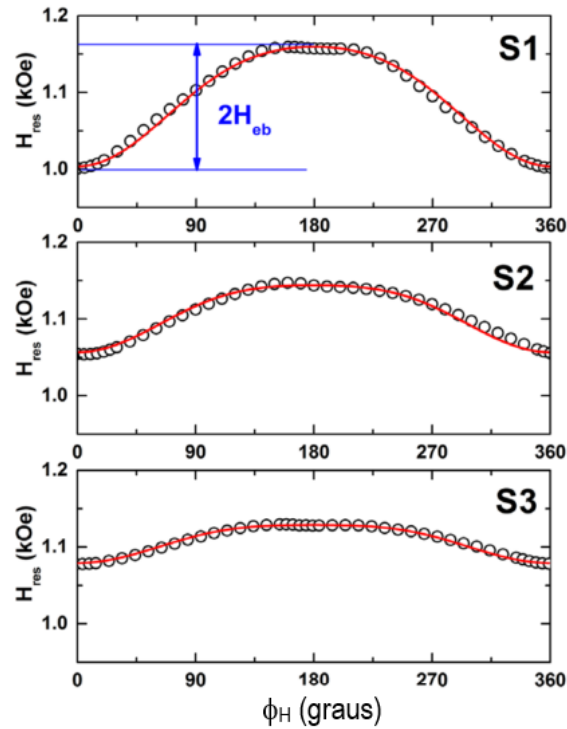
Num experimento de FMR, pode-se variar a frequência do campo alternado enquanto  $H$  é mantido fixo, ou fazer o contrário. No primeiro caso, a largura de linha corresponderá a uma faixa de frequências ( $\Delta f$ ). Quando se faz variar  $H$  e se fixa a frequência do campo alternado, a largura de linha corresponderá a uma faixa de campos ( $\Delta H$ ), e a equação 2.12 deve ser escrita em termos do campo de ressonância ferromagnética ( $H_{res}$ ).

### 2.6.3 Dinâmica da magnetização em sistemas com EB

Nessa subseção, apresentam-se resultados, extraídos da literatura, que foram obtidos por meio de experimentos de FMR em amostras com EB, objetivando que se tenha uma ideia do comportamento de tais sistemas ao serem caracterizados em altas frequências.

A figura 2.18 mostra a evolução angular do campo de ressonância para as amostras S1, S2 e S3, as quais são multicamadas de  $[\text{FeNi}(x)/\text{IrMn}(20 \text{ nm})]_m$  que possuem uma espessura total de 400 nm e diferem na espessura de FeNi ( $x = 20, 60$  e  $80$  nm, respectivamente) e no número de repetições da bicamada ( $m = 10, 5$  e  $4$ , respectivamente).

Figura 2.18 – Evolução angular de  $H_{res}$  para multicamadas de  $[\text{FeNi}(x)/\text{IrMn}(20 \text{ nm})]_m$  que diferem na espessura de FeNi e no número de repetições da bicamada. A medida foi realizada com uma frequência fixa em 9,87 GHz. As linhas contínuas (em vermelho) fazem referência ao modelo proposto pelos autores do trabalho.



Fonte: Adaptação de (KHANAL et al., 2014).

Nessas multicamadas, estudadas por Khanal e colaboradores, a anisotropia unidirecional é claramente refletida na "forma de sino" da evolução angular do campo de ressonância ferromagnética. Para uma amostra em que predomina a anisotropia uniaxial, a curva repete-se a cada  $180^\circ$ .

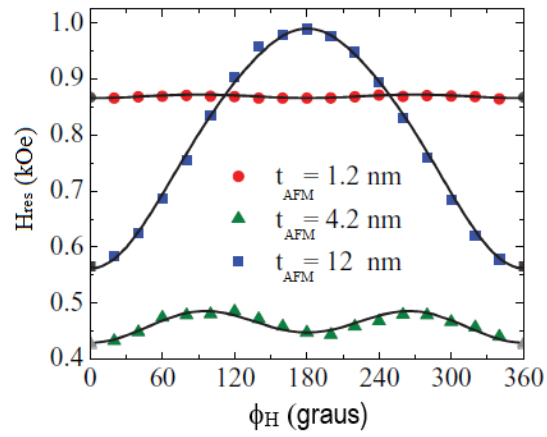
Dependendo do ângulo  $\phi_H$  entre o campo magnético estático e o sentido de  $H_{eb}$ , o campo de ressonância varia entre um valor mínimo ( $H_{res}(0^\circ)$  quando estão paralelos) e um valor máximo ( $H_{res}(180^\circ)$  quando estão antiparalelos). A partir dessa variação angular de  $H_{res}$  no plano da amostra, é possível determinar o valor do campo de *exchange bias* - [ $H_{res}(180^\circ) - H_{res}(0^\circ) = 2H_{eb}$ ] - conforme esquematizado na figura 2.18.

Observa-se, ainda, na mesma figura, que existem pequenas assimetrias nas curvas de  $H_{res}$  para S1, S2 e S3, as quais, segundo os autores, podem estar relacionadas a um desalinhamento entre os eixos das anisotropias uniaxial (do FeNi) e unidirecional (do IrMn).

A figura 2.19, extraída do trabalho publicado por Rodríguez-Suárez, mostra a variação angular de  $H_{res}$  para três bicamadas de NiFe(10 nm)/IrMn ( $t_{AFM}$ ). Para as amostras com camadas AFM menores, as curvas exibem uma simetria típica de um sistema em que a anisotropia uniaxial é predominante. Para  $t_{AFM} = 12 \text{ nm}$ , nota-se a simetria na "forma de sino", típica de uma anisotropia unidirecional, como esperado para o caso em que  $H_{eb}$

é maior que o campo de anisotropia uniaxial.

Figura 2.19 – Dependência angular de  $H_{res}$  para bicamadas de NiFe/IrMn com diferentes espessuras para a camada AFM. A camada FM é fixa em 10 nm. As linhas contínuas (em preto) correspondem ao modelo proposto pelos autores do trabalho.



Fonte: Adaptação de (RODRÍGUEZ-SUÁREZ et al., 2011).

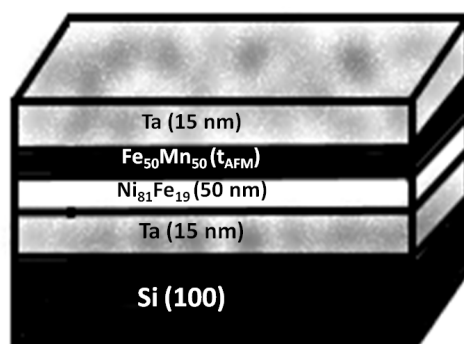
### 3 TÉCNICAS E PROCEDIMENTOS EXPERIMENTAIS

Esse capítulo apresentará as técnicas e os procedimentos experimentais adotados na produção e na caracterização estrutural e magnética das amostras.

#### 3.1 PRODUÇÃO DAS AMOSTRAS

As amostras estudadas (figura 3.1) foram produzidas no LMMM e se tratam de filmes finos na forma de bicamadas FM/AFM depositadas sobre silício (100). O permalloy (Py), composição  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$ , foi utilizado como material ferromagnético e o ferro-manganês, composição  $\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$ , como material antiferromagnético. A tabela 3.1 apresenta as espessuras nominais (planejadas) das camadas FM e AFM das amostras.

Figura 3.1 – Esquema ilustrando a composição das amostras estudadas.



Fonte: Autora.

A camada de Py de todos os filmes possui uma espessura nominal de 50 nm e com o intuito de observar o aparecimento e a evolução do EB em função da espessura da camada AFM, esta foi variada entre 3 e 30 nm. Como mostrado na tabela 3.1, depositou-se 15 nm de tântalo (Ta) como *buffer layer* e 15 nm como *capping layer* em todas as amostras. A *buffer layer* melhora a aderência do filme ao substrato e, além disso, favorece a texturização das camadas FM e AFM na direção (111). A *capping layer* protege a amostra da oxidação quando exposta à atmosfera. As amostras 1705 A/B/C foram produzidas com o objetivo de caracterizar os materiais FM e AFM em questão quando não existe o acoplamento.

Tabela 3.1 – Espessuras nominais das camadas FM e AFM das amostras produzidas.

Amostra	Ta (nm)	NiFe (nm)	FeMn (nm)	Ta (nm)
1705 A	15	50	-	15
1705 B	15	-	6	15
1705 C	15	-	20	15
1827 D	15	50	30	15
1705 D	15	50	20	15
1827 B	15	50	18	15
1827 A	15	50	15	15
1727 A	15	50	12	15
1727 B	15	50	9	15
1827 C	15	50	7,5	15
1727 C	15	50	6	15
1727 D	15	50	3	15

Anteriormente à deposição, tomou-se o cuidado de executar a limpeza dos substratos de silício, imergindo-os por 20 min em um tanque de limpeza por ultrassom que continha água e propanona.

A seguir apresenta-se uma revisão acerca de *magnetron sputtering*, a técnica utilizada para produzir amostras no LMMM.

### 3.1.1 Deposição por *magnetron sputtering*

Filmes finos podem ser preparados por diferentes métodos, dependendo da composição, estrutura, espessura e aplicação. Todos os métodos baseiam-se na deposição gradual de átomos ou moléculas do material desejado sobre um substrato (REZENDE, 2012).

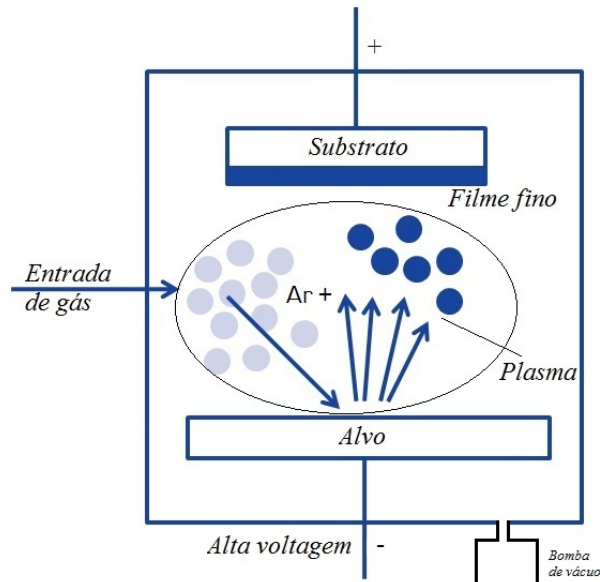
A deposição por *sputtering* é amplamente utilizada para fazer filmes finos. Dentre suas qualidades, destacam-se a excelente reprodutibilidade das amostras produzidas, boa aderência do filme ao substrato e a facilidade no controle da espessura.

Na figura 3.2, apresenta-se o esquema básico para a deposição de filmes finos por *sputtering*. Primeiramente, a câmara é evacuada durante algumas horas para eliminar gases residuais. Em seguida, um gás nobre (argônio, na maioria das vezes) é injetado na câmara, formando uma atmosfera inerte. O *sputtering*, ou seja, a emissão do material que se deseja obter um filme começa quando é aplicada uma diferença de potencial (DC para metais, ou RF, mais adequada para isolantes) entre o porta-substratos e o alvo. O gás é ionizado nessa região, formando um plasma. Os íons do plasma são acelerados pela diferença de potencial em direção ao alvo, com o qual colidem balisticamente. A energia adquirida pelos íons é suficiente para desbastar o alvo, espalhando seus átomos



(ou aglomerados de átomos) em todas as direções da câmara, inclusive na do substrato, em que se forma o filme fino.

Figura 3.2 – Esquema básico para a deposição de filmes finos por *sputtering*.



A espessura de um filme é controlada pelo tempo de exposição do substrato ao plasma e pela taxa de deposição. Essa última depende, entre outros fatores, da potência utilizada nas fontes de tensão, da distância entre o substrato e o alvo e da pressão de argônio. Por intermédio de medidas de refletividade de raios-X de filmes do material que se deseja depositar pode-se calibrar a taxa de deposição.

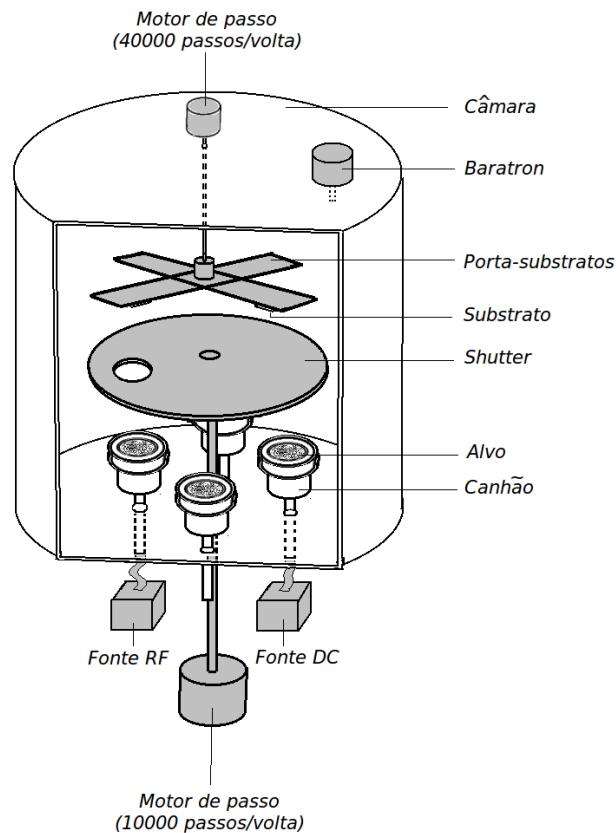
Muitos sistemas, inclusive o do LMMM, utilizam ímãs permanentes para criar um campo magnético que confina o plasma na região do alvo, aumentando a eficiência do processo de deposição. Sendo assim, a denominação da técnica passa a ser *magnetron sputtering*.

O sistema de deposição de filmes finos do LMMM, esquematizado na figura 3.3, é composto basicamente pelos itens listados abaixo:

- Uma câmara montada sobre um sistema de vácuo que possui duas bombas *Balzars*, uma rotativa e uma difusora, capazes de alcançar uma pressão de base da ordem de  $10^{-7}$  Torr<sup>1</sup>.
- Quatro canhões magnéticos com formatos cilíndricos nos quais são colocados os materiais a serem depositados (alvos).
- Um porta-substratos, na forma de uma cruz, que proporciona a deposição de até quatro filmes em uma mesma rodada. Ele é acionado por um motor de passos e

<sup>1</sup> 1 Pa = 0,01 mBar = 7,50 mTorr.

Figura 3.3 – Esquema do sistema de deposição de filmes finos do LMMM (fora de escala).



Fonte: (RIGUE, 2010).

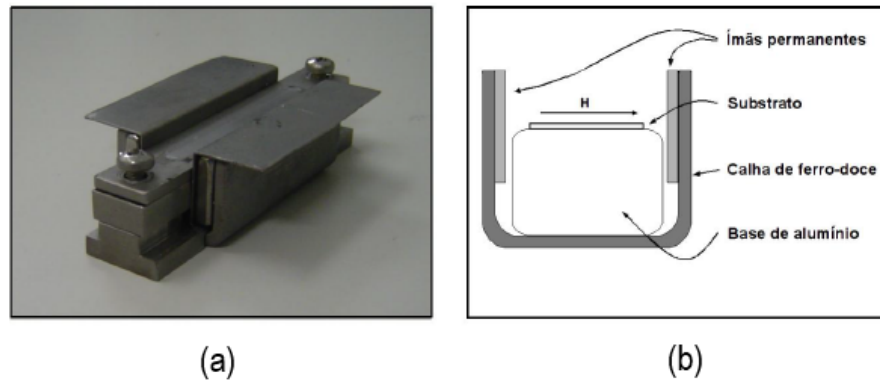
permite uma deposição em movimento, melhorando a uniformidade dos filmes ao longo dos substratos.

- Um *shutter* (disco com um orifício) que permite iniciar e interromper a exposição do substrato ao plasma, o qual é acionado por um motor de passos.
- Um baratron que permite a verificação da pressão no interior da câmara durante o processo de deposição.
- O fluxo de gás para dentro da câmara é monitorado por dois controladores 1179A MKS (não apresentados no esquema).
- O sistema de ímãs que caracteriza a técnica como *magnetron sputtering* encontra-se nos canhões, abaixo do alvo.

Nas amostras em estudo, a direção de anisotropia da camada FM e, consequentemente, o *exchange bias* foram induzidos mediante à aplicação de um campo magnético durante a deposição. Para tal fixaram-se ao porta-substratos sistemas como o mostrado na figura 3.4 (a). Os ímãs permanentes, responsáveis pela produção do campo, ficam en-

voltos por uma estrutura em "U", figura 3.4 (b), a qual é constituída por ferro doce com a intenção de fechar o fluxo magnético.

Figura 3.4 – Sistema de indução de anisotropia magnética com aplicação de campo magnético. (a) Fotografia. (b) Representação esquemática, vista lateral.



Fonte: (RIGUE, 2010).

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

As amostras estudadas foram produzidas em três rodadas (1705, 1727 e 1827) e os parâmetros utilizados durante as deposições, feitas com o porta-substratos em movimento, estão apresentados na tabela 3.2. Como os alvos são metálicos foram utilizadas duas fontes de corrente DC.

Tabela 3.2 – Parâmetros de deposição. Sccm denota *Standard cubic centimeters per minute*.

	<b>Ta</b>	<b>NiFe</b>	<b>FeMn</b>
Alvo	Ta	Ni <sub>81</sub> Fe <sub>19</sub>	Fe <sub>50</sub> Mn <sub>50</sub>
Pressão de base (Torr)	$5,5 \times 10^{-7}$	$5,5 \times 10^{-7}$	$5,5 \times 10^{-7}$
Fluxo de argônio (Sccm)	32,0	32,0	32,0
Pressão de argônio (mTorr)	2,00	2,06	2,06
Potência DC (W)	20,0	130,0	90,0
Taxa de deposição (nm/s)	0,21	1,47	0,90
Distância dos alvos aos substratos (cm)	5,2	5,2	5,2

## 3.2 CARACTERIZAÇÃO ESTRUTURAL

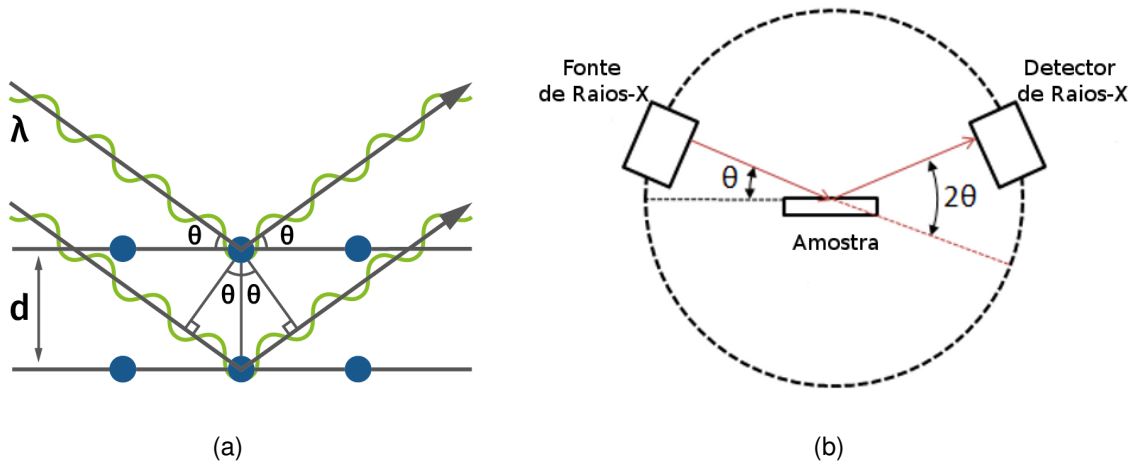
### 3.2.1 Difração e refletividade de raios-X

Na formulação de Bragg, considera-se que um cristal é formado por planos atômicos paralelos e separados por uma distância ( $d$ ) constante, como ilustrado na figura 3.5 (a). Quando um feixe de raios-X incide em um material cristalino ocorre o fenômeno de difração, o que significa que a radiação é espalhada pelos átomos. Para que aconteça uma interferência construtiva entre raios refletidos por dois planos atômicos sucessivos, a diferença de caminho óptico percorrido ( $2d \sin \theta$ ) deve ser igual a um número inteiro de comprimentos de onda ( $m\lambda$ ). Essa condição denomina-se lei de Bragg:

$$2d \sin \theta = m\lambda. \quad (3.1)$$

Como indicado nas figuras 3.5 (a) e (b),  $\theta$  é o ângulo de incidência do feixe de raios-X,  $\lambda$  é o comprimento de onda e  $m$  é um inteiro que indica a ordem de difração.

Figura 3.5 – (a) Geometria da reflexão de Bragg para um cristal. (b) Goniômetro de um difratômetro de raios-X na configuração de Bragg-Brentano.



Os experimentos envolvendo raios-X permitem obter informações sobre a estrutura cristalina dos materiais. Nesse trabalho, a caracterização foi feita utilizando um difratômetro *Bruker D8 Advance* disponível no LMMM. Como mostrado na figura 3.5 (b), ele possui um goniômetro na geometria de Bragg-Brentano (ou theta – 2theta). O tubo no qual são gerados os raios-X possui um alvo de cobre e, dessa forma,  $\lambda = 1,54056 \text{ \AA}$ . O detector do equipamento é um *LinxEye* de tiras de silício.

Um difratograma medido na geometria de Bragg-Brentano é produzido fazendo-se uma varredura angular do feixe incidente e se medindo a intensidade de radiação que

chega ao detector. Durante uma medida, o porta-amostras é mantido fixo, já o tubo e o detector são movidos por motores de passo, de modo que o ângulo entre eles seja sempre  $2\theta$ . Cada vez que o ângulo medido satisfaz a condição de interferência construtiva para raios refletidos (descrita anteriormente), a intensidade de radiação detectada aumenta e surge um pico de Bragg no difratograma, sendo que a posição angular desse pico define qual material está sendo caracterizado.

Um difratograma de raios-X pode ser dividido em duas regiões, baixos ângulos ( $\leq 10^\circ$ ) e altos ângulos ( $\geq 10^\circ$ ). As medidas de difração de raios-X a altos ângulos (XRD) visam determinar a estrutura cristalina das amostras e os tamanhos de grãos formados nas camadas. Nesse caso, o  $d$  calculado pela lei de Bragg é da ordem da distância interplanar do cristal. Na região a baixos ângulos, ocorre reflexão total ou parcial da radiação incidente na interface entre dois materiais com diferentes índices de refração. Dessa forma, as medidas a baixos ângulos, ou refletividade de raios-X (XRR), permitem determinar as espessuras de camadas e a rugosidade interfacial.

A referência (CULLITY; STOCK, 2014) apresenta uma revisão completa sobre técnicas de medida que utilizam raios-X.

### 3.3 CARACTERIZAÇÃO MAGNÉTICA ESTÁTICA

A caracterização magnética estática das amostras foi feita utilizando-se de dois magnetômetros, um VSM e um AGFM. Nas versões comerciais desses equipamentos, um AGFM consegue medir um momento magnético da ordem de  $10^{-9}$  emu, enquanto que um VSM limita-se a medidas da ordem de  $10^{-6}$  emu.

Nesse trabalho, a maior parte das medidas de magnetização foi realizada no AMRI em um VSM comercial (*Princeton Measurements Corporation - AGFM/VSM magnetometer*). Para algumas medidas complementares, fez-se o uso de um AGFM que foi montado e se encontra disponível no LMMM.

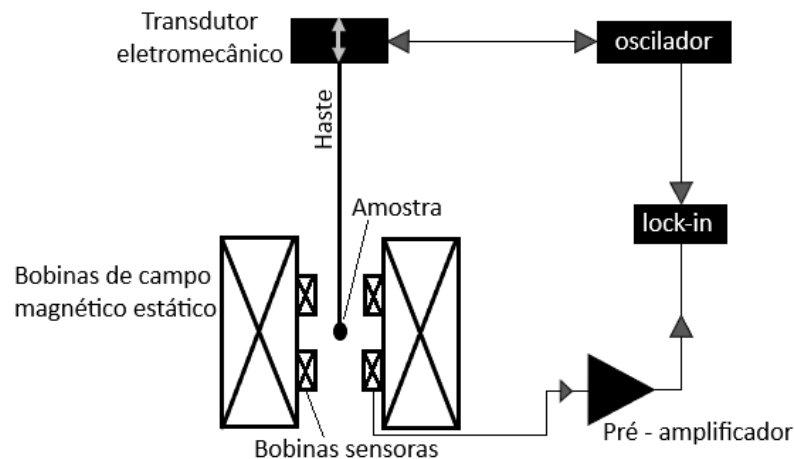
#### 3.3.1 Magnetômetro de Amostra Vibrante

O primeiro Magnetômetro de Amostra Vibrante (VSM - *Vibrating Sample Magnetometer*) foi desenvolvido por S. Foner em 1955. Trata-se de uma aplicação da lei de indução de Faraday-Lenz, a qual determina que um fluxo magnético variável irá induzir uma força eletromotriz em um condutor que esteja situado nas proximidades (FONER, 1959).

A figura 3.6 apresenta o diagrama básico de um VSM. Uma amostra, magnetizada por um campo magnético estático, é fixada em uma das extremidades de uma haste rígida.

A outra extremidade da haste é acoplada a um mecanismo de vibração (um transdutor eletromecânico, por exemplo). Sendo assim, a amostra vibrará verticalmente, com amplitude constante, movendo-se perpendicularmente a um campo  $H$  numa região em que também existe um conjunto de bobinas sensoras.

Figura 3.6 – Estrutura básica de um Magnetômetro de Amostra Vibrante.



Fonte: Autora.

Nesse método, como a amostra magnetizada move-se, o fluxo magnético na região das bobinas sensoras irá variar. Desse modo, uma voltagem alternada, diretamente proporcional ao momento magnético da amostra, será induzida nas bobinas, sendo detectada e amplificada sincronicamente no amplificador *lock-in*.

A sensibilidade de um VSM é determinada pela amplitude de vibração da haste, frequência de operação, eletrônica de detecção do sinal induzido e, principalmente, pela configuração geométrica das bobinas sensoras. A escolha da geometria é feita de acordo com a componente da magnetização que se deseja medir, bem como com a simetria do campo magnético estático (TAKEUCHI, 2010).

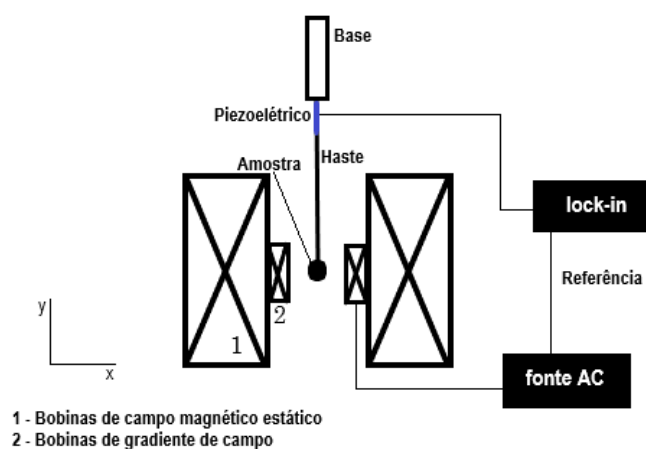
### 3.3.2 Magnetômetro de Gradiente de Campo Alternado

O Magnetômetro de Gradiente de Campo Alternado (AGFM - *Alternating Gradient Field Magnetometer*) utiliza a força magnética para a detecção do momento magnético. Nesse método, uma amostra uniformemente magnetizada é colocada em um gradiente de campo magnético alternado e submetida a uma força dada por  $F = M \cdot \nabla B$ , onde  $M$  é a magnetização da amostra e  $\nabla B$  é o gradiente de indução magnética.

Como pode ser observado na figura 3.7, a amostra é fixada na posição vertical em uma das extremidades de uma haste flexível não magnética e, então, colocada entre os

polos de um eletroímã, os quais geram um campo magnético estático,  $H$ . Paralelamente aos polos do eletroímã existem duas bobinas que geram um gradiente de campo magnético alternado,  $H_{AC}$ , na região da amostra. Tal gradiente é utilizado para exercer uma força periódica na amostra magnetizada pelo campo estático. Essa força deflete a haste que segura a amostra, fazendo-a oscilar com a mesma frequência do  $H_{AC}$ . A amplitude de deflexão é proporcional à magnitude do gradiente de campo e ao momento magnético da amostra (TAKEUCHI, 2010).

Figura 3.7 – Estrutura básica de um Magnetômetro de Gradiente de Campo Alternado.



Fonte: Adaptação de (SAMPAIO, L. C. et al., 2000).

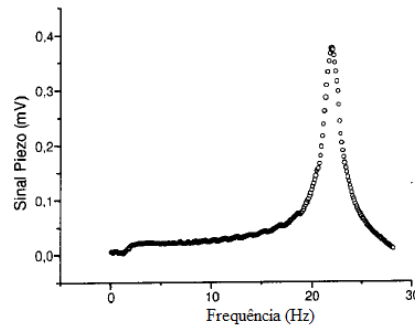
O primeiro AGFM foi desenvolvido por H. Zijlstra e utilizava um microscópio ótico para observar a variação da amplitude de vibração da haste (ZIJLSTRA, 1970). Atualmente, acopla-se um cristal piezoelétrico à haste, o qual converte a oscilação mecânica em uma tensão elétrica alternada. A amplitude dessa tensão é proporcional ao momento magnético da amostra (FLANDERS, 1988) e o sinal de saída do piezoelétrico é detectado sincronicamente com a frequência do gradiente de campo magnético por meio de um amplificador *lock-in*.

Observações:

- Para obter um sinal de maior intensidade (maior amplitude de vibração da haste), a frequência de operação do AGFM deve ser igual a frequência de ressonância mecânica da haste. A última pode ser encontrada fazendo-se uma varredura do sinal do piezo em função da frequência do  $H_{AC}$ , como mostra a figura 3.8.
- A geometria das bobinas de campo magnético alternado deve propiciar o maior gradiente de campo possível sobre a amostra, a fim de maximizar o sinal.
- Vibrações mecânicas do sistema experimental comprometem a medida, aumentando

o ruído. Um pequeno ruído mecânico pode alterar de maneira significativa a amplitude de oscilação da amostra.

Figura 3.8 – Sinal do piezo em função da frequência do campo alternado para  $H = 100$  Oe. A frequência de ressonância é, aproximadamente, 22 Hz.



Fonte: Adaptação de (SAMPAIO, L. C. et al., 2000).

### 3.4 CARACTERIZAÇÃO MAGNÉTICA DINÂMICA

A caracterização magnética dinâmica das amostras foi realizada no *Advanced Materials Research Institute* (AMRI) utilizando-se de três diferentes técnicas envolvendo ressonância ferromagnética.

#### 3.4.1 Espectroscopia de ressonância ferromagnética por onda contínua

As medidas de ressonância ferromagnética com frequência de excitação fixa (9,87 GHz - banda-X) foram realizadas por meio de um espectrômetro de FMR da *Bruker*. O *setup* consiste, basicamente, de um gerador de micro-ondas, um circulador, uma cavidade ressonante e um diodo detector. Como pode ser visto na figura 3.9, a cavidade é posicionada entre os polos de um eletroímã que geram um campo magnético estático  $H$  variável.

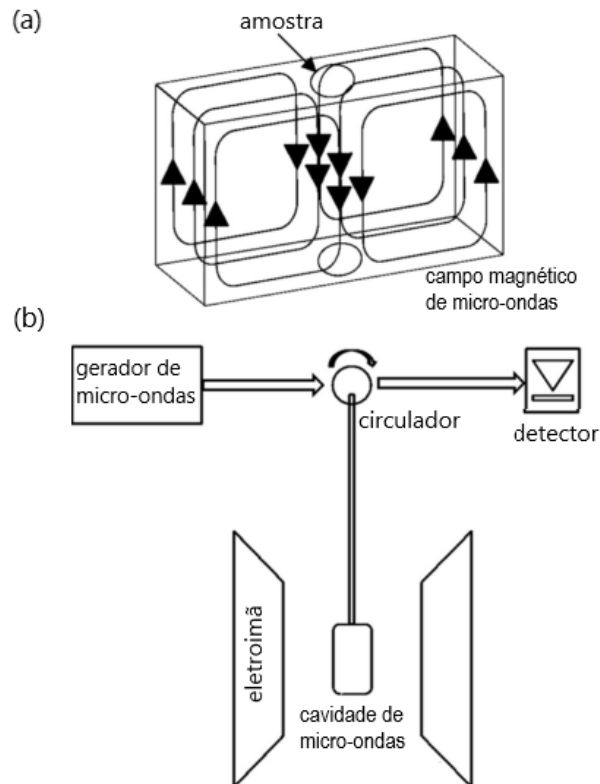
Durante a realização de um experimento de FMR, a amostra é colocada dentro da cavidade, na qual incide-se radiação eletromagnética com frequência fixa, e se faz variar o campo magnético estático. No momento em que a frequência de precessão da magnetização da amostra iguala-se à da radiação incidente (9,87 GHz) ocorre a ressonância ferromagnética.

O papel do circulador, indicado na figura 3.9, é fazer com que a radiação gerada incida na amostra e com que a parte que é refletida seja direcionada para o detector. No



instante em que a amostra absorve energia da radiação incidente, a radiação refletida sofre uma alteração (diminui seu valor). Em outras palavras, na ressonância ferromagnética o detector identifica um retorno mínimo de energia de micro-ondas.

Figura 3.9 – (a) Configuração do campo magnético de micro-ondas dentro de uma cavidade ressonante retangular do tipo  $TE_{102}$ . (b) Esquema básico de um *setup* para a realização de medidas de FMR utilizando uma cavidade ressonante.



Fonte: Adaptação de (MAKSYMOV; KOSTYLEV, 2015).

Nesse experimento, o sinal detectado corresponde à derivada da absorção de energia de micro-ondas pela amostra. Dessa forma, o sinal de medida pode ser ajustado por meio da derivada de uma função Lorentziana.

Em (MAKSYMOV; KOSTYLEV, 2015) pode-se encontrar informações detalhadas a respeito desse método de medida.

### 3.4.2 Espectroscopia de ressonância ferromagnética de banda larga - VNA

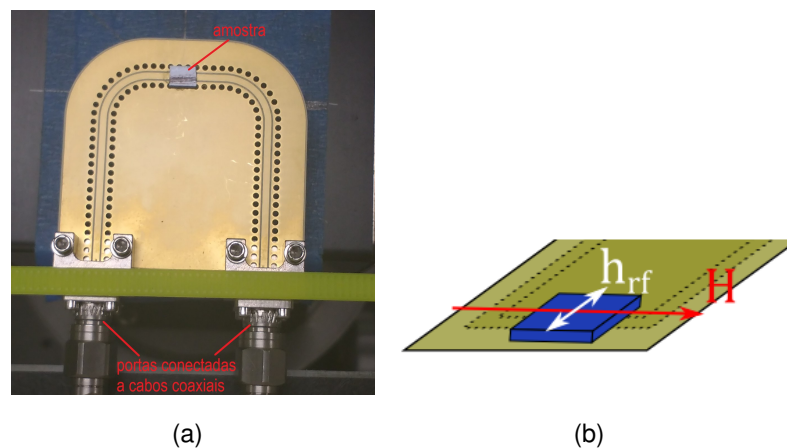
Um Analisador Vetorial de Rede (VNA - *Vector Network Analyser*) é um dispositivo que emite e recebe sinais rf. Esse equipamento pode ser usado para explorar a resposta dinâmica de um sistema magnético em uma ampla região de frequências na faixa de micro-

ondas, ou seja, diferentemente do método convencional para medidas de FMR, descrito anteriormente, em que se trabalha com uma única frequência de excitação.

O VNA - FMR (ressonância ferromagnética por meio de um Analisador Vetorial de Rede) é um método indutivo (MAKSYMOW; KOSTYLEV, 2015). O emprego de uma guia de onda, ao invés de uma cavidade ressonante, permite trabalhar numa banda larga de frequências. Nesse método, realizam-se medidas de FMR em função de um campo magnético estático  $H$  e da frequência de um campo magnético rf.

O analisador de rede do AMRI é um *Agilent Technologies (model 8722ES)* que trabalha em uma faixa de frequências entre 50 MHz e 40 GHz e tem duas portas de teste. Essas portas servem como saídas para um sinal de estímulo rf e como entradas para um sinal de resposta do dispositivo em teste (DUT). Neste trabalho, o DUT é uma guia de onda coplanar (CPW) carregada com determinada amostra magnética, figura 3.10 (a).

Figura 3.10 – (a) Imagem da guia de onda coplanar (CPW) com duas portas que foi utilizada nesse trabalho. (b) Orientações dos campos magnéticos estático e rf para a realização de uma medida de FMR com a CPW.



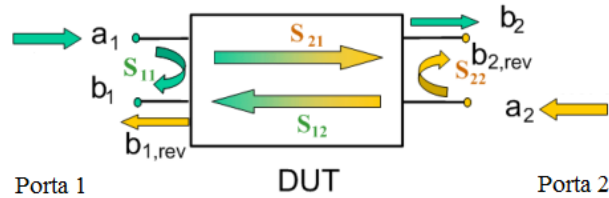
Fonte: Adaptação de (DURRENFELD, 2015).

As quantidades de medida básicas de um VNA, calculadas por seu computador interno, são os parâmetros-S de espalhamento. Eles descrevem como o DUT modifica um sinal rf enviado pelo analisador. Em outros termos, os valores dos parâmetros de espalhamento estão relacionados à absorção de micro-ondas pela amostra magnética em questão, que é máxima na ressonância ferromagnética. O número de parâmetros-S é igual ao quadrado do número de portas do DUT. Para duas portas, por exemplo, existirão quatro parâmetros de espalhamento e o fluxo de sinais é o apresentado na figura 3.11. Para um DUT com uma única porta de teste é possível transmitir um sinal de estímulo e medir um sinal de resposta (na forma de reflexão).

Os parâmetros-S são expressos como  $S_{\langle out \rangle \langle in \rangle}$ , em que  $\langle out \rangle$  e  $\langle in \rangle$  denotam o número da porta de saída e entrada do DUT, respectivamente. Para o DUT

apresentado na figura 3.11,  $S_{11}$  e  $S_{22}$  são os coeficientes de reflexão nas portas 1 e 2, respectivamente, enquanto que  $S_{12}$  e  $S_{21}$  são os coeficientes de transmissão de uma porta para a outra.

Figura 3.11 – Parâmetros-S para um DUT com duas portas.



A matriz de dispersão  $[S]$  relaciona as amplitudes das ondas incidentes,  $a_1$  e  $a_2$ , com as amplitudes das ondas de saída,  $b_1$  e  $b_2$ , por meio de uma equação linear,

$$\begin{bmatrix} b_1 \\ b_2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} S_{11} & S_{12} \\ S_{21} & S_{22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} a_1 \\ a_2 \end{bmatrix}. \quad (3.2)$$

Cada elemento da matriz pode ser obtido utilizando-se das seguintes relações:

$$S_{11} = \frac{b_1}{a_1}, \quad (3.3)$$

$$S_{12} = \frac{b_1}{a_2}, \quad (3.4)$$

$$S_{21} = \frac{b_2}{a_1}, \quad (3.5)$$

$$S_{22} = \frac{b_2}{a_2}. \quad (3.6)$$

Para a realização de uma medida, a guia de onda, carregada com a amostra, é colocada numa região de campo magnético estático e, por meio de cabos coaxiais, é conectada ao VNA. Posteriormente, faz-se variar o campo magnético estático (entre  $+H$  e  $-H$ ) e a frequência do campo magnético rf simultaneamente. Ou seja, para cada valor de  $H$  faz-se uma varredura em frequência. O valor máximo/mínimo de  $H$  e a faixa de frequências são determinados de acordo com a amostra que se está caracterizando.

Os campos magnéticos estático e rf são aplicados em orientações perpendiculares para que a condição de ocorrência de FMR seja atendida, figura 3.10 (b). Além disso, a corrente de micro-ondas gera um campo magnético rf uniforme na linha de sinal da CPW.

Nesse trabalho, o parâmetro medido em função de  $H$  e da frequência foi o  $S_{21}$ , o qual é um parâmetro de transmissão. O sinal de tensão na porta 2, devido à porta 1,

diminuirá na FMR. Isso indica que uma parcela de energia não foi transmitida de uma porta para a outra, mas foi absorvida pela amostra na ressonância e será dissipada como calor.

Embora seja mais comum utilizar um VNA para medidas de FMR numa banda larga de frequências, é possível configurá-lo para operar com uma única frequência enquanto varia-se o valor de  $H$ , o que significa que com um VNA também é possível realizar o procedimento discutido na subseção anterior.

Existem vantagens e desvantagens nos dois modos em que se pode medir FMR por meio de um VNA. O procedimento em que varia-se a frequência é mais rápido, porém menos sensível se comparado ao procedimento com frequência fixa. A variação da frequência pode levar à variações na impedância do DUT, as quais influenciam no sinal medido. Dessa forma, os dados experimentais podem necessitar de um tratamento para eliminar as "ressonâncias parasitas" que não têm origem magnética. Um espectro medido com frequência fixa, contudo, fornece apenas sinais que variam com o campo magnético estático (MAKSYMOV; KOSTYLEV, 2015).

### 3.4.3 Espectroscopia de ressonância ferromagnética em função da temperatura

A caracterização magnética dinâmica em função da temperatura foi feita acoplando-se um espectrômetro *CryoFMR - NanOsc* a um Sistema de Medições de Propriedades Físicas (PPMS - *Physical Properties Measurement System*) da *Quantum Design*.

Nesse *setup*, uma guia de onda coplanar carregada com a amostra, semelhante à da figura 3.10 (a), é colocada numa região em que existe um campo magnético estático  $H$  e que a temperatura pode ser controlada. Da mesma maneira que no método descrito anteriormente, a guia de onda conecta-se à fonte de micro-ondas por meio de cabos coaxiais.

Durante um experimento, para cada temperatura escolhida (entre 2 K e 350 K) pode-se medir o parâmetro de transmissão  $S_{21}$  para diferentes frequências de excitação (entre 16,8 e 2 GHz). Para cada frequência, faz-se  $H$  variar de um determinado valor positivo para um valor negativo, mantendo-o sempre perpendicular ao campo de micro-ondas gerado pelo espectrômetro.

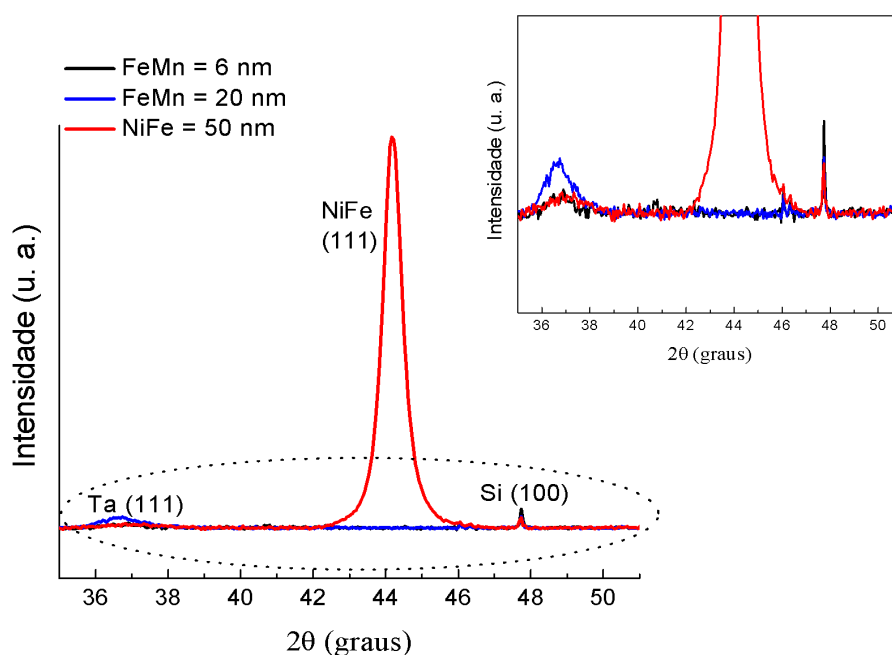
## 4 RESULTADOS E DISCUSSÕES

Neste capítulo serão apresentados os resultados obtidos para as amostras que compõem esse trabalho. Faz-se uma análise do *exchange bias* em função da espessura da camada AFM e se comparam os resultados encontrados por diferentes técnicas de caracterização. Primeiramente serão discutidas as propriedades estruturais e depois as magnéticas (estáticas e dinâmicas).

### 4.1 PROPRIEDADES ESTRUTURAIS

Na figura 4.1, mostram-se as medidas de difração de raios-X para os filmes de permalloy (50 nm) e FeMn (6 e 20 nm) não acoplados. O pico de difração característico do permalloy foi observado em  $44,2^\circ$  e, conforme a comparação feita com a ficha padrão nº 03-065-3244, o filme cresceu com uma textura cristalográfica na direção (111). O pico de difração do FeMn que deve ser visto em  $2\theta \approx 43^\circ$ , porém, não foi identificado em nenhum dos dois filmes.

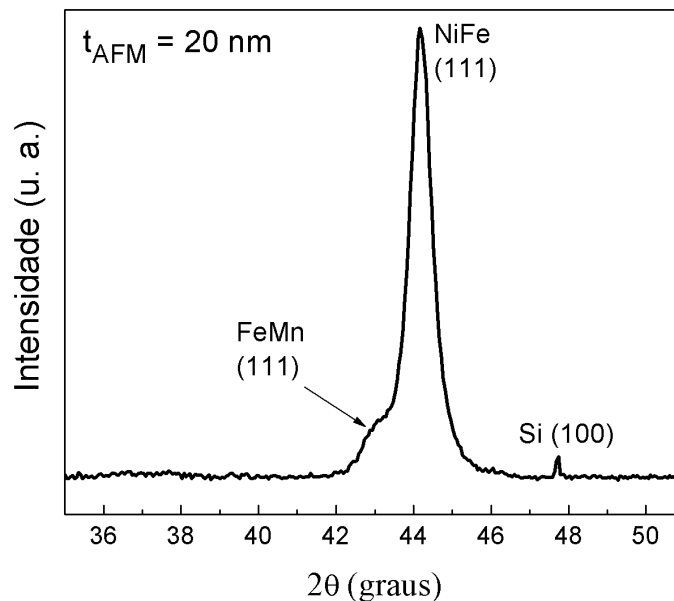
Figura 4.1 – Difração de raios-X para os filmes de permalloy (50 nm) e FeMn (6 e 20 nm) não acoplados. Os mesmos possuem uma *buffer layer* e uma *capping layer* de tântalo, da mesma forma que as bicamadas. A região dentro do pontilhado está ampliada no *inset*.



Como descrito na seção 3.1, todas as amostras têm uma *buffer layer* e uma *capping layer* de 15 nm de tântalo e foram depositadas sobre substratos de silício (100). Dessa forma, acredita-se que os picos de difração que aparecem para os três filmes, em  $2\theta \approx 37^\circ$  e em  $2\theta \approx 48^\circ$ , são do tântalo e do silício, respectivamente.

Nas medidas de difração de raios-X, a presença do ferro-mangânês ficou evidente nas amostras em que ele foi depositado sobre uma camada de permalloy (50 nm), isto é, para as bicamadas FM/AFM. Isso pode ser visto no difratograma da figura 4.2 que se refere à bicamada com 20 nm de espessura de FeMn. Além dos picos do NiFe e do silício, identifica-se um pico de difração do FeMn em  $2\theta \approx 43^\circ$ . A ficha padrão nº 01-071-8284, com a qual se comparou esse pico, também indica uma textura cristalográfica na direção (111) para o FeMn.

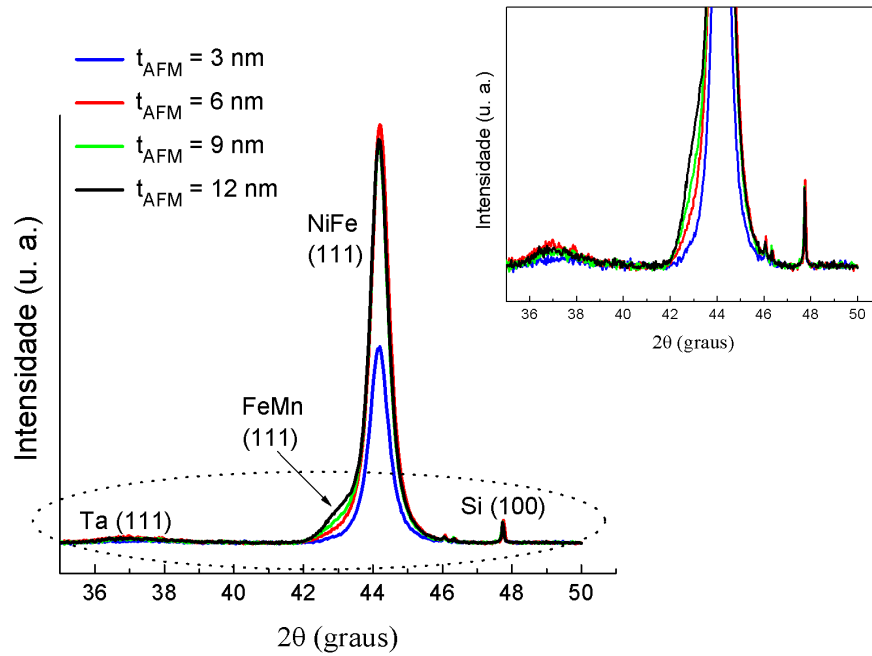
Figura 4.2 – Difração de raios-X para a bicamada FM/AFM com  $t_{AFM} = 20$  nm, produzida na mesma rodada (conjunto 1705) que as amostras da figura 4.1.



Fonte: Autora.

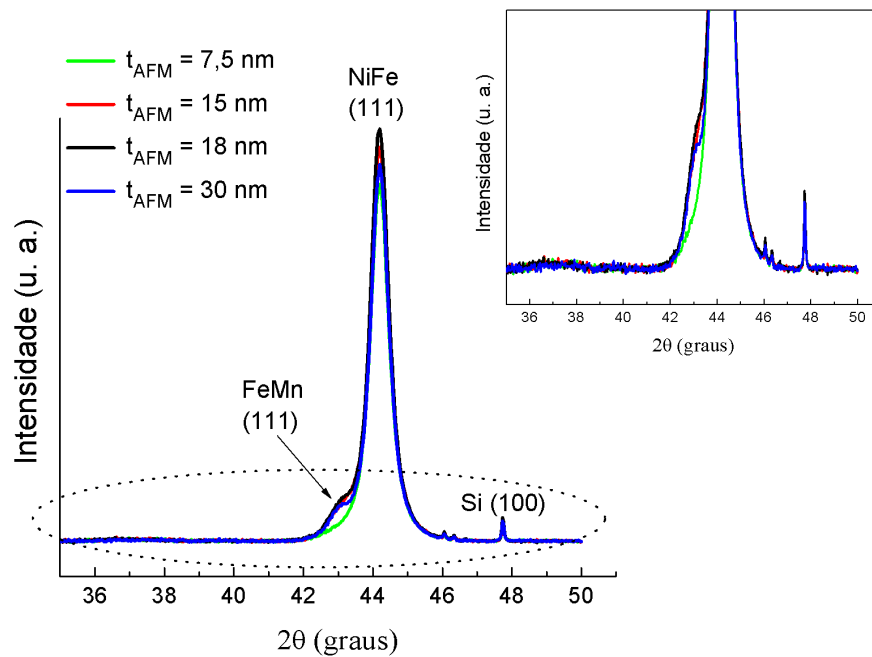
Nas figuras 4.3 e 4.4, têm-se as medidas de difração de raios-X para as demais bicamadas de permalloy(50 nm)/FeMn( $t_{AFM}$ ) que compõem esse trabalho. A apresentação foi feita dessa forma com o intuito de agrupar as amostras que foram depositadas em uma mesma rodada. Nos difratogramas, é possível ver o crescimento do pico do FeMn (111) conforme sua espessura vai aumentando. Ademais, vê-se que o pico do tântalo (usado como *buffer layer* e *capping layer*) não aparece em todas as amostras, o que pode levar à ideia de que esse material tenha crescido com uma estrutura amorfa.

Figura 4.3 – Difração de raios-X para as bicamadas do conjunto 1727. A espessura da camada AFM de cada amostra está indicada na figura.



Fonte: Autora.

Figura 4.4 – Difração de raios-X para as bicamadas do conjunto 1827. A espessura da camada AFM de cada amostra está indicada na figura.



Fonte: Autora.

A ausência do pico do tântalo pode ser justificada ao considerar outro estudo, realizado paralelamente à tese, que envolve a caracterização de amostras com a mesma composição das aqui apresentadas, mas depositadas com diferentes pressões de argônio. Concluiu-se que o pico do tântalo, característica de uma estrutura não amorfa, torna-se mais nítido nos difratogramas das amostras depositadas em pressões de argônio menores que 2 mTorr (valor aqui utilizado). Ademais, por meio da comparação com a ficha padrão nº 01-088-2338, foi constatado um crescimento com textura cristalográfica na direção (111), o que também ocorreu para as bicamadas dessa tese em que se identificou o pico do tântalo, figuras 4.1 e 4.3.

Um dos requisitos para o aparecimento do *exchange bias* é que ambos os materiais magnéticos, FM e AFM, cresçam com uma textura cristalográfica na direção (111) (CASTRO et al., 2013; CHEN, Y. T., 2008; TONG et al., 2000). Dessa maneira, a análise estrutural das 9 bicamadas FM/AFM produzidas permite supor que pelo menos 6 irão apresentar EB. Chega-se à essa hipótese pelo fato de que para as bicamadas com  $t_{AFM} = 3, 6$  e  $7,5$  nm, o pico de FeMn na direção (111) não é tão evidente.

É conhecido que a largura à meia altura ( $\beta$ ) de um pico de difração está relacionada ao comprimento de alcance da ordem cristalina do material, o qual se denomina tamanho médio de grão cristalino ( $L$ ) e pode ser estimado pela fórmula de Debye-Scherrer (PATTERSON, 1939),

$$L = \frac{K\lambda}{\beta \cos \theta}. \quad (4.1)$$

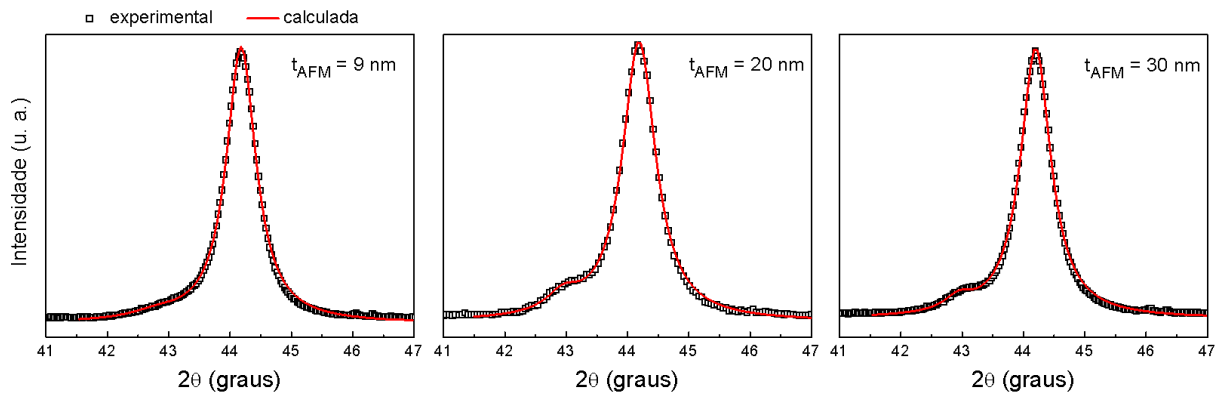
Nessa equação,  $\lambda$  é o comprimento de onda do feixe de raios-X,  $\theta$  é a posição angular do centro do pico e  $K$  é uma constante adimensional associada à forma do grão cristalino, geralmente tomada como sendo 0,9 (MONSHI; FOROUGH; MONSHI, 2012). De modo geral, um material amorfo possui tamanho de grão cristalino muito pequeno. Um cristal perfeito, todavia, possuiria tamanho de grão infinito.

Com o intuito de calcular o tamanho médio de grão cristalino para as camadas FM e AFM, os picos de permalloy e FeMn dos difratogramas foram ajustados simultaneamente, utilizando uma equação composta pela soma de duas Lorentzianas. Os ajustes para três das bicamadas encontram-se na figura 4.5. Para  $t_{AFM} = 3, 6$  e  $7,5$  nm, porém, não foi possível a realização desse procedimento.

Por meio dos ajustes foi possível extrair  $\theta$  e  $\beta$  com maior precisão, uma vez que os picos do permalloy e do FeMn apresentam-se convoluídos nos difratogramas. Na figura 4.6 (a), pode ser visto como  $\beta$  evolui com a espessura da camada AFM. Embora pequena, a maior variação ocorre para o FeMn, como era de se esperar, já que sua espessura é o parâmetro que muda nas bicamadas. Os valores de  $\beta$  para o permalloy em contato com uma camada de FeMn são, aproximadamente, iguais ao valor encontrado quando ele trata-se de uma monocamada.

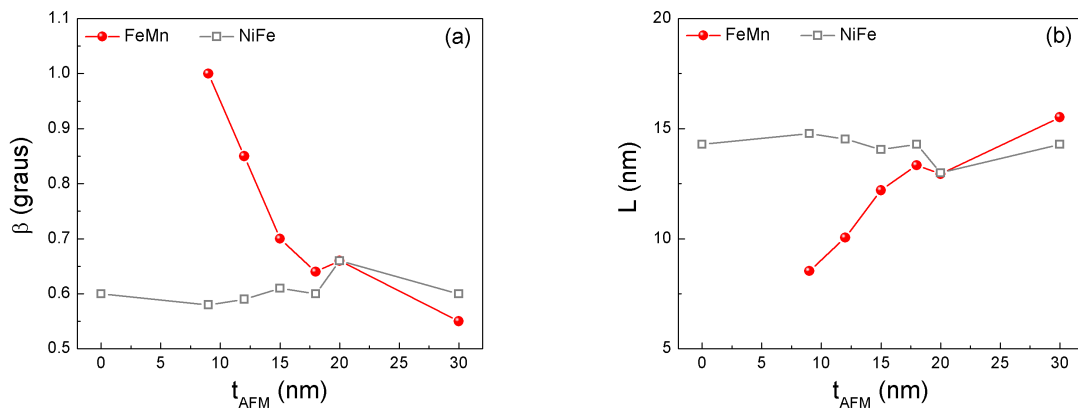


Figura 4.5 – Ajustes para os difratogramas das bicamadas com  $t_{AFM} = 9, 20$  e  $30$  nm. Para tal, utilizou-se uma equação composta pela soma de duas Lorentzianas.



Fonte: Autora.

Figura 4.6 – (a) Largura à meia altura para os picos de difração e (b) tamanho médio de grão cristalino do FeMn e do permalloy em função da espessura da camada AFM.



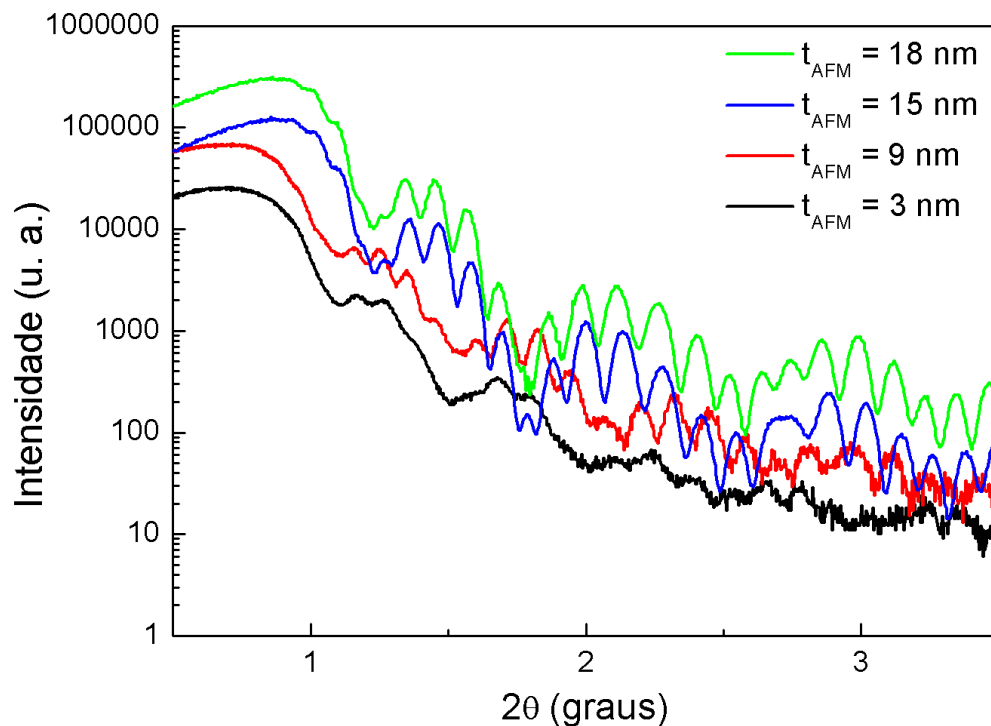
Fonte: Autora.

Utilizando-se os valores obtidos para  $\theta$  e  $\beta$ , o tamanho médio de grão cristalino para as camadas de FeMn e permalloy foi calculado por meio da equação 4.1, figura 4.6 (b). Como pode ser visto,  $\beta$  e  $L$  são inversamente proporcionais e  $L$  fica limitado pela espessura da respectiva camada, uma vez que tal grandeza é relativa à direção perpendicular ao plano da amostra.

As medidas de refletividade de raios-X (baixos ângulos) para algumas das amostras produzidas ( $t_{AFM} = 3, 9, 15$  e  $18$  nm) podem ser vistas na figura 4.7. Nessas medidas, é possível identificar os picos de Bragg acompanhados por oscilações superpostas a eles,

as quais se denominam franjas de Kiessig. A periodicidade dessas franjas relaciona-se à espessura da amostra. Já a inclinação da curva após o ângulo em que a intensidade começa a diminuir (ângulo crítico) e a amplitude das franjas estão relacionadas à rugosidade nas interfaces entre as camadas da amostra.

Figura 4.7 – Medidas de refletividade de raios-X para algumas das amostras produzidas. A espessura nominal da camada AFM varia conforme indicado na própria figura.

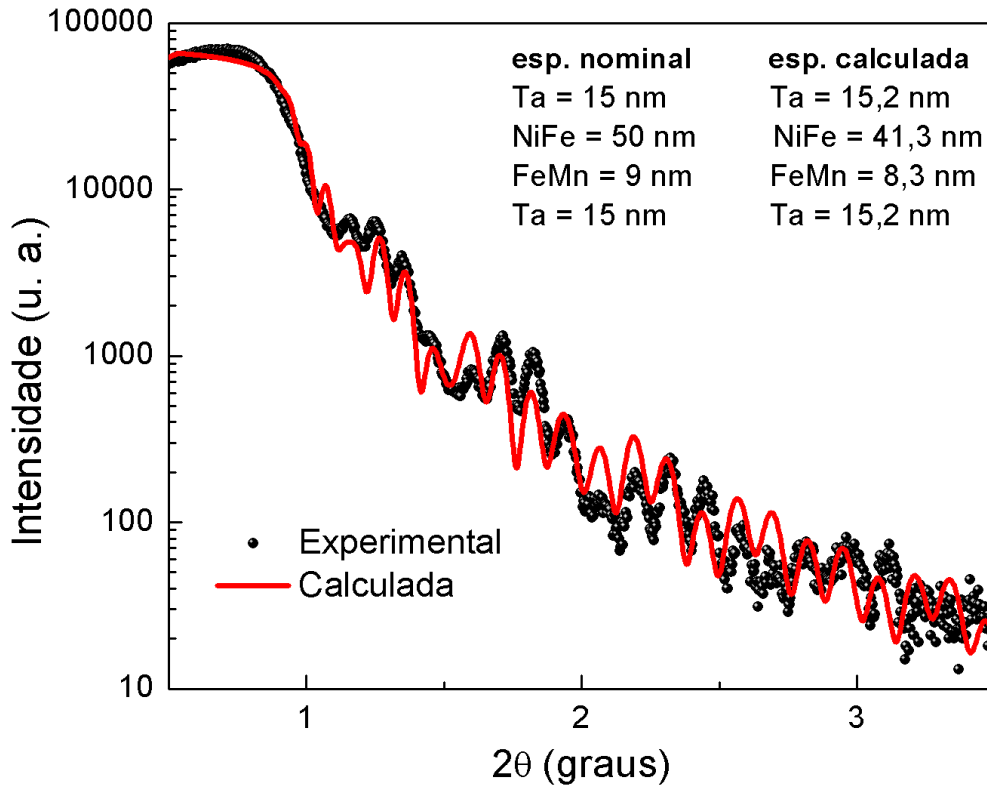


Fonte: Autora.

Para amostras como as estudadas nesse trabalho, ou seja, envolvendo diferentes camadas, uma descrição das espessuras das camadas, da rugosidade nas interfaces e das densidades dos materiais pode ser obtida quando são feitos ajustes de medidas de refletividade de raios-X.

Na figura 4.8, é mostrado um ajuste, feito por intermédio do *software WinGixa*, para a amostra com  $t_{AFM} = 9$  nm. A realização de um ajuste por meio do *WinGixa* nem sempre é fácil, de modo que não foi possível tratar as curvas experimentais de todas as amostras produzidas. Contudo, nos casos em que o procedimento foi realizado os valores calculados são compatíveis com as espessuras nominais, como pode ser visto na figura 4.8.

Figura 4.8 – Medida de refletividade de raios-X para a bicamada com  $t_{AFM} = 9$  nm. A curva em vermelho representa um ajuste realizado através do *software WinGixa*.



Fonte: Autora.

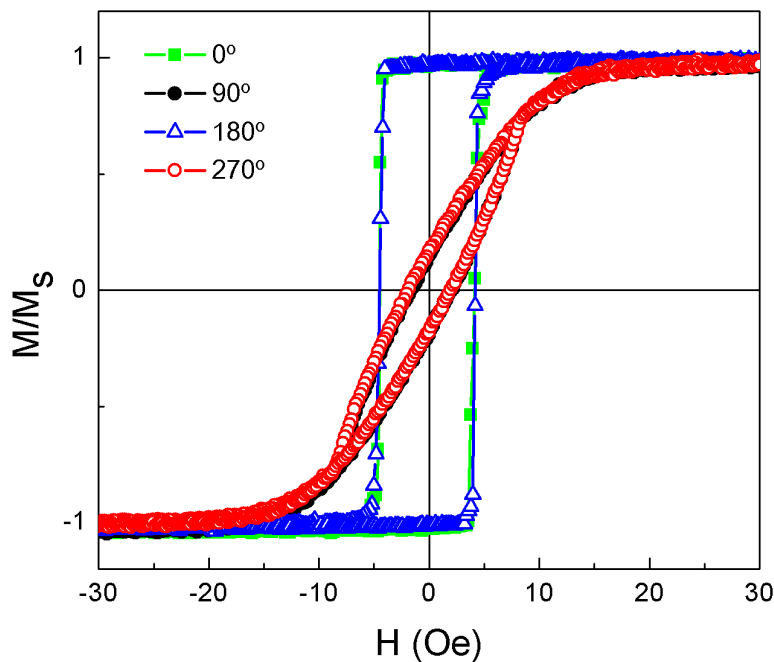
## 4.2 PROPRIEDADES MAGNÉTICAS ESTÁTICAS

As medidas de magnetização foram feitas no plano de cada amostra utilizando o VSM descrito na subseção 3.3.1. O campo magnético estático foi aplicado ao longo de diferentes orientações das amostras, tomando-se como referência a direção do campo aplicado durante a deposição (campo de *pinning*).

Na figura 4.9, apresentam-se quatro curvas de magnetização para a amostra de permalloy com 50 nm de espessura, as quais resultam da aplicação de  $H$  orientado a  $0^\circ$ ,  $90^\circ$ ,  $180^\circ$  e  $270^\circ$ . Nas situações em que  $H$  foi aplicado paralelamente/antiparalelamente ( $0^\circ/180^\circ$ ) ao que se espera que seja o eixo de anisotropia, verificou-se que as curvas de magnetização são praticamente idênticas. Elas têm um formato retangular e uma co-

ercividade de 4,5 Oe, aproximadamente. Quando  $H$  foi aplicado perpendicularmente às situações anteriores ( $90^\circ$  ou  $270^\circ$ ) verificou-se, também, que as curvas são idênticas entre si. No entanto, consistem em curvas inclinadas, com valores menores de remanescência em comparação às curvas para  $0^\circ$  e  $180^\circ$ .

Figura 4.9 – Curvas de magnetização para a monocamada FM de permalloy com 50 nm de espessura. A orientação de  $H$  em relação ao eixo onde aplicou-se o campo magnético durante a deposição é indicada na própria imagem.

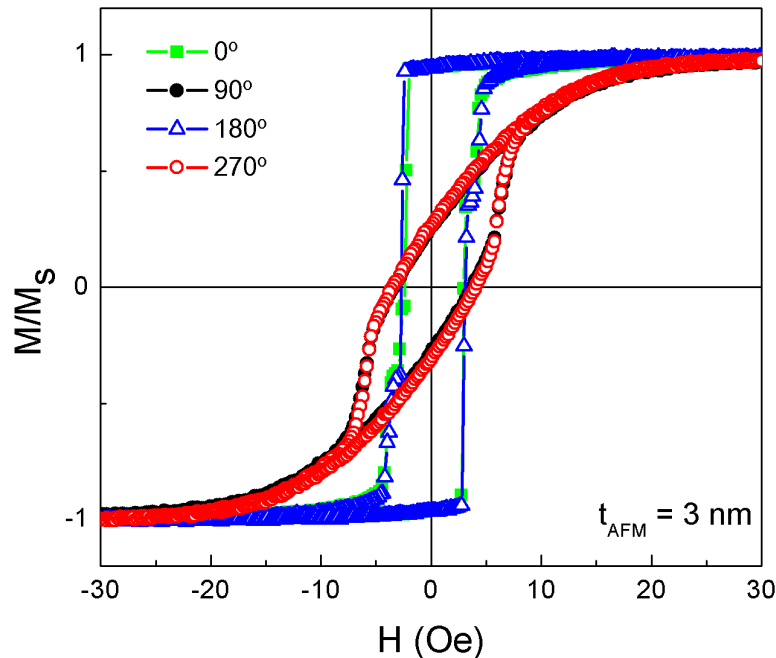


Fonte: Autora.

Assim, pode-se afirmar que nessa amostra coexistem duas configurações de fácil magnetização em sentidos opostos e um eixo duro. Isso já era esperado, uma vez que se trata de um filme ferromagnético, e reflete a existência de uma anisotropia uniaxial no plano, a qual foi induzida durante a deposição.

A figura 4.10 mostra quatro curvas de magnetização para a bicamada com  $t_{AFM} = 3$  nm. Inicialmente, esperava-se que nessa amostra existiria, além da uniaxial, uma anisotropia unidirecional. No entanto, pode-se ver que as curvas para  $0^\circ$  e  $180^\circ$  são idênticas e estão centradas na origem do eixo dos campos. Isso revela que 3 nm de FeMn não são suficientes para o aparecimento do *exchange bias*, como no trabalho de (CHOI et al., 2010), e que essa bicamada apresenta um comportamento típico de uma amostra em que a anisotropia uniaxial é predominante.

Figura 4.10 – Curvas de magnetização para a bicamada Py(50 nm)/FeMn(3 nm). A orientação de  $H$  em relação ao eixo onde aplicou-se o campo magnético durante a deposição é indicada na própria imagem.



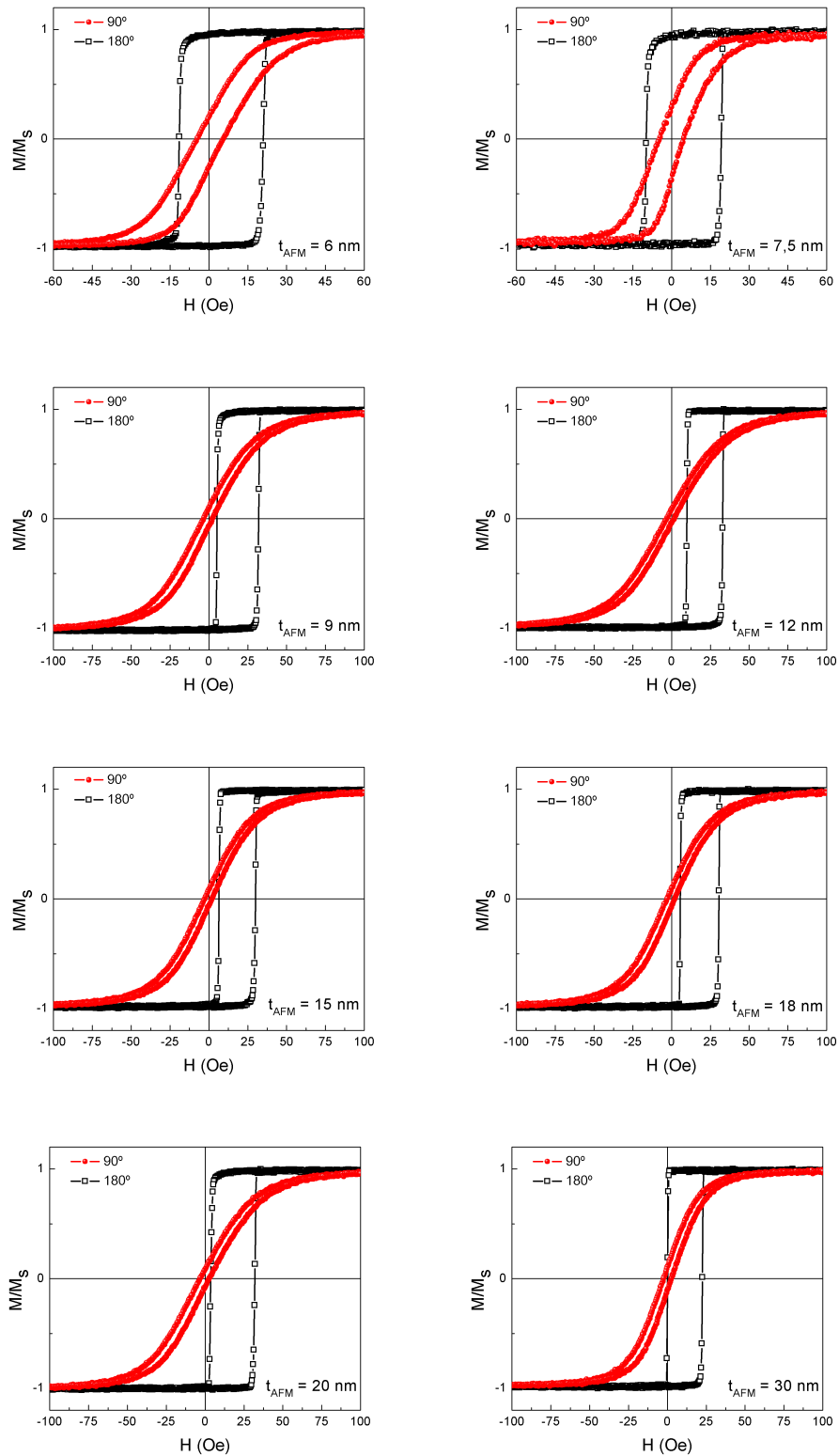
Fonte: Autora.

O *exchange bias* foi identificado nas bicamadas com  $t_{AFM}$  a partir de 6 nm por meio de sua característica mais bem conhecida - o deslocamento em campo das curvas de magnetização. Devido ao processo de crescimento das amostras, supõe-se que os eixos de anisotropia uniaxial e unidirecional (responsável pelo EB) estejam alinhados entre si e coincidam com o eixo no qual se aplicou o campo de *pinning*. Na figura 4.11, apresentam-se as curvas de magnetização, medidas em duas orientações perpendiculares, para as amostras que têm a camada AFM com espessura variando entre 6 e 30 nm.

O deslocamento de uma curva de magnetização para campos positivos significa que  $H$  foi aplicado antiparalelamente ( $180^\circ$ ) ao sentido do *exchange bias*. Quando  $H$  for aplicado paralelamente ( $0^\circ$ ) ao sentido do EB, deverá observar-se um deslocamento para campos negativos (KHANAL et al., 2014).

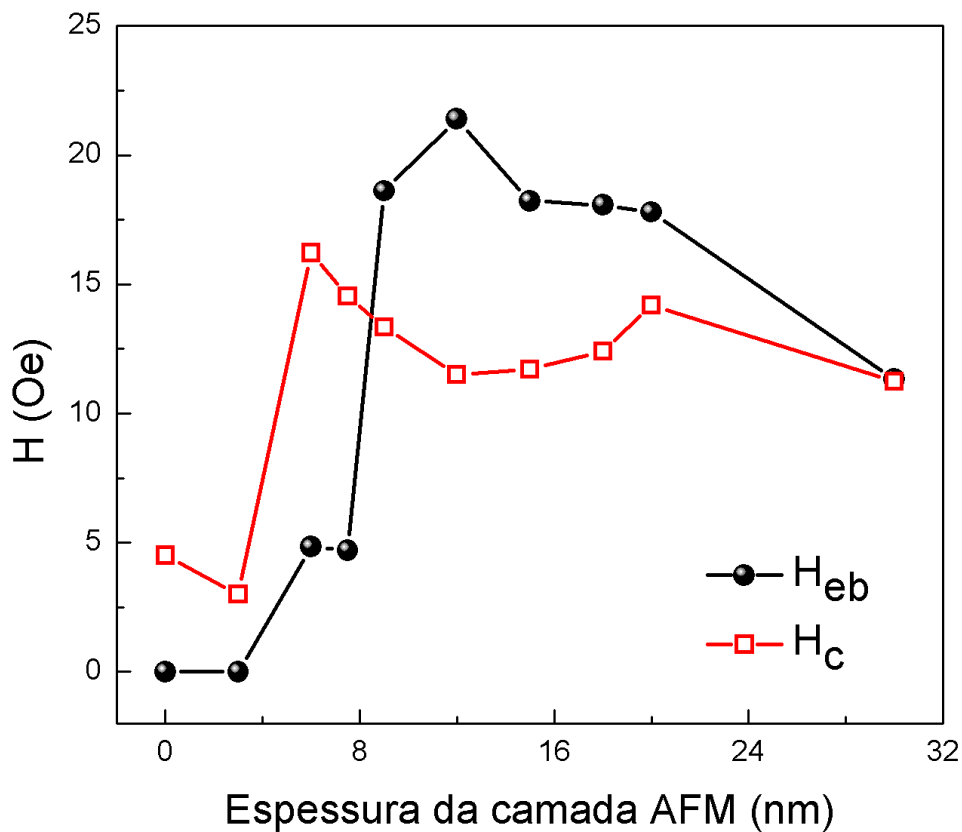
Como pode ser visto na figura 4.11, o deslocamento em campo, denominado campo de *exchange bias*, não tem o mesmo valor para todas as amostras. Obviamente isso reflete a escolha da espessura da camada antiferromagnética de FeMn. Para as medidas realizadas com  $H$  aplicado perpendicularmente ao eixo de *exchange bias* ( $90^\circ$ ), vê-se que as curvas de magnetização passam pela origem, de modo parecido ao que ocorre em um sistema puramente uniaxial.

Figura 4.11 – Curvas de magnetização para as bicamadas com  $t_{AFM}$  entre 6 e 30 nm. Para cada amostra, a orientação de  $H$  em relação ao eixo de anisotropia durante a medida é indicada na própria imagem, bem como a espessura de sua camada AFM. Observe que a escala para o eixo dos campos não é a mesma em todas as bicamadas.



A figura 4.12 expõe os campos de *exchange bias* e coercivo, extraídos das curvas de magnetização medidas na orientação  $180^\circ$ , em função da espessura da camada AFM. O EB surge em torno de  $t_{AFM} = 6$  nm ( $H_{eb} \approx 5$  Oe), assim, para as condições de crescimento escolhidas nesse trabalho, 6 nm é a espessura AFM crítica. Em outras palavras, é a espessura de FeMn necessária para o surgimento do acoplamento interfacial FM/AFM. Depois do aparecimento do efeito,  $H_{eb}$  aumenta passando por um valor máximo ( $\approx 21$  Oe) para  $t_{AFM} = 12$  nm e, então, diminui até  $\approx 11$  Oe para a camada AFM mais espessa do conjunto,  $t_{AFM} = 30$  nm.

Figura 4.12 – Evolução dos campos de *exchange bias* e coercivo em função da espessura da camada antiferromagnética.



Fonte: Autora.

Para estudos realizados em temperatura ambiente, têm-se observado, na maioria dos sistemas, que  $H_{eb}$  mantém-se constante quando  $t_{AFM}$  é maior que a espessura crítica (ALI; MARROWS; HICKEY, 2003; LI et al., 2017; XI; WHITE, 2000). Contudo, encontraram-se, na literatura, alguns resultados semelhantes aos da figura 4.12 tanto para medidas na

temperatura ambiente (POGOSSIAN et al., 2006; XI et al., 2001), quanto para baixas temperaturas (ALI; MARROWS; HICKEY, 2003). No trabalho de Haiwen Xi e colaboradores, por exemplo, o decréscimo de  $H_{eb}$  com o aumento de  $t_{AFM}$  está associado com o decréscimo do tamanho dos domínios AFM, ou tamanho de grãos AFM, com a espessura da bicamada policristalina (XI et al., 2001).

Quando o valor de  $H_{eb}$  satura em uma curva  $H_{eb} \times t_{AFM}$ , mantendo-se constante a partir da espessura crítica, possivelmente a interface FM/AFM (responsável pelo fenômeno EB) não é alterada com o aumento da espessura da camada AFM do sistema. Isto é, a interface FM/AFM e, conseqüentemente, o campo de *exchange bias* tornam-se independentes de  $t_{AFM}$  a partir da espessura crítica.

Considerando-se o comportamento de  $H_{eb}$  na figura 4.12, supõe-se que há uma mudança na interface das amostras com o aumento de  $t_{AFM}$ . Alguma alteração, na rugosidade interfacial ou nos tamanhos de grãos, por exemplo, pode ter ocorrido com o aumento de  $t_{AFM}$ , levando à redução de  $H_{eb}$ . De acordo com modelos baseados nas ideias de Mauri, é possível que surjam paredes de domínios planares para determinadas espessuras da camada AFM, o que causaria a redução de  $H_{eb}$  (MAURI et al., 1987b). No trabalho de Ali e colaboradores, entretanto, calculou-se que a largura de uma parede de domínio planar para o FeMn é de, aproximadamente, 28 nm (ALI; MARROWS; HICKEY, 2003). Desse modo, para o conjunto de bicamadas em questão, apenas a amostra com  $t_{AFM} = 30$  nm comportaria uma parede de domínio planar, o que leva a pensar que esse não deve ser o mecanismo que reduz  $H_{eb}$ .

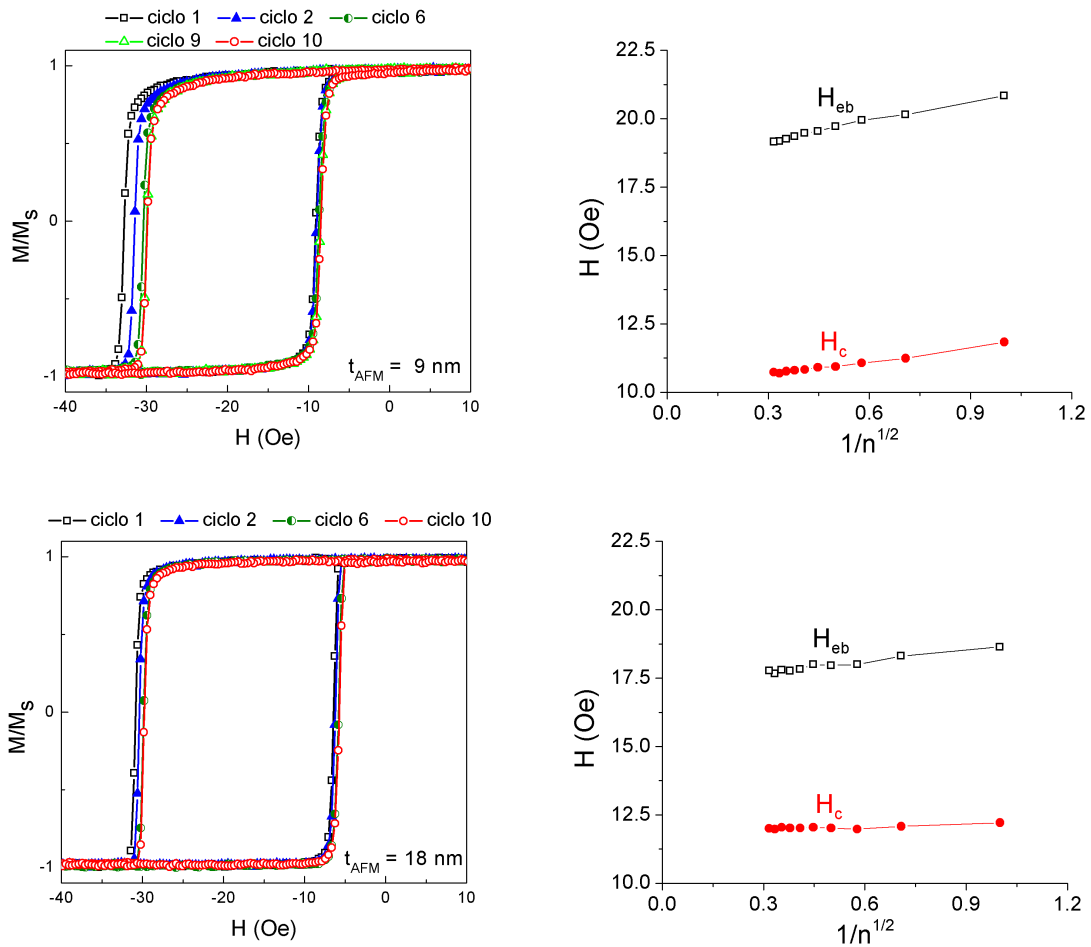
Na figura 4.12, é possível perceber, ainda, que  $H_c > H_{eb}$  na faixa de espessuras em que se dá o surgimento do *exchange bias*. Nas bicamadas com  $t_{AFM} < 9$  nm que apresentam EB, o acoplamento FM/AFM é fraco e a interpretação para  $H_c > H_{eb}$  pode ser feita adotando a ideia ilustrada na figura 2.13, ou seja, considerando uma interface FM/AFM dividida em grãos interfaciais estáveis e instáveis. Nas interfaces das bicamadas com  $t_{AFM} < 9$  nm devem existir mais grãos instáveis e, dessa forma, os grãos estáveis, por estarem em menor quantidade ou tamanho, não conseguem segurar a camada FM, o que resulta em valores pouco intensos para  $H_{eb}$ . Os grãos instáveis acompanham a camada FM na inversão da magnetização, o que resulta em um aumento no campo coercivo. A partir de  $t_{AFM} = 9$  nm, o EB se estabelece e, então, tem-se  $H_{eb} > H_c$ .

A fim de avaliar possíveis mudanças nos campos de *exchange bias* e coercivo, decorrentes de efeitos de treinamento, foram medidos 10 ciclos de histerese magnética subsequentes, na orientação  $0^\circ$ , para duas das bicamadas em estudo. Na figura 4.13, são mostrados alguns desses ciclos e a evolução de  $H_{eb}$  e  $H_c$  com o número do ciclo ( $n$ ). Para a bicamada com  $t_{AFM} = 9$  nm, ao considerar a diferença entre o primeiro e o décimo ciclo de histerese, observou-se uma mudança de  $\approx 1,7$  Oe em  $H_{eb}$  e de  $\approx 1,1$  Oe em  $H_c$ . Já para a bicamada com  $t_{AFM} = 18$  nm, constatou-se que  $H_c$  permanece praticamente inalterado e que o valor de  $H_{eb}$  sofre uma variação menor que 1 Oe, estabilizando-se no



sexto ciclo. Comparando-se esses resultados aos extraídos da literatura, apresentados na subseção 2.4.5, pode-se concluir que estas mudanças em  $H_{eb}$  e  $H_c$  não são expressivas, de forma que os efeitos de treinamento podem ser desconsiderados.

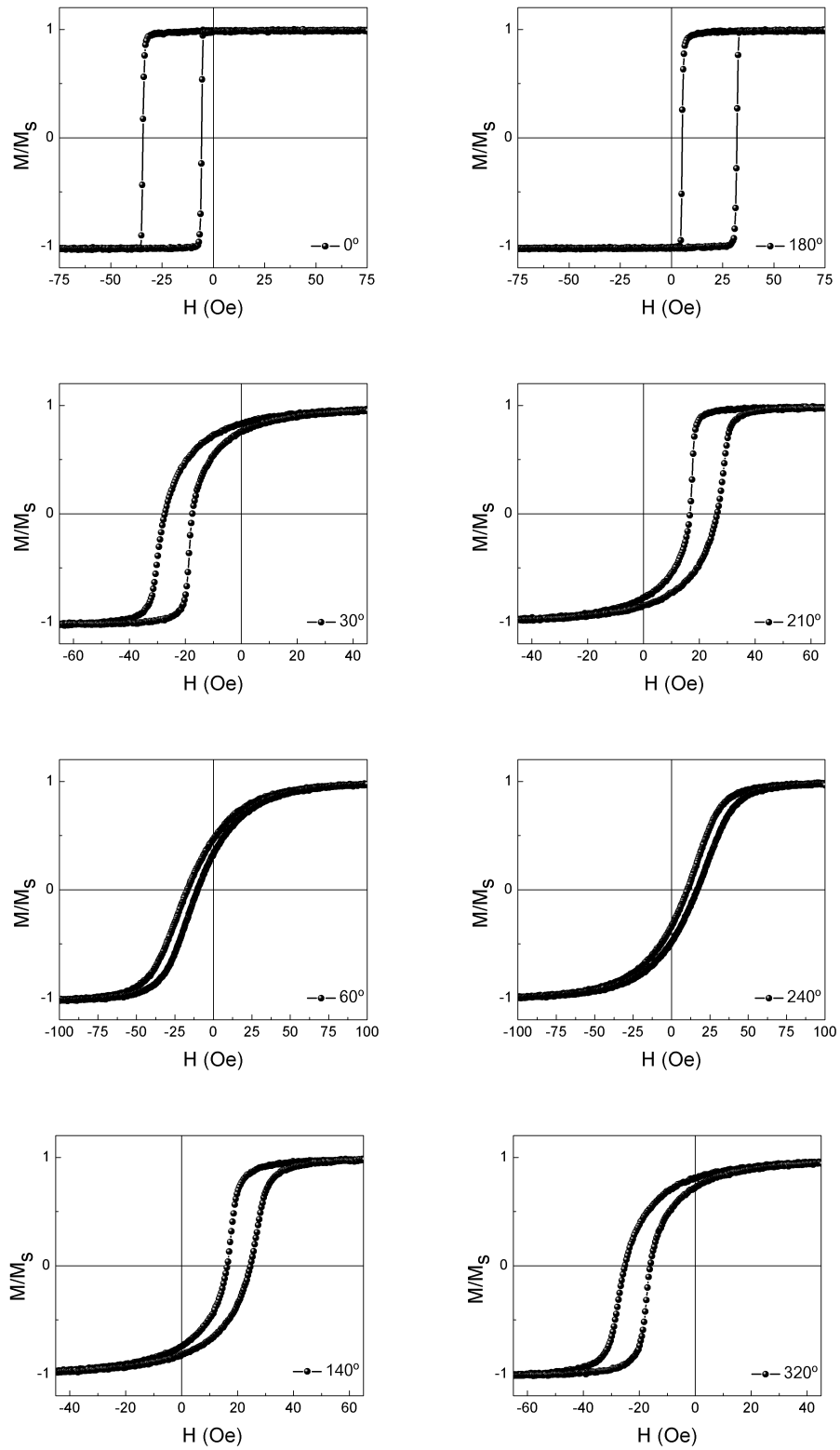
Figura 4.13 – Comparação entre curvas de magnetização subsequentes para as bicamadas com  $t_{AFM} = 9$  e 18 nm. Para cada uma das amostras apresenta-se a evolução de  $H_{eb}$  e  $H_c$  com o número do ciclo.



Fonte: Autora.

Para todas as bicamadas, foram feitas medidas de magnetização a cada  $10^\circ$  em relação ao eixo do campo magnético aplicado durante a deposição. Na figura 4.14, mostram-se algumas curvas, obtidas nas orientações indicadas, para a amostra com  $t_{AFM} = 9$  nm. Deixa-se claro que tais curvas de magnetização, bem como a análise de  $H_{eb}$  e  $H_c$  que será feita posteriormente, referem-se ao primeiro ciclo de histerese em cada uma das orientações. Dessa maneira, garante-se que os efeitos de treinamento, embora muito pequenos, não sejam levados em conta ao avaliar a evolução angular do EB.

Figura 4.14 – Curvas de magnetização, medidas nas orientações indicadas, para a bicamada com  $t_{AFM} = 9$  nm. Observe que a escala utilizada no eixo dos campos varia conforme a orientação.

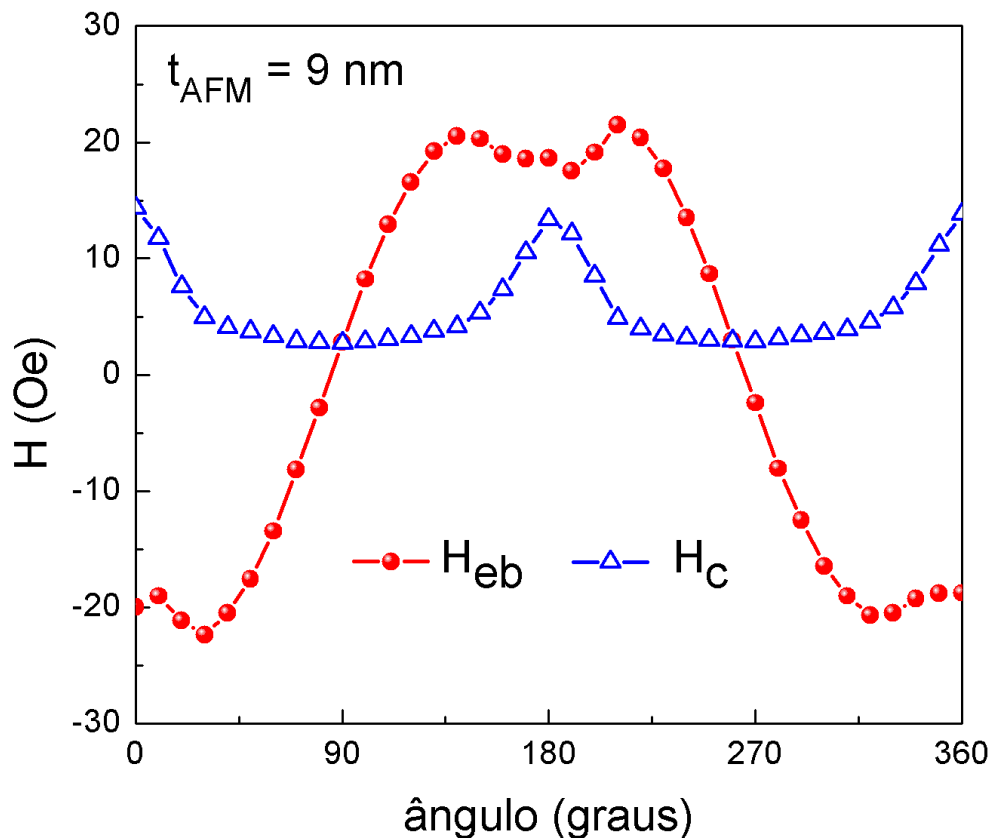


Fonte: Autora.

Na figura 4.14, encontram-se simetrias características de sistemas com EB, ou seja, marcas de uma anisotropia unidirecional. As curvas de magnetização, dispostas paralelamente, referem-se à medidas obtidas em orientações que diferem por  $180^\circ$ . Como apontado por Ambrose, percebe-se que se as operações  $+M \rightarrow -M$  e  $+H \rightarrow -H$  forem aplicadas às curvas de magnetização da coluna esquerda, por exemplo, os resultados serão as curvas da coluna direita (AMBROSE; SOMMER; CHIEN, 1997).

A análise da dependência angular do *exchange bias* (ADEB - *angular dependence of exchange bias*) possibilita o entendimento de questões fundamentais, esclarecendo a origem microscópica do efeito (CHOI; YOU; KIM, 2016). Na figura 4.15, tem-se a evolução angular completa de  $H_{eb}$  e  $H_c$  para a bicamada com  $t_{AFM} = 9$  nm e se vê que existe uma relação entre tais parâmetros e a orientação ( $\Theta$ ) em que o campo de medida é aplicado.

Figura 4.15 – Dependência angular de  $H_{eb}$  e  $H_c$  para a bicamada com  $t_{AFM} = 9$  nm. As linhas sólidas são apenas guias para os olhos.



Fonte: Autora.

Ao avaliar a evolução angular de  $H_{eb}$  e  $H_c$ , constata-se que estes parâmetros

compartilham propriedades básicas de simetria:  $H_{eb}(2\pi + \Theta) = H_{eb}(\Theta) = H_{eb}(-\Theta)$  e  $H_c(2\pi + \Theta) = H_c(\Theta) = H_c(-\Theta)$ . Além do mais, tanto o campo de *exchange bias*, quanto a coercividade possuem uma simetria adicional própria, dadas, respectivamente, por  $H_{eb}(\pi + \Theta) = -H_{eb}(\Theta)$  e  $H_c(\pi + \Theta) = H_c(\Theta)$ .

De forma geral, os resultados na figura 4.15 poderiam ser explicados pela abordagem tomada na referência (AMBROSE; SOMMER; CHIEN, 1997). Essa considera, de acordo com as simetrias adicionais citadas anteriormente, que as curvas para  $H_{eb}$  e  $H_c$  podem ser ajustadas por séries de cossenos ímpares e pares, respectivamente. Matematicamente escreve-se

$$H_{eb}(\Theta) = \sum_{m=\text{ímpar}} b_m \cos m\Theta \quad (4.2)$$

e

$$H_c(\Theta) = \sum_{m=\text{par}} b_m \cos m\Theta, \quad (4.3)$$

onde  $m$  é um número inteiro positivo e  $b_m$  é uma constante.

Essa abordagem faz uma descrição da dependência angular, mostrando que os campos de *exchange bias* (relacionado a termos ímpares) e coercivo (relacionado a termos pares) têm caráter unidirecional e uniaxial, respectivamente. Além disso, a equação 4.2 permite considerar que  $H_{eb}$  não tenha seus valores máximos - em módulo - nas orientações  $0^\circ$  e  $180^\circ$ .

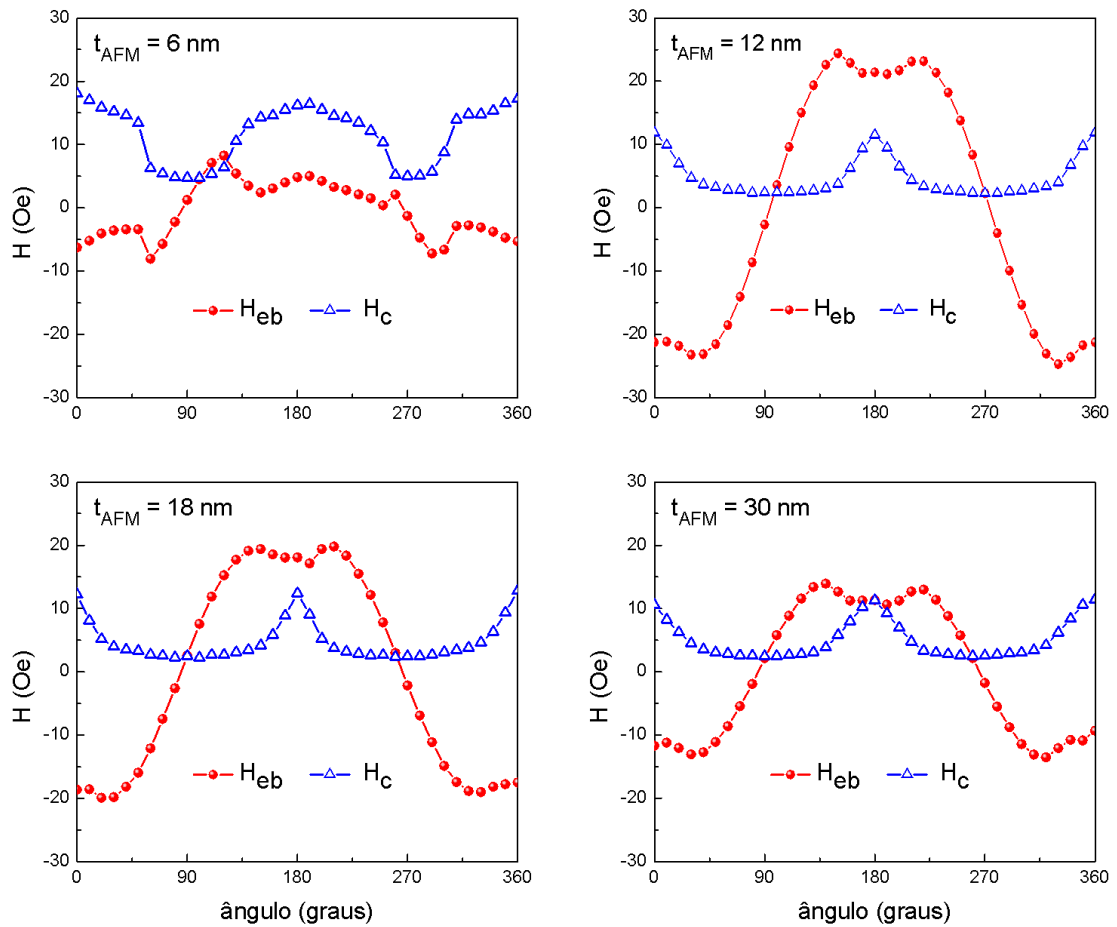
A dependência angular do *exchange bias* pode fornecer maiores informações a respeito do acoplamento interfacial FM/AFM, desde que não seja simplesmente ajustada por uma expansão em série de cossenos. Deve-se utilizar algum modelo que considere a estrutura de *spins* e as interações microscópicas nas camadas FM e AFM.

Na figura 4.16, apresenta-se a ADEB para as bicamadas com  $t_{AFM} = 6, 12, 18$  e  $30$  nm. Em uma primeira análise, nota-se que o comportamento das curvas para  $H_{eb}$  e  $H_c$  não varia para  $t_{AFM}$  a partir de  $9$  nm (figura 4.15) e que as diferentes amplitudes das curvas de  $H_{eb}(\Theta)$  devem-se à influência da camada AFM no acoplamento FM/AFM (FERNANDEZ-OUTON; O'GRADY, 2005; XI; WHITE, 2000).

Para  $t_{AFM} = 6$  nm, independente da orientação, os valores de  $H_c$  são maiores em comparação às outras bicamadas apresentadas na figura 4.16. Ademais, não há um pico agudo, próximo a  $180^\circ$ , na curva  $H_c(\Theta)$ , o que se vê é uma evolução suave da coercividade, a qual se assemelha a de um sistema em que predomina a anisotropia uniaxial, como o mostrado no trabalho de Ambrose já citado.

Ao fazer-se uma análise mais minuciosa da evolução angular - entre  $0^\circ$  e  $180^\circ$  - para as bicamadas com  $t_{AFM} = 6$  e  $18$  nm, na figura 4.17, conclui-se que ambas as curvas para  $H_{eb}(\Theta)$  se comportam da mesma forma, sendo que se difere entre elas a amplitude (maior para  $t_{AFM} = 18$  nm) e os ângulos em que ocorrem as mudanças de  $H_{eb}$ .

Figura 4.16 – Evolução angular de  $H_{eb}$  e  $H_c$  para as bicamadas com  $t_{AFM} = 6, 12, 18$  e  $30$  nm. As linhas sólidas são apenas guias para os olhos.



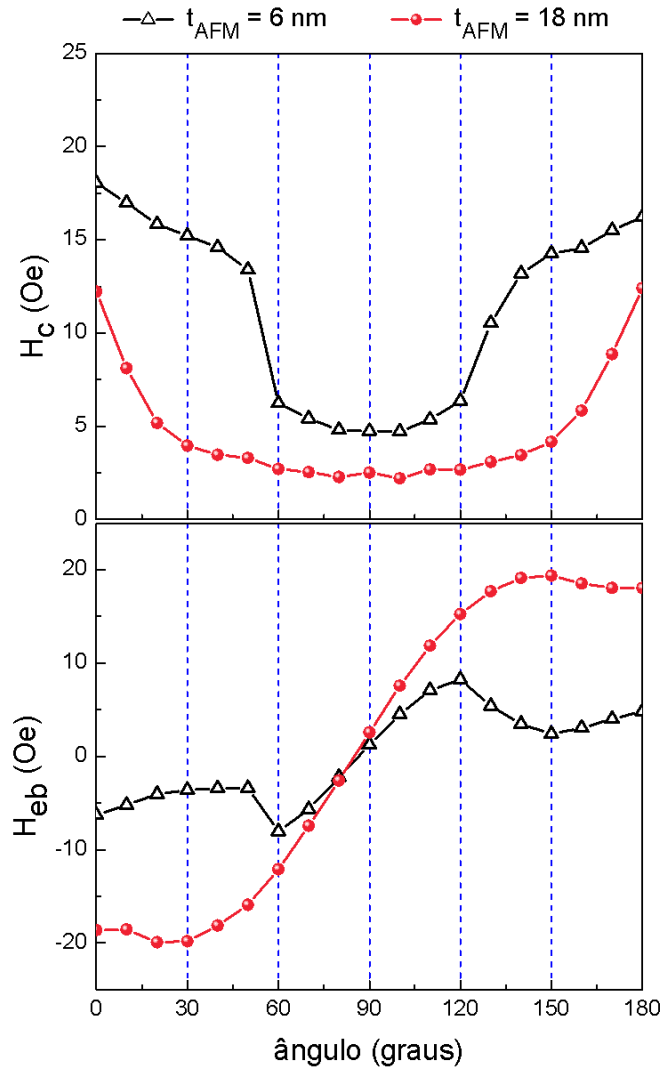
Fonte: Autora.

É possível perceber, na figura 4.17, que a localização do valor máximo (em módulo) para  $H_{eb}$  afasta-se da orientação  $0^\circ$  (onde supõe-se que  $H$  e o eixo fácil da bicamada estejam paralelos) quando a espessura da camada AFM é menor, como também foi visto na referência (XI; WHITE, 2000). Para  $t_{AFM} = 6$  e  $18$  nm, os valores máximos de  $H_{eb}$  estão localizados perto de  $60^\circ$  e  $30^\circ$ , respectivamente. Haiwen Xi e Robert M. White propuseram que o ângulo onde se encontra o valor máximo para o campo de *exchange bias* é determinado pela relação entre ele e a coercividade ao longo do eixo fácil (XI; WHITE, 1999). Além disso, pode ser visto, com clareza, que os valores máximos de  $H_{eb}$  são acompanhados por quedas na coercividade para as duas bicamadas.

As figuras 4.15, 4.16 e 4.17 revelam que independentemente de se estar trabalhando com camadas AFM finas ou espessas, a coercividade não se anula em nenhum ângulo de medida em uma curva  $H_c \times \Theta$ . Tal característica é difícil de ser reproduzida nos modelos e pode estar relacionada a não-colinearidade dos eixos de anisotropias uniaxial

e unidirecional.

Figura 4.17 – Evolução angular de  $H_{cb}$  e  $H_c$  para as bicamadas com  $t_{AFM} = 6$  e 18 nm. O eixo dos ângulos de medida varia entre  $0^\circ$  e  $180^\circ$  e as linhas sólidas são apenas guias para os olhos.



Fonte: Autora.

#### 4.3 PROPRIEDADES MAGNÉTICAS DINÂMICAS

A seguir, serão apresentados os resultados obtidos por meio de técnicas que utilizam altas frequências. Primeiramente, discutem-se as medidas de ressonância ferromagnética realizadas com uma frequência de excitação fixa por intermédio de uma cavidade ressonante. Na sequência, apresentam-se dados para uma banda larga de frequências, os quais foram obtidos por meio de uma guia de onda coplanar acoplada a um VNA. Por fim,

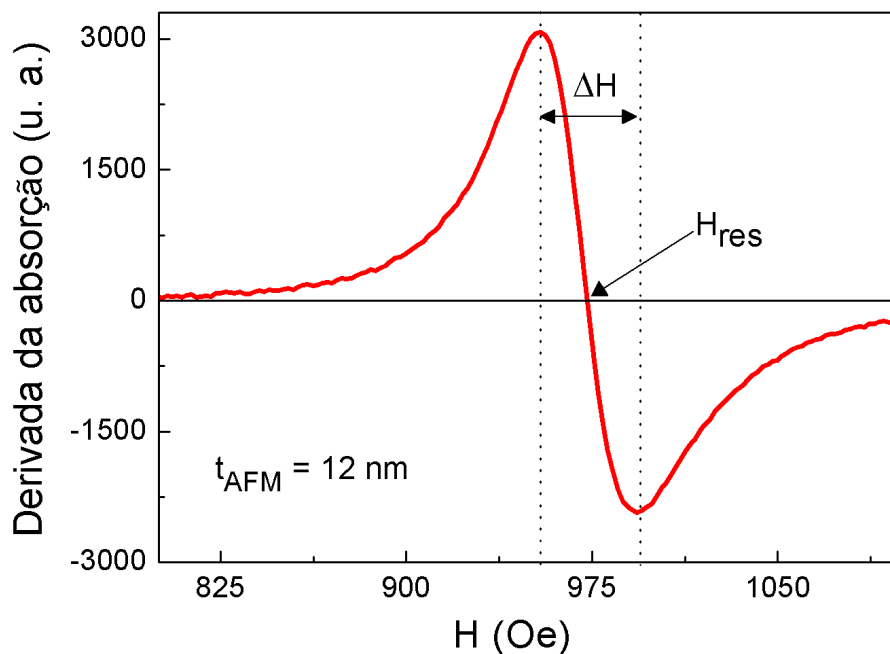
discutem-se alguns resultados envolvendo experimentos de FMR em baixas temperaturas, nos quais utilizou-se um espectrômetro *CryoFMR - NanoOsc* acoplado a um PPMS.

#### 4.3.1 Ressonância ferromagnética - banda-X

As medidas de ressonância ferromagnética na banda-X, frequência de excitação fixa em 9,87 GHz, foram obtidas através do espectrômetro *Bruker* descrito na subseção 3.4.1. Trabalhou-se em temperatura ambiente, fazendo o campo magnético estático  $H$ , aplicado no plano das amostras, variar entre 0 e 2 kOe. Como o objetivo era avaliar a evolução angular do campo de FMR, as medidas foram feitas para diferentes ângulos ( $\phi_H$ ) entre  $H$  e o eixo em que se aplicou o campo de *pinning* nas bicamadas.

Na figura 4.18, a título de exemplo, expõe-se o formato do sinal obtido num experimento de FMR, o qual é proporcional à derivada da potência média absorvida pela amostra. A medida foi feita na bicamada com  $t_{AFM} = 12$  nm e se refere a  $\phi_H = 0^\circ$ , ou seja, é resultado de  $H$  aplicado paralelamente ao eixo de aplicação do campo de *pinning*, onde supõe-se que estejam, também, os eixos de anisotropia uniaxial e unidirecional.

Figura 4.18 – Derivada da absorção em função do campo magnético estático  $H$ , medida em  $\phi_H = 0^\circ$ , para a bicamada com  $t_{AFM} = 12$  nm. O campo de ressonância ferromagnética (973 Oe) e a largura de linha (40 Oe) estão indicados.



A partir de um espectro como o anterior é possível obter dois parâmetros característicos de uma medida de FMR: o campo de ressonância ferromagnética ( $H_{res}$ ), definido como o valor de campo onde a curva corta o eixo zero, e a largura de linha ( $\Delta H$ ), definida como a distância entre os picos. Esses parâmetros, indicados na figura 4.18, são determinados pela dinâmica da magnetização de um sistema magnético. A largura de linha permite identificar os mecanismos de relaxação presentes (KERN et al., 2016) e o campo de FMR contém informações sobre campos de anisotropias, interações entre camadas e efeitos de interface, por exemplo. Nesse trabalho, a evolução angular de  $H_{res}$  ajudará a entender o fenômeno *exchange bias* em bicamadas FM/AFM.

As figuras 4.19 e 4.20 contêm curvas da derivada da absorção em função de  $H$ , medidas em diferentes ângulos  $\phi_H$ , para as bicamadas com  $t_{AFM} = 6$  e 18 nm, respectivamente. Fica claro, portanto, que o campo de ressonância ferromagnética varia de acordo com o ângulo  $\phi_H$  em que a medida foi feita. Ademais, já nessas figuras, é possível perceber que a evolução angular de  $H_{res}$  tem relação com a espessura da camada anti-ferromagnética da amostra. As curvas expostas para as duas bicamadas referem-se aos mesmos ângulos, no entanto, observam-se comportamentos distintos. Para  $t_{AFM} = 18$  nm, mostrou-se uma região menor no eixo H a fim de facilitar a visualização das curvas.

Figura 4.19 – Derivada da absorção em função do campo magnético estático  $H$  para a bicamada com  $t_{AFM} = 6$  nm. Como indicado na própria imagem, cada medida refere-se a um ângulo  $\phi_H$ .

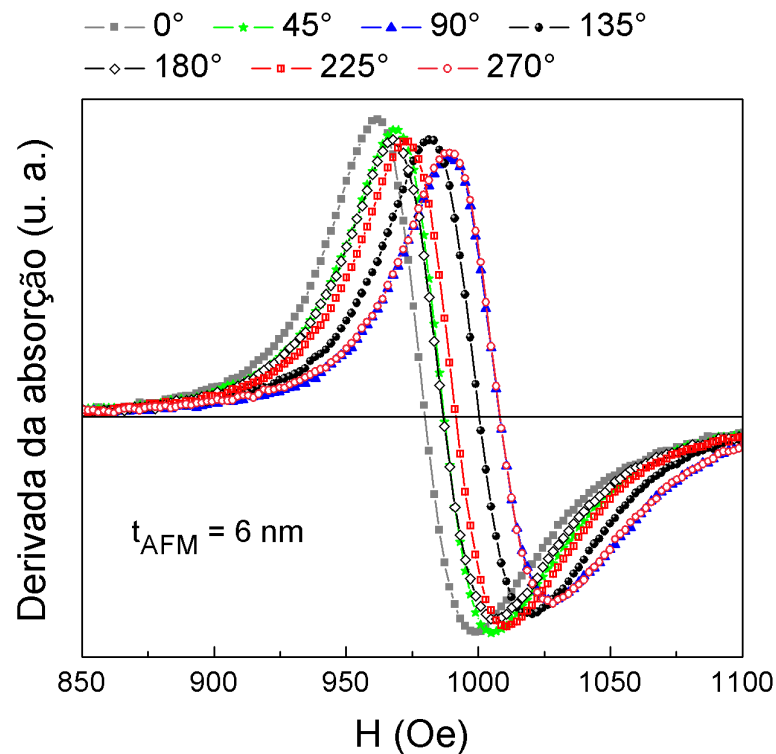
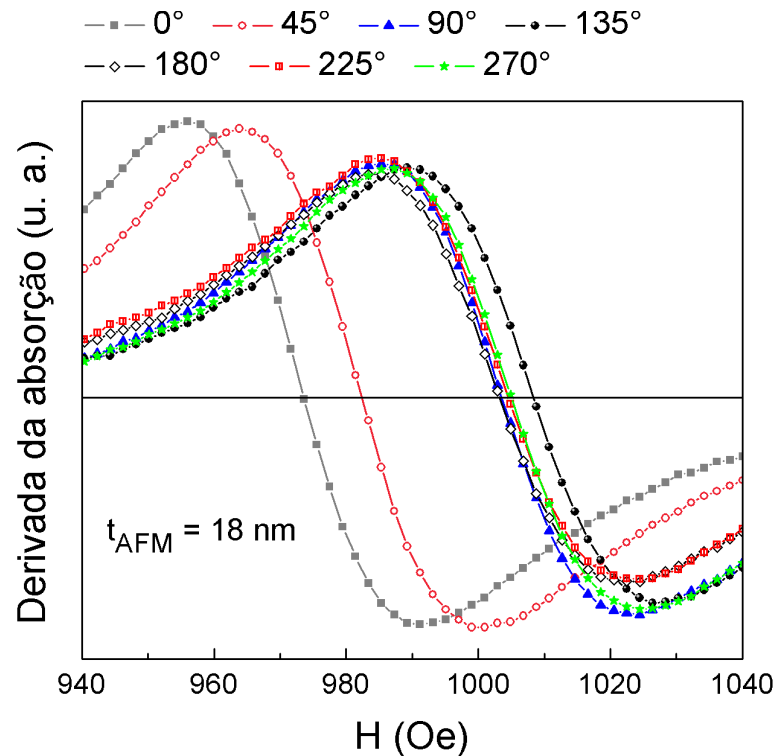




Figura 4.20 – Derivada da absorção em função do campo magnético estático  $H$  para a bicamada com  $t_{AFM} = 18$  nm. Como indicado na própria imagem, cada medida refere-se a um ângulo  $\phi_H$ .

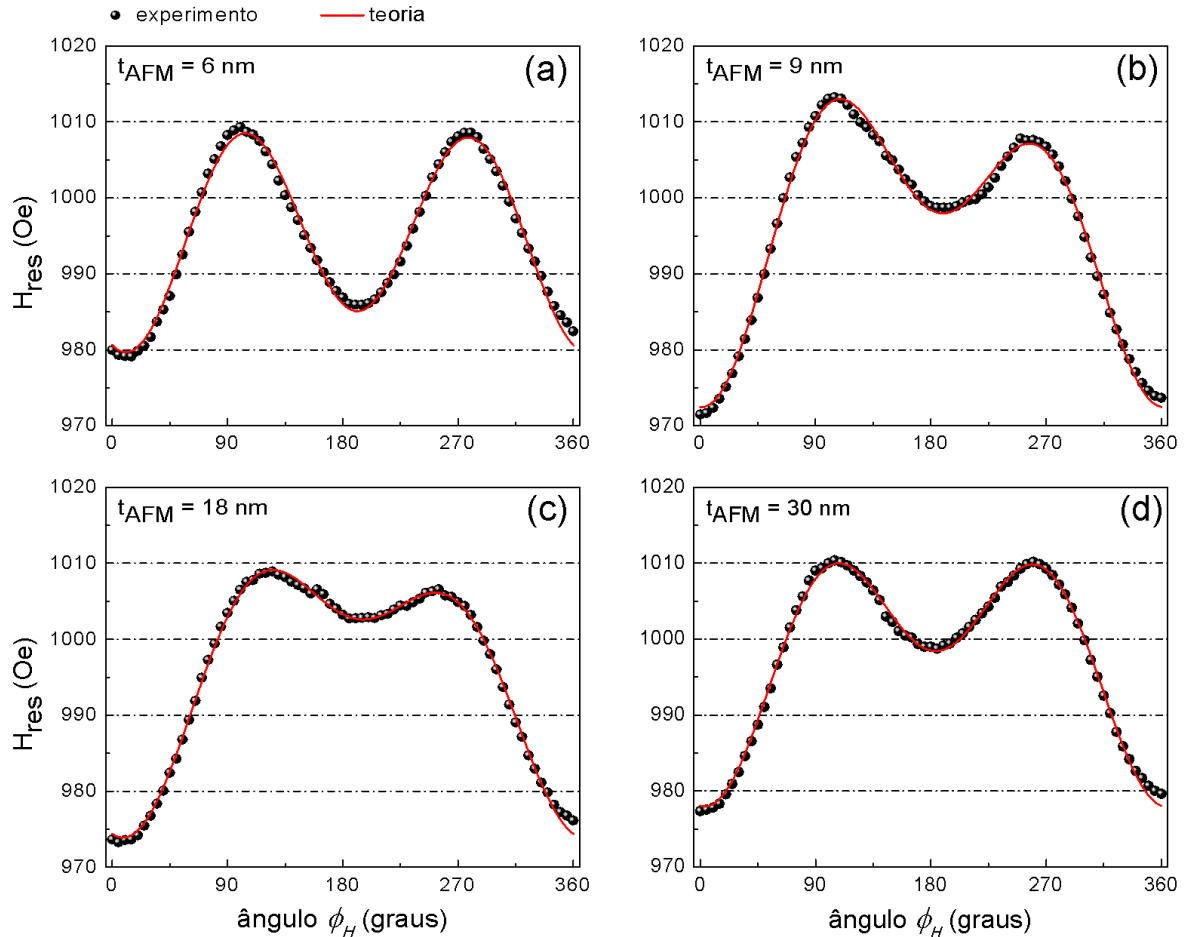


Fonte: Autora.

A dependência angular de  $H_{res}$  foi extraída para cada uma das bicamadas FM/AFM, utilizando-se um *step*  $\Delta\phi_H = 5^\circ$ . As figuras 4.21 (a - d) mostram os resultados obtidos para as bicamadas com  $t_{AFM} = 6, 9, 18$  e  $30$  nm, sendo que as curvas com símbolos referem-se aos dados experimentais, já as com linhas sólidas (em vermelho) referem-se à descrição teórica feita com o modelo que será discutido adiante.

Independentemente de um modelo para descrever os dados experimentais, algumas observações podem ser apontadas. Para a bicamada com  $t_{AFM} = 6$  nm, figura 4.21 (a), identifica-se um comportamento similar ao que tipicamente é encontrado para ferromagnetos (GRAET et al., 2009). Isto é, tem-se uma curva simétrica, na qual os valores de  $H_{res}$  para  $\phi_H = 0^\circ$  e  $\phi_H = 180^\circ$  são próximos. Conclui-se, assim, que para essa espessura da camada AFM o acoplamento FM/AFM presente na interface ainda é fraco, e a anisotropia uniaxial, oriunda da camada de permalloy, predomina. Essa conclusão é reforçada ao considerar-se a curva de magnetização dessa amostra, figura 4.11.

Figura 4.21 – Dependência angular de  $H_{res}$  para as bicamadas com  $t_{AFM} = 6, 9, 18$  e  $30$  nm. As curvas com símbolos representam os dados experimentais. As curvas com linhas contínuas (em vermelho) representam a descrição teórica discutida no texto.



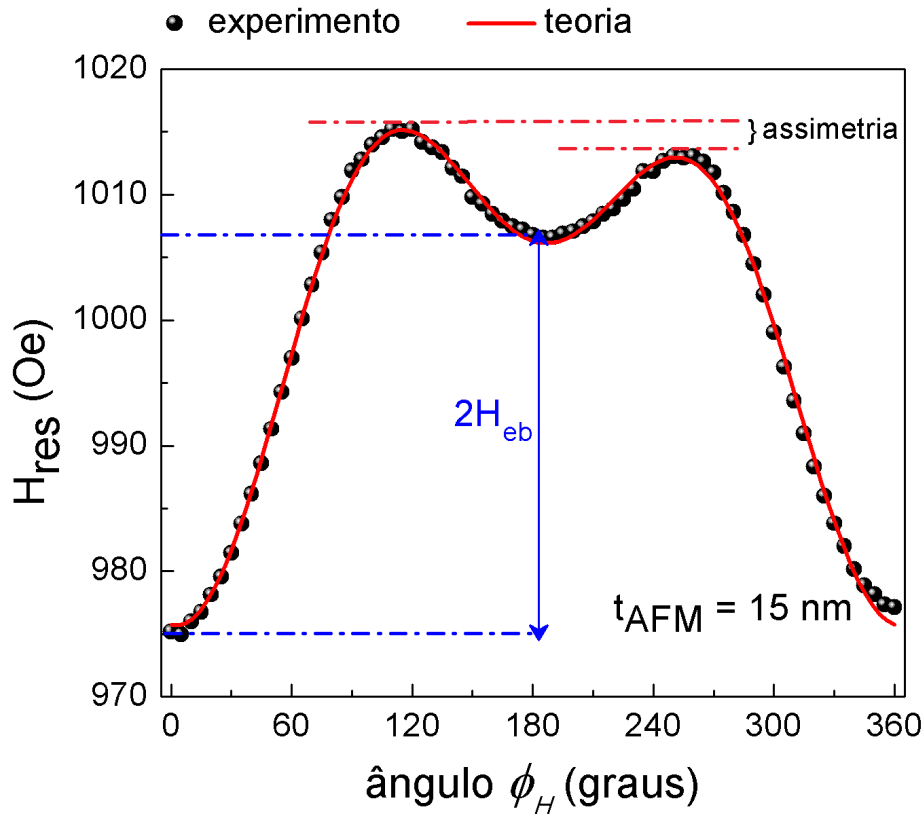
Fonte: Autora.

Ao referir-se às amostras que têm a camada AFM a partir de 9 nm, para as quais as curvas de magnetização deslocam-se completamente no eixo dos campos, as peculiaridades de uma anisotropia unidirecional passam a ser reconhecidas na forma da variação angular de  $H_{res}$ . Nesse caso, os valores de  $H_{res}$  para  $\phi_H = 0^\circ$  e  $\phi_H = 180^\circ$  são bem diferentes e, como será mostrado, isso tem relação com o valor do campo de *exchange bias*. Além disso, nas figuras 4.21 (b) e (c), constata-se uma assimetria com respeito a  $\phi_H = 180^\circ$ , a qual visivelmente é maior para  $t_{AFM} = 9$  nm.

Na figura 4.22, destaca-se tal assimetria e a maneira de se obter  $H_{eb}$  a partir de uma curva  $H_{res} \times \phi_H$  para a bicamada com  $t_{AFM} = 15$  nm. Essa assimetria tem sido observada em diferentes sistemas - bicamadas, tricamadas e multicamadas (CHOI et al., 2010; GRAET et al., 2009; KHANAL et al., 2014; PIRES et al., 2007) e é atribuída a um desalinhamento entre as direções das anisotropias uniaxial e unidirecional, o qual pode ter

origem em diferentes razões.

Figura 4.22 – Dependência angular de  $H_{res}$  para a bicamada com  $t_{AFM} = 15$  nm. A maneira como obter  $H_{eb}$  e a existência de uma assimetria com relação a  $\phi_H = 180^\circ$  estão indicadas.



Fonte: Autora.

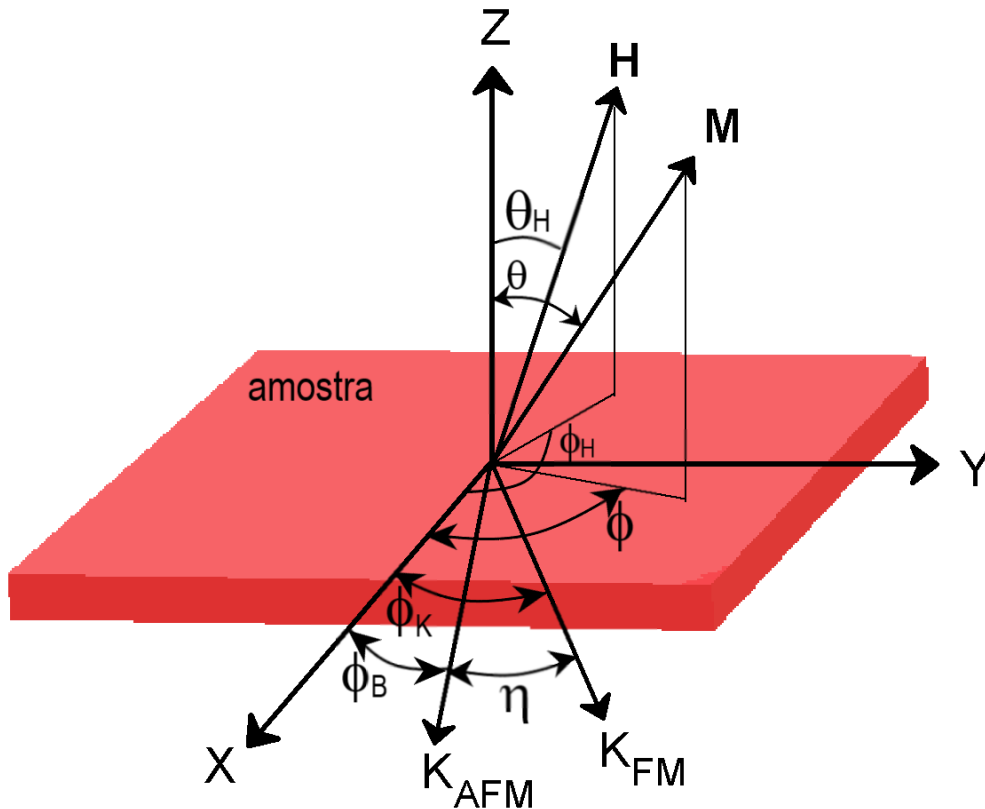
Um artigo publicado por Choi, referente à tricamadas de NiFe(19 nm)/FeMn/CoFe(19 nm), relata um desalinhamento entre os eixos das anisotropias uniaxial e unidirecional para determinadas espessuras da camada AFM. Os resultados apontaram um maior ângulo de desalinhamento para  $t_{AFM} = 5$  nm, espessura necessária para se induzir o *exchange bias* no referido sistema. Observou-se, ainda, que para maiores espessuras da camada AFM o ângulo de desalinhamento convergiu para zero (CHOI et al., 2010).

Para o conjunto de bicamadas estudado nessa tese, certamente, também existe uma relação entre a espessura da camada AFM e a assimetria na curva da dependência angular de  $H_{res}$ . Quando a anisotropia unidirecional está estabelecida,  $t_{AFM} = 9$  nm, identifica-se que a assimetria é mais acentuada. Para a camada AFM mais espessa que foi produzida,  $t_{AFM} = 30$  nm, já não se percebe essa característica. Com a finalidade de assegurar a existência de um desalinhamento entre os eixos de anisotropias das bicamadas que exibem a assimetria nas curvas  $H_{res} \times \phi_H$ , e poder quantificá-lo, faz-se necessário

um modelo que descreva os dados experimentais.

Adaptou-se a esse trabalho o modelo proposto por Choi e colaboradores, considerando que a energia livre magnética, para um sistema com *exchange bias*, pode ser escrita como a soma dos termos que correspondem à energia Zeeman e às energias de anisotropias magnetostática, uniaxial, unidirecional e rodável (CHOI et al., 2010). Como mostrado na figura 4.23, assume-se que os eixos de anisotropias das camadas FM e AFM estão no plano da amostra, mas podem não ser colineares ( $\eta$  indica o ângulo de desalinhamento entre eles).

Figura 4.23 – Sistema de coordenadas esféricas utilizado para descrever a orientação da magnetização, do campo magnético estático e das anisotropias FM e AFM. Observe que  $\eta$  é o ângulo de desalinhamento entre os eixos de anisotropias.  $x$  é paralelo à direção de aplicação do campo de *pinning*.



Fonte: Autora.

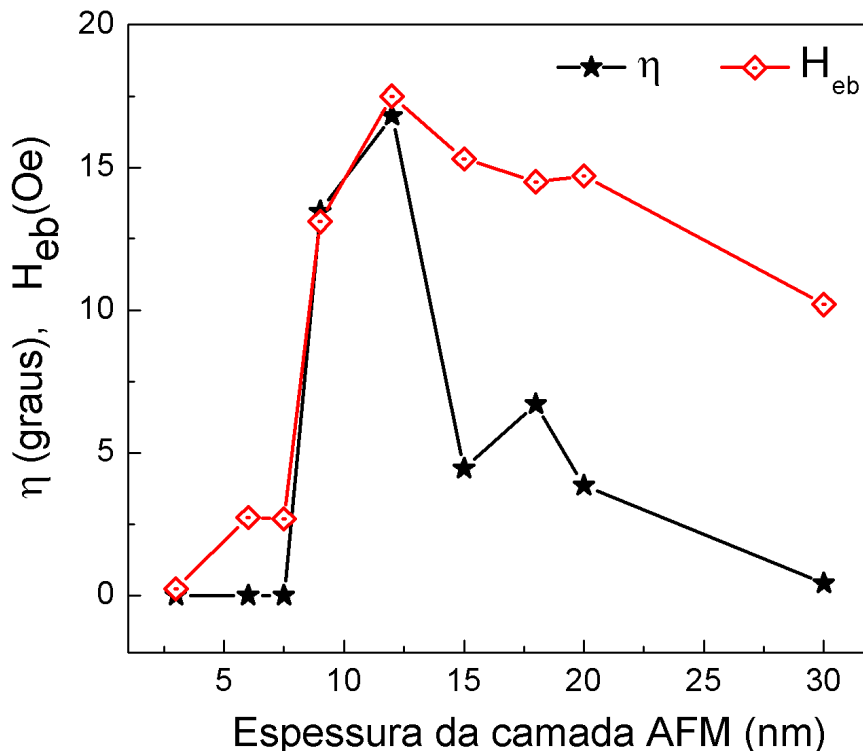
A partir da condição de ressonância ferromagnética proposta por Smit e Beljers, discutida na seção 2.6.2, aplicada ao caso em que  $\theta = \theta_H = \pi/2$  e  $\phi = \phi_H$ , é possível escrever o campo de ressonância como:

$$H_{res} \cong \frac{(2\pi f)^2}{\gamma^2} \frac{1}{4\pi M_S} - H_{eb} \cos(\phi_H - \phi_B) - H_K \cos 2(\phi_H - \phi_K) - H_{rod}. \quad (4.4)$$

Por meio dessa equação, os parâmetros  $H_K$  (campo de anisotropia uniaxial),  $H_{eb}$ ,  $H_{rod}$  (campo de anisotropia rodável) e  $\eta = \phi_K - \phi_B$  foram determinados realizando-se ajustes às medidas, sendo que os ângulos citados estão definidos na figura 4.23. O termo  $H_{rod}$  produz um deslocamento da curva  $H_{res} \times \phi_H$  ao longo do eixo de  $H_{res}$  e, geralmente, é associado à presença de grãos interfaciais instáveis.

Nas figuras 4.21 e 4.22, nota-se que existe uma boa concordância entre a descrição teórica, feita com a equação 4.4, e os dados experimentais. Os valores de  $H_{eb}$  e  $\eta$ , obtidos por meio dos ajustes, estão reunidos na figura 4.24. Para  $t_{AFM}$  menor que 9 nm não se observou a assimetria que sugere um desalinhamento entre os eixos de anisotropias uniaxial e unidirecional. Todavia, as curvas para  $t_{AFM}$  a partir de 9 nm foram melhor reproduzidas ao considerar-se o desalinhamento. Como pode ser visto,  $\eta$  apresenta-se mais intenso para as bicamadas com  $t_{AFM} = 9$  e 12 nm, convergindo para zero conforme a espessura da camada AFM aumenta.

Figura 4.24 – Valores obtidos para  $H_{eb}$  e  $\eta$  por meio dos ajustes feitos com a equação 4.4. O ângulo de desalinhamento  $\eta$  é zero para as bicamadas com  $t_{AFM}$  menor que 9 nm.



Fonte: Autora.

Esse resultado pode ser comparado aos dados publicados por (CHOI et al., 2010). Tais autores sugerem que a combinação de uma anisotropia AFM fraca com uma frustração

magnética, devida à imperfeições estruturais na interface FM/AFM, seria a chave para a explicação da não-colinearidade de anisotropias em um sistema com EB.

De acordo com os resultados aqui expostos, é plausível separar nosso conjunto de bicamadas em três subconjuntos:

1. Camadas AFM finas ( $t_{AFM} < 9$  nm) - as bicamadas comportam-se, praticamente, como monocamadas FM.
2. Camadas AFM intermediárias ( $9 \leq t_{AFM} \leq 18$  nm) - o EB está estabelecido e apresenta valores intensos. Porém, supõe-se que nessa faixa de espessuras a anisotropia AFM ainda é fraca, o que leva ao aparecimento de um desalinhamento.
3. Camadas AFM espessas ( $t_{AFM} \geq 20$  nm) - a anisotropia AFM é maior e o desalinhamento aproxima-se de zero.

De uma forma geral, as curvas de  $\eta$  e  $H_{eb}$  em função de  $t_{AFM}$  têm o mesmo comportamento, assim como na referência (POGOSSIAN et al., 2006). Pode-se admitir que os motivos que levam à diminuição de  $H_{eb}$  com o aumento de  $t_{AFM}$ , discussão apresentada com a figura 4.12, são os mesmos que contribuem para as variações da colinearidade entre os eixos das anisotropias FM e AFM. Na figura 4.6 (b), nota-se que o tamanho médio de grão cristalino do FeMn aumenta com a espessura da camada de FeMn, o que pode provocar uma mudança na interface e, conseqüentemente, influenciar nos valores de  $\eta$  e  $H_{eb}$ .

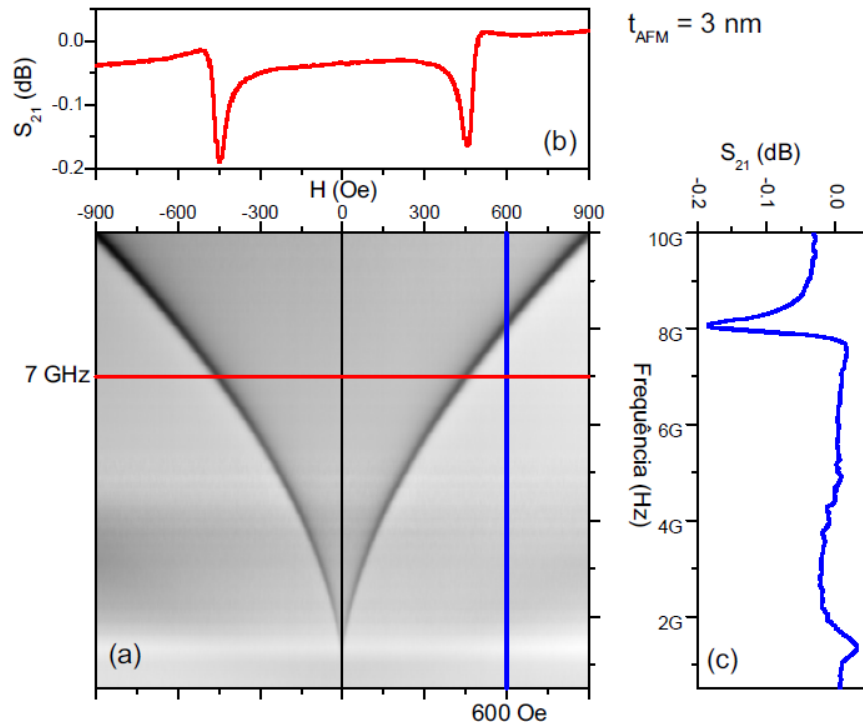
#### 4.3.2 Ressonância ferromagnética - banda larga

Para a caracterização magnética das amostras numa banda larga de frequências utilizou-se o *setup* descrito na subseção 3.4.2. As medidas de todas as bicamadas foram realizadas com o campo magnético estático variando de +950 Oe até -950 Oe, aproximadamente. Para cada valor de  $H$  (aplicado no mesmo eixo de aplicação do campo de *pinning*) foi feita uma varredura em frequência, de 500 MHz até 10 GHz, medindo-se o parâmetro de transmissão  $S_{21}$ .

Na figura 4.25, apresenta-se o espectro de absorção para a bicamada com  $t_{AFM} = 3$  nm. Na parte (a), os dados estão plotados em um gráfico 3D, no qual os eixos  $x$ ,  $y$  e  $z$  correspondem ao campo magnético estático, à frequência do campo alternado e ao parâmetro  $S_{21}$ , respectivamente. As regiões mais escuras do gráfico representam uma menor transmissão de energia da porta 1 para a porta 2 da CPW. Essas são, portanto, as regiões do espectro nas quais ocorre a maior absorção de micro-ondas pela amostra, devido à ressonância ferromagnética. As figuras 4.25 (b) e (c) mostram, respectivamente, um corte na horizontal (linha vermelha – 7 GHz) e um corte na vertical (linha azul – 600

Oe) do gráfico em 3D. Esse procedimento permite analisar o parâmetro  $S_{21}$  em função de  $H$  e em função da frequência separadamente.

Figura 4.25 – Espectro de absorção para a bicamada com  $t_{AFM} = 3$  nm. (a) Parâmetro  $S_{21}$  em função da frequência e do campo magnético estático (gráfico 3D com  $S_{21}$  no eixo z). (b)  $S_{21}$  em função de  $H$  para uma determinada frequência (linha vermelha – 7 GHz). (c)  $S_{21}$  em função da frequência para um determinado  $H$  (linha azul – 600 Oe).

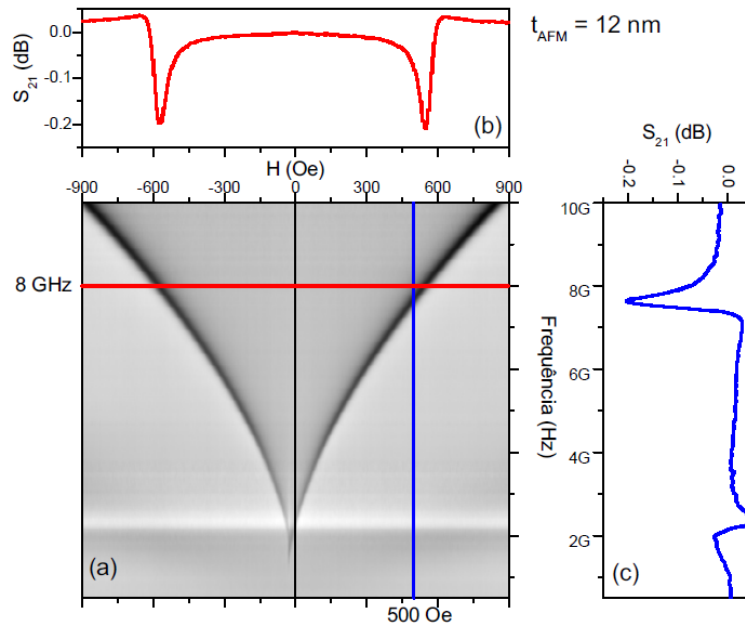


Fonte: Autora.

Na figura 4.25 (a), vê-se que a curva está centrada na origem do eixo dos campos. Esse comportamento assemelha-se ao que se obtém em medidas ao longo do eixo fácil de amostras puramente FM nas quais a anisotropia uniaxial é predominante, por exemplo monocamadas de permalloy (KERN et al., 2016; SILVA et al., 2017). O resultado acima vai ao encontro dos demais resultados para essa bicamada. Ou seja, 3 nm de FeMn não são suficientes para o aparecimento do *exchange bias* e nessa bicamada prevalece a anisotropia uniaxial, devido à camada FM de 50 nm de permalloy.

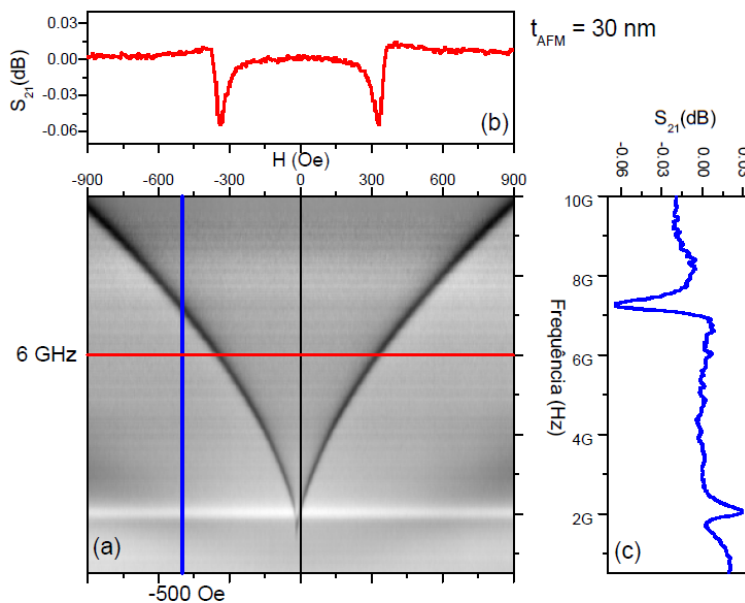
Assim como nas outras técnicas de caracterização magnética, nessa técnica foi identificada a existência do EB em todas as bicamadas com  $t_{AFM}$  a partir de 6 nm. Nas figuras 4.26 e 4.27, por exemplo, são mostrados os espectros de absorção para as bicamadas com  $t_{AFM} = 12$  e 30 nm, respectivamente. A presença do *exchange bias* pode ser constatada pelo deslocamento das curvas (parte (a) das figuras) no eixo dos campos, o qual relaciona-se ao valor de  $H_{eb}$  e, nesse caso, é maior para a bicamada com  $t_{AFM} = 12$  nm. Como exposto nas figuras 4.12 e 4.24, essa é a bicamada do conjunto com maior  $H_{eb}$ .

Figura 4.26 – Espectro de absorção para a bicamada com  $t_{AFM} = 12$  nm. (a) Parâmetro  $S_{21}$  em função da frequência e do campo magnético estático (gráfico 3D com  $S_{21}$  no eixo z). (b)  $S_{21}$  em função de  $H$  para uma determinada frequência (linha vermelha – 8 GHz). (c)  $S_{21}$  em função da frequência para um determinado  $H$  (linha azul – 500 Oe).



Fonte: Autora.

Figura 4.27 – Espectro de absorção para a bicamada com  $t_{AFM} = 30$  nm. (a) Parâmetro  $S_{21}$  em função da frequência e do campo magnético estático (gráfico 3D com  $S_{21}$  no eixo z). (b)  $S_{21}$  em função de  $H$  para uma determinada frequência (linha vermelha – 6 GHz). (c)  $S_{21}$  em função da frequência para um determinado  $H$  (linha azul – -500 Oe).

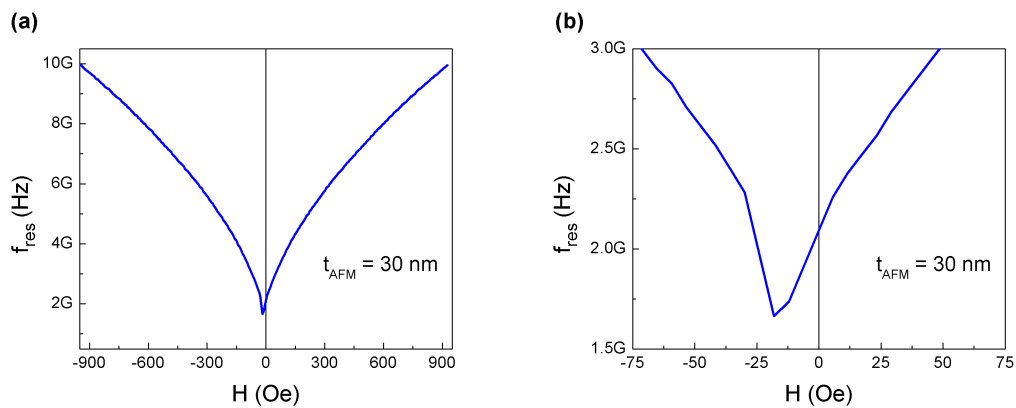


Fonte: Autora.



É possível perceber, nos espectros anteriores, que o aumento do campo magnético estático desloca a ressonância para frequências mais altas, o que está de acordo com a teoria da FMR. Na figura 4.28, essa relação de dispersão é mostrada em um gráfico 2D,  $f_{res} \times H$ , para a bicamada com  $t_{AFM} = 30$  nm. Os valores de  $f_{res}$  no gráfico correspondem aos valores mínimos de  $S_{21}$  e foram obtidos por meio das curvas  $S_{21} \times f$  para cada  $H$ . Através da inclinação de uma curva  $f_{res}^2 \times H$  pode-se calcular a magnetização de saturação (CIUREANU et al., 1998; SILVA et al., 2017). Para essa bicamada, por exemplo, obteve-se  $M_S \approx 1044$  emu/cc, o que é plausível para o permalloy.

Figura 4.28 – (a) Relação de dispersão para a bicamada com  $t_{AFM} = 30$  nm. (b) Região em que ocorre a inversão da magnetização da amostra.



Fonte: Autora.

Ainda a respeito dos espectros discutidos nessa subseção, em especial às partes (c) das figuras 4.25, 4.26 e 4.27, destaca-se que os picos próximos da frequência 2 GHz não se tratam de respostas magnéticas das amostras. Os mesmos não têm dependência em  $H$  e podem ter origem quando a guia de onda é acoplada ao VNA.

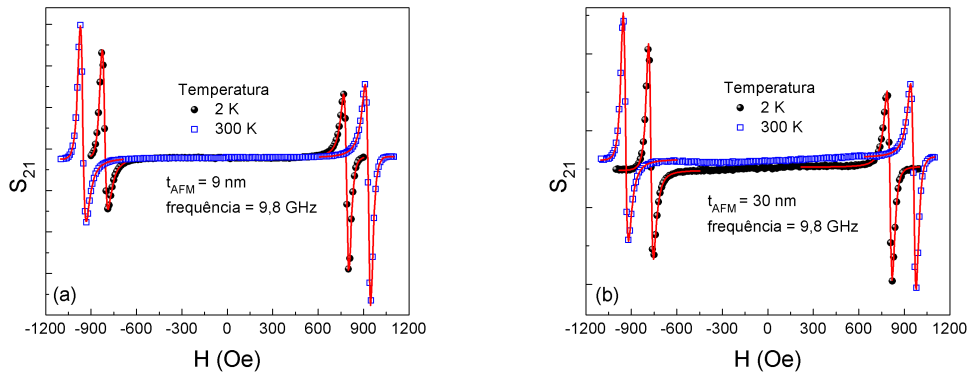
### 4.3.3 Ressonância ferromagnética em função da temperatura

Os experimentos de ressonância ferromagnética em função da temperatura (2 K - 300 K) foram realizados nas amostras com  $t_{AFM} = 9$  e 30 nm, utilizando o sistema de medidas descrito na subseção 3.4.3. Em cada temperatura selecionada mediu-se o parâmetro  $S_{21}$  para diferentes frequências de excitação. Para cada frequência, fez-se o campo magnético  $H$ , aplicado ao longo do eixo do campo de *pinning*, variar de um determinado valor positivo para um valor negativo.

De maneira geral, os espectros obtidos para as amostras com  $t_{AFM} = 9$  e 30 nm mostram o mesmo comportamento. Nas figuras 4.29 (a) e (b), por exemplo, apresenta-se

o coeficiente de transmissão  $S_{21}$ , medido com a frequência fixa em 9,8 GHz, em função de  $H$  para as temperaturas 2 K e 300 K (temperatura ambiente). Pode-se perceber facilmente, nesses espectros, que existe uma relação entre a posição da ressonância e a temperatura da amostra em questão.

Figura 4.29 – Coeficiente de transmissão ( $S_{21}$ ) em função de  $H$  para as temperaturas 2 K e 300 K. A espessura da camada AFM e a frequência de excitação estão indicadas nos gráficos. As linhas contínuas (em vermelho) referem-se aos ajustes feitos utilizando a equação 4.5.



Fonte: Autora.

A partir de espectros como os mostrados nas figuras 4.29 (a) e (b), extraíram-se a largura de linha ( $\Delta H$ ), definida como a distância entre um máximo e um mínimo, e o campo de ressonância ferromagnética ( $H_{res}$ ), definido como o valor de campo na metade da distância entre um máximo e um mínimo. Como mencionado (e mostrado) anteriormente, a varredura em campo foi feita de  $+H$  até  $-H$ , o que permite obter dois campos de ressonância e duas larguras de linha para cada medida. Além disso, uma varredura de  $+H$  até  $-H$  é equivalente a fazer uma medida paralela e uma antiparalela a um determinado eixo. Dessa maneira, seguindo com a nomenclatura já adotada ao longo do texto, considera-se que os experimentos foram feitos com  $H$  aplicado a  $0^\circ$  e  $180^\circ$  do eixo do campo de *pinning* para cada temperatura e frequência de medida.

O sinal observado a partir de um *setup* de FMR que utiliza uma guia de onda coplanar corresponde à derivada da potência rf absorvida ( $P$ ) em torno de  $H_{res}$  e pode ser descrito pela derivada de uma função Lorentziana assimétrica (DURRENFELD, 2015; MECKING; GUI; HU, 2007),

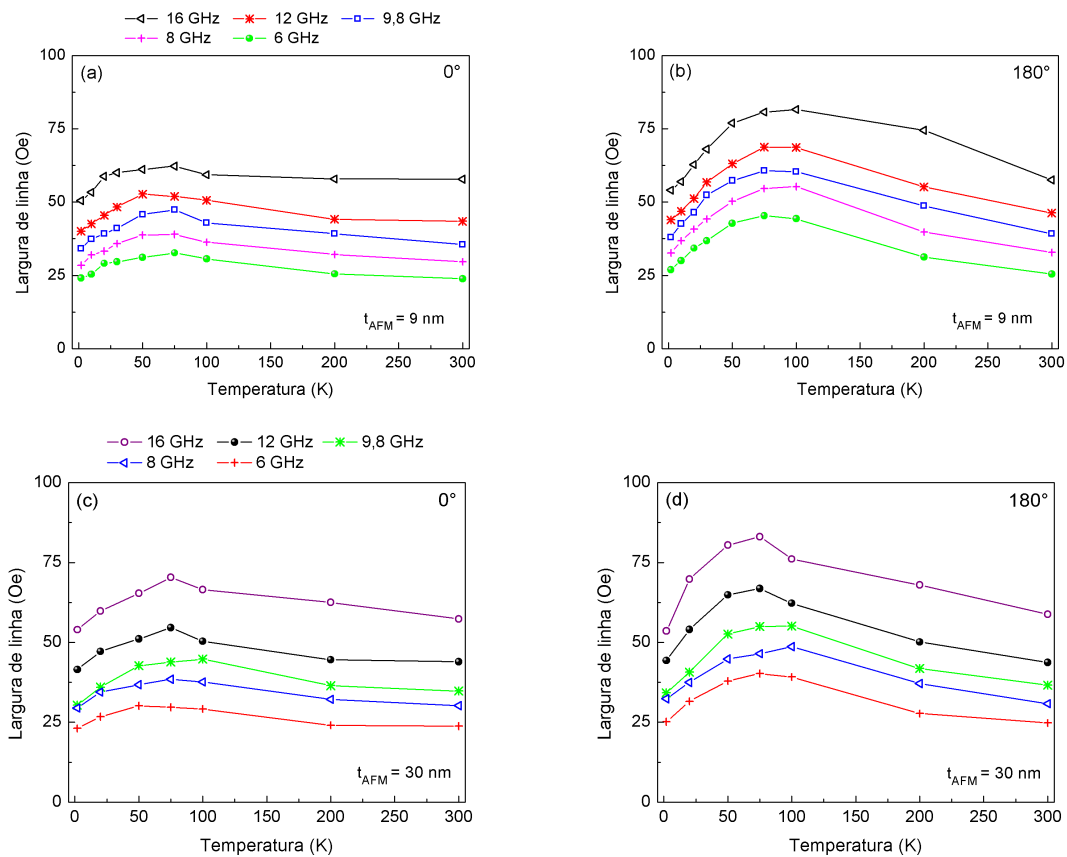
$$\frac{dP}{dH} = \frac{-8K_1\Delta H(H - H_{res}) + 2K_2(\Delta H^2 - 4(H - H_{res})^2)}{[\Delta H^2 + 4(H - H_{res})^2]^2}, \quad (4.5)$$

onde  $K_1$  e  $K_2$  são parâmetros de ajuste para as partes simétrica e antissimétrica da função, respectivamente. Nas figuras 4.29 (a) e (b), ao observar-se as linhas contínuas em

vermelho, pode-se ver que existe um bom acordo entre os dados experimentais e os ajustes por meio da equação 4.5 para ambas as amostras.

As figuras 4.30 (a - d) mostram a evolução da largura de linha com a temperatura para as bicamadas com  $t_{AFM} = 9$  e 30 nm. Os comportamentos das curvas  $\Delta H \times T$  são semelhantes para as diferentes frequências de excitação. Entretanto, existe uma maior variação na largura de linha quando se tratam de medidas realizadas com  $H$  aplicado a  $180^\circ$ .

Figura 4.30 – Largura de linha em função da temperatura para diferentes frequências de excitação. As figuras (a) e (b) referem-se à amostra com  $t_{AFM} = 9$  nm. As figuras (c) e (d) referem-se à amostra com  $t_{AFM} = 30$  nm.



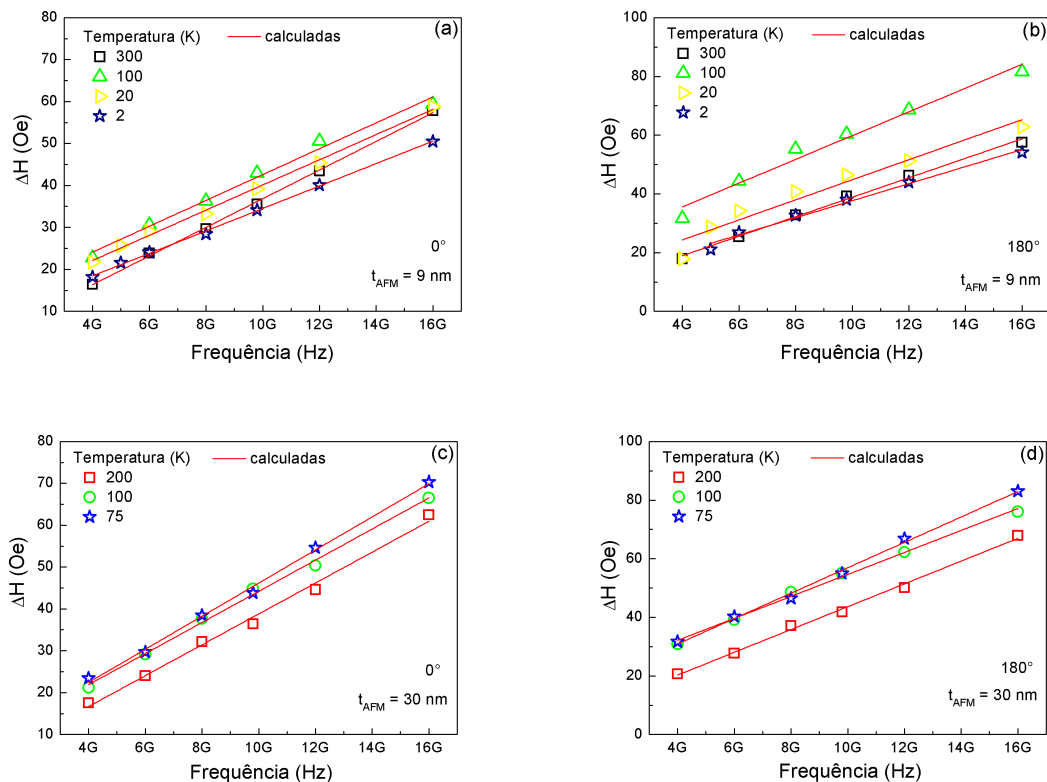
Fonte: Autora.

Observa-se, ainda, nas figuras 4.30 (a - d), a existência de um máximo em  $\Delta H$ , centrado em 75 K, aproximadamente, o qual surge independentemente da frequência, da orientação de  $H$  e da amostra em questão. Na referência (ADAMS et al., 2018), o aumento da largura de linha com o decréscimo da temperatura em sistemas FM/AFM foi explicado em termos de um mecanismo de relaxação lenta (*slow-relaxer mechanism*) de íons paramagnéticos que, segundo os autores, atuam como impurezas nas interfaces (GLOANEC et al., 2009, 2010).

Nos trabalhos (LUBITZ et al., 1998, 2001; MCMICHAEL et al., 2000), o pico nas curvas  $\Delta H \times T$  em sistemas com *exchange bias* foi interpretado considerando que o mecanismo de relaxação lenta resulta de reversões térmicas de grãos AFM. Para esses pesquisadores, os grãos AFM acoplados ao material FM, por interação de troca, é que são as impurezas das interfaces.

Nos resultados apresentados para cada bicamada ( $0^\circ$  e  $180^\circ$ ), percebe-se que a largura de linha aumenta com a frequência de excitação ao considerar-se uma mesma temperatura. Dessa forma, para entender o aparecimento do máximo em  $\Delta H \times T$ , trabalhou-se com  $\Delta H \times f$  para cada uma das temperaturas, ou seja, os resultados das figuras 4.30 (a - d) foram analisados a partir de outro ponto de vista. Nas figuras 4.31 (a - d), as curvas  $\Delta H \times f$  para determinadas temperaturas são mostradas.

Figura 4.31 – Largura de linha em função da frequência para diferentes temperaturas. As figuras (a) e (b) referem-se à amostra com  $t_{AFM} = 9$  nm. As figuras (c) e (d) referem-se à amostra com  $t_{AFM} = 30$  nm.



Fonte: Autora.

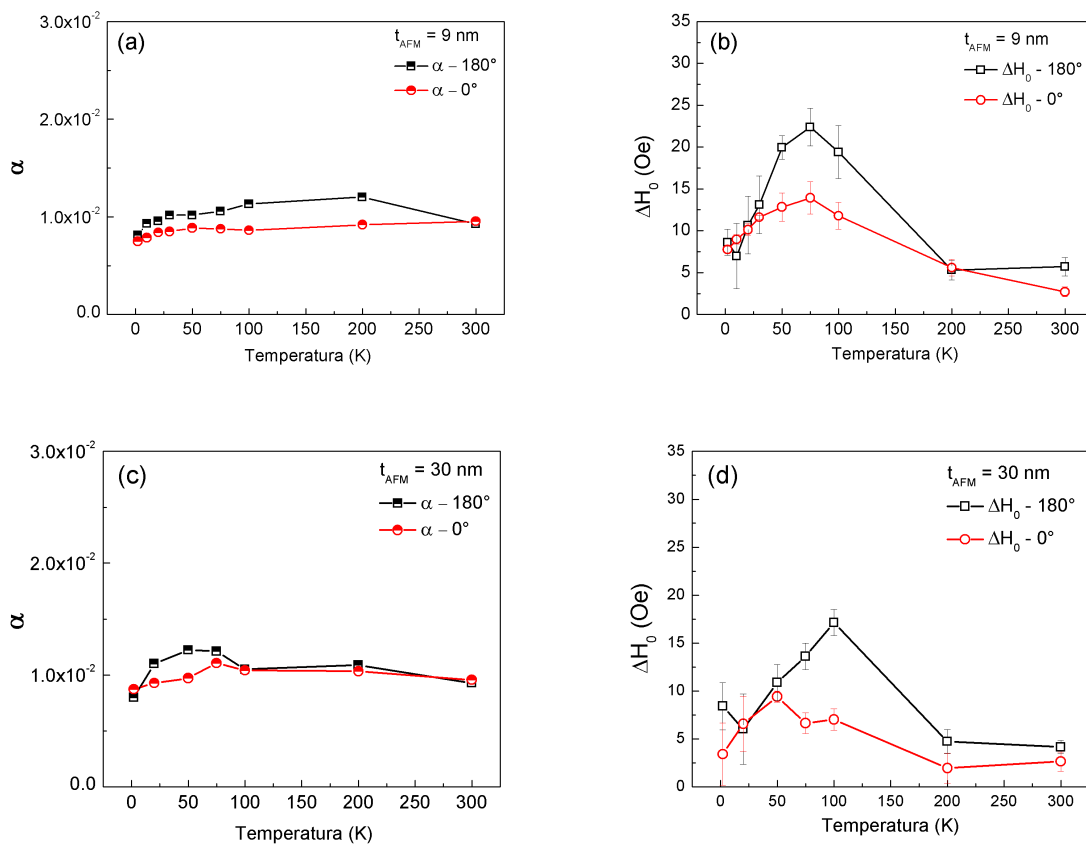
As linhas contínuas em vermelho, superpostas aos símbolos que representam os dados experimentais para  $\Delta H \times f$ , representam ajustes realizados por meio da função linear

$$\Delta H = \Delta H_0 + \frac{\alpha\omega}{\gamma}. \quad (4.6)$$

Nesta equação, supõe-se que o termo  $\Delta H_0$  relaciona-se a mecanismos extrínsecos de relaxação da magnetização, os quais, em geral, dependem da forma geométrica e da cristalinidade da amostra, das características das superfícies, das interfaces do sistema, de defeitos microscópicos e de impurezas atômicas. No segundo termo,  $\omega = 2\pi f$  e  $\gamma/2\pi = 2,8$  MHz/Oe relacionam-se à constante de amortecimento de Gilbert,  $\alpha$ , o que significa que um mecanismo intrínseco da relaxação da magnetização é envolvido na equação usada para os ajustes.

Os parâmetros obtidos dos ajustes, para  $0^\circ$  e  $180^\circ$ , estão expostos nas figuras 4.32 (a - d). É possível perceber, nas figuras 4.32 (a) e (c), que  $\alpha$  tem uma pequena variação com a temperatura. Entretanto,  $\Delta H_0$ , nas figuras 4.32 (b) e (d), apresenta um máximo, o que leva à conclusão que ele seria o principal responsável pelo aparecimento do pico nas curvas de  $\Delta H \times T$ . Em outras palavras, a interpretação feita é que as inhomogeneidades nas amostras, as quais segundo a literatura podem ser devidas à impurezas não-magnéticas na interface, causam o aumento de  $\Delta H$  com a redução da temperatura.

Figura 4.32 – Parâmetros extraídos por meio da equação 4.6 para as amostras com  $t_{AFM} = 9$  nm (a - b) e  $t_{AFM} = 30$  nm (c - d).



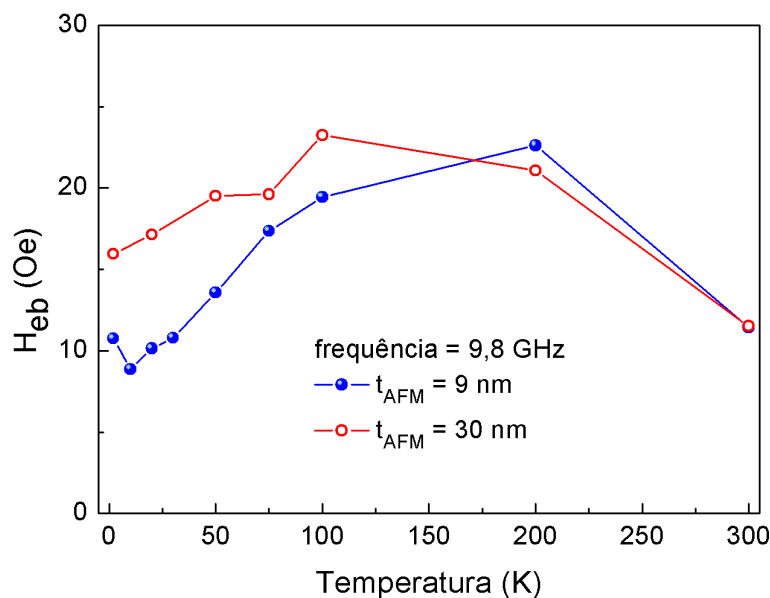
Fonte: Autora.

A constante de amortecimento de Gilbert sofre pequenas variações em torno de

0,0093 e 0,0100 para as amostras com  $t_{AFM} = 9$  nm e 30 nm, respectivamente, o que são valores próximos aos apresentados no trabalho (RODRÍGUEZ-SUÁREZ et al., 2011) que também refere-se a sistemas FM/AFM.

Por meio dos campos de ressonância, extraídos de gráficos como os mostrados nas figuras 4.29 (a) e (b), foi obtida, também, a evolução do campo de *exchange bias* com a temperatura para as bicamadas com  $t_{AFM} = 9$  e 30 nm, figura 4.33. Como destacado na figura 4.22,  $H_{eb}$  pode ser calculado, para uma determinada frequência, tomando-se a metade da soma dos campos de ressonância para  $0^\circ$  e  $180^\circ$ .

Figura 4.33 – Evolução do campo de *exchange bias* com a temperatura para as amostras com  $t_{AFM} = 9$  e 30 nm.



Fonte: Autora.

No gráfico anterior, conforme a temperatura é reduzida, primeiramente, percebe-se um aumento no campo de *exchange bias*. Porém, após  $H_{eb}$  atingir um valor máximo, em uma temperatura compreendida entre 100 e 200 K, ele passa a diminuir para as duas bicamadas. Esse resultado, obtido por meio de uma medida dinâmica, difere do que se espera de uma curva  $H_{eb} \times T$  obtida por uma técnica de caracterização estática.

Nos trabalhos (ADAMS et al., 2018; GLOANEC et al., 2009), investigou-se a evolução do campo de EB com a temperatura por meio de medidas estáticas e dinâmicas. A comparação entre os valores para  $H_{eb}$  mostrou que, conforme ocorre a redução de  $T$ , os resultados, oriundos dos dois tipos de medidas, tornam-se distintos. Em uma medida estática, contrariamente ao que pode ser visto na figura 4.33, o que se espera é que  $H_{eb}$  aumente sua intensidade quando a temperatura é reduzida, fato que pode ser entendido

em termos de um aumento no número de grãos que contribuem para o *exchange bias*. O comportamento de  $H_{eb} \times T$ , obtido por intermédio de medidas dinâmicas, similar ao da figura 4.33, foi discutido, nessas referências, considerando que o mecanismo de relaxação lenta (*slow-relaxer mechanism*) de impurezas paramagnéticas modifica o campo de ressonância ferromagnética e, conseqüentemente,  $H_{eb}$  torna-se menor em baixas temperaturas.

Infelizmente, para o conjunto de amostras estudado nessa tese, não pode ser realizada uma caracterização magnética estática em função da temperatura, o que impossibilita uma análise quantitativa das diferenças em  $H_{eb} \times T$  medido por técnicas distintas.

Ainda a respeito da evolução do campo de *exchange bias* com a temperatura, notou-se que o comportamento da curva  $H_{eb} \times T$ , para as duas bicamadas, é independente da frequência. Contudo, com o aumento de  $f$ , a curva inteira desloca-se no eixo vertical, o que significa que o campo de *exchange bias*, além de depender da temperatura em que é medido, relaciona-se à frequência de excitação do campo de micro-ondas (GESHEV et al., 2003). Esse efeito está relacionado à profundidade de penetração da micro-onda na amostra. Conforme a frequência aumenta, a penetração da micro-onda diminui, ou seja, a porção da amostra que se está testando é restringida e isso pode resultar em diferentes valores para  $H_{eb}$ .

#### 4.4 MEDIDAS ESTÁTICAS VERSUS MEDIDAS DINÂMICAS

Conforme discutido nas duas últimas seções do texto, foram utilizadas quatro técnicas de caracterização magnética, das quais três envolvem altas frequências de excitação, para descrever o comportamento das amostras produzidas. A manifestação do fenômeno *exchange bias* e várias de suas características puderam ser identificadas e quantificadas a partir dessas técnicas. Entretanto, notam-se pequenas variações em  $H_{eb}$  ao comparar-se os resultados provenientes dos diferentes experimentos para uma mesma amostra.

A tabela 4.1 contrasta os campos de *exchange bias*, medidos por magnetometria e ressonância ferromagnética, para as bicamadas com  $t_{AFM} = 9$  e 30 nm. Nota-se que os maiores valores para  $H_{eb}$  são oriundos das curvas de magnetização,  $M \times H$ , e que os três experimentos envolvendo FMR fornecem diferentes resultados, embora sejam mais próximos. Na referência (KHANAL et al., 2014), assim como nesse trabalho, foi constatado que em medidas com frequência fixa (banda-X) encontram-se maiores valores de  $H_{eb}$  do que em medidas de banda larga (por meio de um VNA).

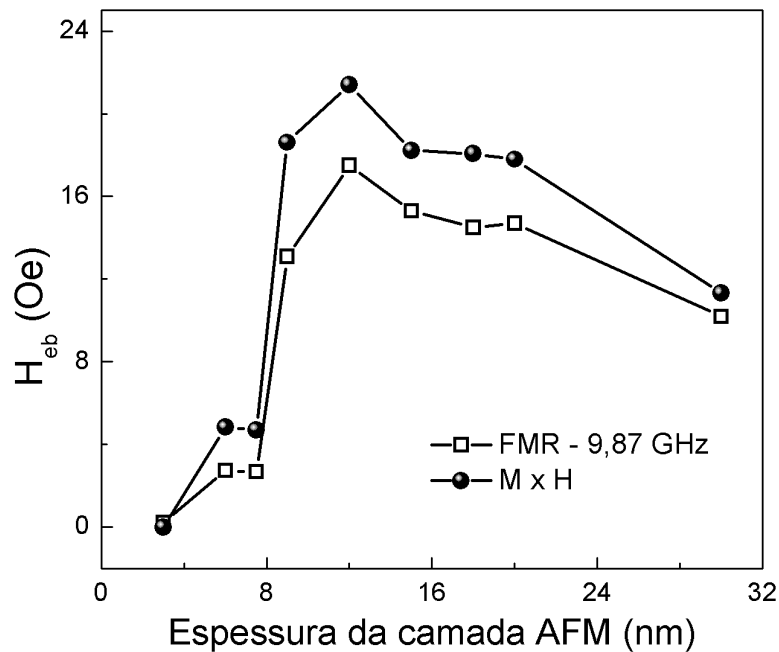
Na figura 4.34, retomam-se os resultados exibidos nas figuras 4.12 e 4.24, o que possibilita uma comparação entre os dados fornecidos por magnetometria e ressonância ferromagnética na banda-X (9,87 GHz). Constata-se que, para todas as bicamadas, as medidas de magnetometria resultam em maiores valores para  $H_{eb}$ .

Tabela 4.1 – Valores obtidos para os campos de *exchange bias* das bicamadas com  $t_{AFM} = 9$  e 30 nm a partir das quatro técnicas de caracterização magnética utilizadas.

$t_{AFM}$	$H_{eb} - M \times H$	$H_{eb} - \text{banda-X (9,87 GHz)}$	$H_{eb} - \text{Cryo (9,80 GHz)}$	$H_{eb} - \text{VNA}$
9 nm	18,6 Oe	13,1 Oe	11,4 Oe	10,7 Oe
30 nm	11,3 Oe	10,2 Oe	11,5 Oe	8,00 Oe

Fonte: Autora.

Figura 4.34 – Evolução do campo de *exchange bias* com a espessura da camada AFM obtida a partir de diferentes técnicas de caracterização magnética.



Fonte: Autora.

Os resultados aqui discutidos vão ao encontro do que tem sido comentado na literatura, isto é, de acordo com o experimento realizado, diferentes valores podem ser encontrados para o campo de *exchange bias* de um sistema FM/AFM. Esse fato levou à classificação das técnicas como reversíveis e irreversíveis (FERMIN et al., 2000; GLOANEC et al., 2009; SPENATO; POGOSSIAN, 2005). As medidas obtidas por intermédio de ressonância ferromagnética envolvem pequenas perturbações da magnetização em torno de seu equilíbrio, ou seja, são medidas reversíveis. Já as curvas provenientes de magnetometria,  $M \times H$ , envolvem uma mudança irreversível na magnetização. Sendo assim, os diferentes processos de medida justificam as variações nos valores encontrados para  $H_{eb}$ .



## 5 CONCLUSÕES E PERSPECTIVAS

O *exchange bias* é um dos temas que, atualmente, atrai a atenção de grupos de pesquisa que trabalham com Magnetismo devido às várias possibilidades de aplicações tecnológicas e pelo fato de existirem controvérsias em relação aos mecanismos que governam o efeito.

Nessa tese, foram produzidas bicamadas de NiFe(50 nm)/FeMn, por *magnetron sputtering*, a fim de investigar o aparecimento e a evolução do *exchange bias* em função da espessura da camada antiferromagnética ( $3 \text{ nm} \leq t_{AFM} \leq 30 \text{ nm}$ ). A caracterização estrutural, realizada por difração de raios-X, mostrou que os dois materiais magnéticos que compõem as amostras cresceram com uma textura cristalográfica na direção (111), o que é fundamental para a manifestação do *exchange bias* em sistemas FM/AFM.

A caracterização magnética, por meio de técnicas de medidas estática e dinâmica, revelou a presença do EB nas bicamadas FM/AFM com  $t_{AFM} \geq 6 \text{ nm}$ . Observou-se que, depois do aparecimento do efeito, o campo de *exchange bias* aumenta passando por um valor máximo em  $t_{AFM} = 12 \text{ nm}$  e, então, diminui com o aumento da espessura da camada AFM. Esse comportamento foi atribuído à mudanças nas interfaces FM/AFM (tamanho médio de grão cristalino, por exemplo) com o aumento da espessura da camada AFM.

Para a caracterização magnética das amostras foram utilizadas quatro técnicas, das quais três envolvem experimentos com ressonância ferromagnética. Várias das características do EB puderam ser identificadas e quantificadas a partir da complementaridade entre as técnicas. Entretanto, notaram-se pequenas variações em  $H_{eb}$  ao comparar-se os resultados provenientes de diferentes experimentos para uma mesma amostra. Esse fato vem sendo discutido na literatura e é o que levou à classificação das técnicas em reversíveis e irreversíveis. As medidas obtidas por intermédio de FMR envolvem pequenas perturbações da magnetização em torno de seu equilíbrio, ou seja, são medidas reversíveis. Já as curvas oriundas de magnetometria envolvem uma mudança irreversível na magnetização.

A dependência angular do campo de ressonância ferromagnética, obtida por meio de experimentos realizados com a frequência fixa em 9,87 GHz, foi descrita considerando a energia livre magnética composta pela soma da energia Zeeman com as energias de anisotropias magnetostática, uniaxial, unidirecional e rodável. Por intermédio dessa descrição, que contemplou a possibilidade da não-colinearidade entre os eixos de anisotropias uniaxial e unidirecional,  $H_{eb}$  e  $\eta$  (ângulo de desalinhamento) foram calculados.

A partir dos parâmetros calculados, concluiu-se que a não-colinearidade entre os eixos de anisotropias, refletida na assimetria das curvas  $H_{res} \times \phi_H$ , está relacionada à espessura da camada AFM. Na literatura, sugere-se que a combinação de uma anisotropia AFM fraca com uma frustração magnética, devida à imperfeições estruturais na interface FM/AFM, poderia explicar o desalinhamento.

De acordo com a descrição teórica das curvas  $H_{res} \times \phi_H$ , o conjunto de bicamadas pode ser dividido em três subconjuntos:

1. Camadas AFM finas - as bicamadas comportam-se, praticamente, como monocamadas FM.
2. Camadas AFM intermediárias - o EB está estabelecido e apresenta valores intensos. Porém, supõe-se que nessa faixa de espessuras a anisotropia AFM ainda é fraca, o que leva ao aparecimento de um desalinhamento. O maior ângulo de desalinhamento ( $\eta \approx 17^\circ$ ) foi calculado para a bicamada com  $t_{AFM} = 12$  nm, a qual também apresentou o maior valor para o campo de *exchange bias*.
3. Camadas AFM espessas - a anisotropia AFM é maior e o desalinhamento aproxima-se de zero.

Os experimentos envolvendo ressonância ferromagnética possibilitaram, também, o cálculo da magnetização de saturação das amostras. Para a bicamada  $t_{AFM} = 30$  nm, por exemplo, obteve-se  $M_S \approx 1044$  emu/cc, o que é plausível para o permalloy. A partir de medidas de FMR em função da temperatura, realizadas em duas bicamadas, constatou-se a existência de um máximo na largura de linha  $\Delta H$ , centrado em 75 K, aproximadamente. A origem desse máximo foi atribuída às inomogeneidades nas amostras, as quais, segundo a literatura, devem-se à impurezas não-magnéticas nas interfaces.

Para o conjunto de dados apresentados nessa tese, pensando em perspectivas futuras, pretende-se fazer uma análise quantitativa da dependência angular do *exchange bias*, obtida por magnetometria, por meio de um modelo que leve em conta a estrutura de *spins* e as interações microscópicas nas camadas FM e AFM. Dessa maneira, maiores informações a respeito do acoplamento interfacial FM/AFM serão adquiridas. Ademais, um melhor entendimento do que ocorre nas interfaces, em termos de rugosidade, pode ser buscado a partir de ajustes das curvas de XRR.

Quanto a modificação das amostras, para estudos futuros, o FeMn poderia ser substituído por NiMn ou IrMn, por exemplo, o que possibilitaria a comparação de resultados para materiais com diferentes constantes de anisotropia AFM. Além disso, seria interessante diminuir a espessura da camada FM, o que tornaria o acoplamento FM/AFM mais forte.

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- ADAMS, D. et al. Temperature dependence of exchange bias in (NiFe/IrMn)<sub>n</sub> multilayer films studied through static and dynamic techniques. **AIP Advances**, v. 8, p. 056302, 2018.
- ALI, M. et al. Antiferromagnetic layer thickness dependence of the IrMn/Co exchange-bias system. **Physical Review B**, v. 68, p. 214420, 2003.
- ALI, M.; MARROWS, C. H.; HICKEY, B. J. Onset of exchange bias in ultrathin antiferromagnetic layers. **Physical Review B**, v. 67, p. 172405, 2003.
- AMBROSE, T.; SOMMER, R. L.; CHIEN, C. L. Angular dependence of exchange coupling in ferromagnet/antiferromagnet bilayers. **Physical Review B**, v. 56, p. 83–86, 1997.
- BARRETO, P. G. et al. Ferromagnetic resonance study of the misalignment between anisotropy axes in exchange-biased NiFe/FeMn/Co trilayers. **Applied Physics Letters**, v. 104, p. 202403, 2014.
- BERKOWITZ, A. E. et al. Refining the exchange anisotropy paradigm: Magnetic and microstructural heterogeneity at the Permalloy-CoO interface. **Physical Review B**, v. 81, p. 134404, 2010.
- BREMS, S. et al. Reversing the training effect in exchange biased CoO/Co bilayers. **Physical Review Letters**, v. 95, p. 157202, 2005.
- CASTRO, I. L. et al. The role of the (111) texture on the exchange bias and interlayer coupling effects observed in sputtered NiFe/IrMn/Co trilayers. **Journal of Applied Physics**, v. 113, p. 203903, 2013.
- CHAN, M. K. et al. Identification and separation of two distinct contributions to the training effect in polycrystalline Co/FeMn bilayers. **Physical Review B**, v. 77, p. 014420, 2008.
- CHEN, Y. T. The effect of interface texture on exchange biasing in Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>/Ir<sub>20</sub>Mn<sub>80</sub> system. **Nanoscale Research Letters**, v. 4, p. 90–93, 2008.
- CHOI, H. C.; YOU, C. Y.; KIM, K. Y. Azimuthal angular dependent hysteresis loops of Fe<sub>50</sub>Mn<sub>50</sub>/Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub> bilayers grown under a magnetic field. **Journal of Applied Physics**, v. 120, p. 175303, 2016.
- CHOI, H. C. et al. Antiferromagnetic layer thickness dependence of noncollinear uniaxial and unidirectional anisotropies in NiFe/FeMn/CoFe trilayers. **Physical Review B**, v. 81, p. 224410, 2010.
- CIUREANU, P. et al. High frequency behavior of soft magnetic wires using the giant magnetoimpedance effect. **Journal of Applied Physics**, v. 83, p. 6563–6565, 1998.
- COEY, J. M. D. **Magnetism and Magnetic Materials**. [S.l.]: Cambridge University Press, 2009. ISBN 978-0-521-81614-4.
- CULLITY, B. D.; GRAHAM, C. D. **Introduction to Magnetic Materials**. 2th. ed. [S.l.]: Wiley, 2009. ISBN 978-0-471-47741-9.
- CULLITY, B. D.; STOCK, S. R. **Elements of X-ray diffraction**. third. [S.l.]: Pearson, 2014. ISBN 10: 1-292-04054-8.

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

DURRENFELD, P. **Spin torque and spin hall nano-oscillators with single magnetic layers**. 2015. Tese (Doutorado), 2015.

DZHUN, I. O. et al. FMR investigations of exchange biased NiFe/IrMn/NiFe trilayers with high and low Ni relative content. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 470, p. 151–155, 2017.

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

FERNANDEZ-OUTON, L. E.; O'GRADY, K. Angular dependence of coercivity and exchange bias in IrMn/CoFe bilayers. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 290-291, p. 536–539, 2005.

FLANDERS, P. J. An alternating-gradient magnetometer (invited). **Journal of Applied Physics**, v. 63, p. 3940–3945, 1988.

FLEISCHMANN, C. et al. The influence of interface roughness on the magnetic properties of exchange biased CoO/Fe thin films. **Journal of Applied Physics**, v. 107, p. 113907, 2010.

FONER, S. Versatile and sensitive vibrating sample magnetometer. **Review of Scientific Instruments**, v. 30, p. 548–557, 1959.

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

FULCOMER, E.; CHARAP, S. H. Temperature and frequency dependence of exchange anisotropy effects in oxidized NiFe films. **Journal of Applied Physics**, v. 43, p. 4184–4190, 1972.

\_\_\_\_\_. Thermal fluctuation aftereffect model for some systems with ferromagnetic-antiferromagnetic coupling. **Journal of Applied Physics**, v. 43, p. 4190–4199, 1972.

GALLARDO, R. A. et al. Angular dependent FORC and FMR of exchange-biased NiFe multilayer films. **Journal of Physics D: Applied Physics**, v. 50, p. 075002, 2017.

GAO, T. R. et al. Exchange bias, training effect, hysteretic behavior of angular dependence, and rotational hysteresis loss in NiFe/FeMn bilayer: effect of antiferromagnet layer thickness. **Journal of Applied Physics**, v. 105, p. 053913, 2009.

GARCIA, W. et al. Inverse spin Hall and spin rectification effects in NiFe/FeMn exchange-biased thin films. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 441, p. 392–397, 2017.

GESHEV, J. Analytical solutions for exchange bias and coercivity in ferromagnetic/antiferromagnetic bilayers. **Physical Review B**, v. 62, p. 5627–5633, 2000.

GESHEV, J. et al. Frequency-dependent exchange bias in NiFe/NiO films. **Physical Review B**, v. 67, p. 132401, 2003.

GILBERT, T. L. Classics in magnetics a phenomenological theory of damping in ferromagnetic materials. **IEEE transactions on magnetics**, v. 40, p. 3443–3449, 2004.

GLOANEC, M. et al. Dynamical effect in measurement of the exchange-bias field: a consequence of the slow-relaxer mechanism. **Physical Review B**, v. 80, p. 220404, 2009.

\_\_\_\_\_. Temperature dependence of exchange bias in NiFe/FeMn bilayers. **Physical Review B**, v. 82, p. 144433, 2010.

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

GRIFFITHS, J. H. E. Anomalous high-frequency resistance of ferromagnetic metals. **Nature**, v. 158, p. 670–671, 1946.

HARRES, A.; GESHEV, J. A polycrystalline model for magnetic exchange bias. **Journal of Physics: Condensed Matter**, v. 24, p. 326004, 2012.

HOFFMANN, A. Symmetry driven irreversibilities at ferromagnetic-antiferromagnetic interfaces. **Physical Review Letters**, v. 93, p. 097203, 2004.

HU, Y. et al. Effect of misaligned unidirectional and uniaxial anisotropies on angular dependence of exchange bias. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 374, p. 388–393, 2015.

HUNG, C. Y. et al. Exchange biasing and thermal stability of CoFe/PtPdMn films. **Journal of Applied Physics**, v. 87, p. 4915–4917, 2000.

JUNGBLUT, R. et al. Orientational dependence of the exchange biasing in molecular-beam-epitaxy-grown Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>/Fe<sub>50</sub>Mn<sub>50</sub> bilayers. **Journal of Applied Physics**, v. 75, p. 6659–6664, 1994.

KERN, P. R. **Caracterização de filmes finos magnéticos em altas frequências**. 2014. Dissertação (Mestrado) — Programa de PG em Física UFSM, 2014.

KERN, P. R. et al. A study on the thickness dependence of static and dynamic magnetic properties of Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub> thin films. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 419, p. 456–463, 2016.

KHANAL, S. et al. Exchange bias in (FeNi/IrMn)<sub>n</sub> multilayer films evaluated by static and dynamic techniques. **Journal of Physics D: Applied Physics**, v. 47, p. 255002, 2014.

KITTEL, C. Interpretation of anomalous larmor frequencies in ferromagnetic resonance experiment. **Physical Review**, v. 71, p. 270–271, 1947.

\_\_\_\_\_. On the theory of ferromagnetic resonance absorption. **Physical Review**, v. 73, p. 155–161, 1948.

KIWI, M. Exchange bias theory. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 234, p. 584–595, 2001.

KIWI, M. et al. Exchange-bias systems with compensated interfaces. **Applied Physics Letters**, v. 75, p. 3995–3997, 1999.

LI, J. et al. Measurement of exchange anisotropy in NiFe/FeMn bilayers using different methods. **Journal of Materials Science: Materials in Electronics**, v. 28, p. 15313–15318, 2017.

LUBITZ, P. et al. Temperature dependence of ferromagnetic resonance as induced by NiO pinning layers. **Journal of Applied Physics**, v. 83, p. 6819–6821, 1998.

\_\_\_\_\_. Frequency and temperature dependence of ferromagnetic linewidth in exchange biased Permalloy. **Journal of Applied Physics**, v. 89, p. 6901–6903, 2001.

MAKSYMOV, I. S.; KOSTYLEV, M. Broadband stripline ferromagnetic resonance spectroscopy of ferromagnetic films, multilayers and nanostructures. **Physica E**, v. 69, p. 253–293, 2015.

MALOZEMOFF, A. P. Random-field model of exchange anisotropy at rough ferromagnetic-antiferromagnetic interfaces. **Physical Review B**, v. 35, p. 3679–3682, 1987.

MANNA, P. K.; YUSUF, S. M. Two interface effects: Exchange bias and magnetic proximity. **Physics Reports**, v. 535, p. 61–99, 2014.

MARCH, N. H.; LAMBIN, P.; HERMAN, F. Cooperative magnetic properties in single and two-phase 3d metallic alloys relevant to exchange and magnetocrystalline anisotropy. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 44, p. 1–19, 1984.

MAURI, D. et al. Novel method for determining the anisotropy constant of MnFe in a NiFe/MnFe sandwich. **Journal of Applied Physics**, v. 62, p. 2929–2932, 1987.

\_\_\_\_\_. Simple model for thin ferromagnetic films exchange coupled to an antiferromagnetic substrate. **Journal of Applied Physics**, v. 62, p. 3047–3049, 1987.

MCCORD, J. et al. Tuning of magnetization dynamics by ultrathin antiferromagnetic layers. **Applied Physics Letters**, v. 92, p. 162506, 2008.

MCMICHAEL, R. D. et al. Exchange bias relaxation in CoO-biased films. **Journal of Applied Physics**, v. 87, p. 6406–6408, 2000.

MECKING, N.; GUI, Y. S.; HU, C. M. Microwave photovoltage and photoresistance effects in ferromagnetic microstrips. **Physical Review B**, v. 76, p. 224430, 2007.

MEIKLEJOHN, W. H. Exchange anisotropy - A Review. **Journal of Applied Physics**, v. 33, p. 1328–1335, 1962.

MEIKLEJOHN, W. H.; BEAN, C. P. New magnetic anisotropy. **Physical Review**, v. 102, p. 1413–1414, 1956.

\_\_\_\_\_. New magnetic anisotropy. **Physical Review**, v. 105, p. 904–913, 1957.

MONSHI, A.; FOROUGHI, M. R.; MONSHI, M. R. Modified Scherrer equation to estimate more accurately nano-crystallite size using XRD. **World Journal of Nano Science and Engineering**, v. 2, p. 154–160, 2012.

MORAN, T. J.; GALLEGO, J. M.; SCHULLER, I. K. Increased exchange anisotropy due to disorder at permalloy/CoO interfaces. **Journal of Applied Physics**, v. 78, p. 1887–1891, 1995.

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

NOGUÉS, J. et al. Exchange bias in nanostructures. **Physics Reports**, v. 422, p. 65–117, 2005.

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

PACCARD, D. et al. A new property of ferromagnetic-antiferromagnetic coupling. **Physica Status Solidi (B)**, v. 16, p. 301–311, 1966.

PARK, C. M.; MIN, K. I.; SHIN, K. H. Effects of surface topology and texture on exchange anisotropy in NiFe/Cu/NiFe/FeMn spin valves. **Journal of Applied Physics**, v. 79, p. 6228–6230, 1996.

PATTERSON, A. L. The scherrer formula for X-ray particle size determination. **Physical Review**, v. 56, p. 978–982, 1939.

PIRES, M. J. M. et al. In-plane magnetic anisotropies in Ni/FeMn and Ni<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>/FeMn exchange biased bilayers. **Journal of Physics and Chemistry of Solids**, v. 68, p. 2398–2404, 2007.

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

POLISETTY, S.; SAHOO, S.; BINEK, C. Scaling behavior of the exchange-bias training effect. **Physical Review B**, v. 76, p. 184423, 2007.

RADU, F. **Fundamental aspects of exchange bias effect in AF/F bilayers and multilayers**. 2005. Tese (Doutorado), 2005.

REZENDE, S. M. **Materiais e Dispositivos Eletrônicos**. 3. ed. [S.l.]: Livraria da Física, 2012. ISBN 978-85-7861-134-7.

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

RIGUE, J. N. **Estudo da anisotropia unidirecional e da histerese rotacional em sistemas com exchange bias**. 2014. Tese (Doutorado) — Programa de PG em Física UFSM, 2014.

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

RODRÍGUEZ-SUÁREZ, R. L. et al. Exchange anisotropy determined by magnetic field dependence of ac susceptibility. **Journal of Applied Physics**, v. 94, p. 4544–4550, 2003.

\_\_\_\_\_. Critical thickness investigation of magnetic properties in exchange-coupled bilayers. **Physical Review B**, v. 83, p. 224418, 2011.

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

SCHULLER, I. K. et al. Role of the antiferromagnetic bulk spins in exchange bias. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 416, p. 2–9, 2016.

SHEN, J. X.; KIEF, M. T. Exchange coupling between NiO and NiFe thin films. **Journal of Applied Physics**, v. 79, p. 5008–5010, 1996.

SILVA, E. F. et al. Thickness dependence of the magnetic anisotropy and dynamic magnetic response of ferromagnetic NiFe films. **Journal of Physics D: Applied Physics**, v. 50, p. 185001, 2017.

SILVA, O. E. **Estudo do exchange bias em filmes finos de NiFe/FeMn (bicamadas) e NiFe/IrMn (multicamadas)**. 2016. Dissertação (Mestrado) — Programa de PG em Física UFSM, 2016.

SILVA, O. E. et al. Magnetic anisotropies and rotational hysteresis in  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}/\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$  films: A study by torque magnetometry and anisotropic magnetoresistance. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 451, p. 507–514, 2018.

SIQUEIRA, J. V. **Exchange bias em multicamadas de NiFe/IrMn/Ta: um estudo através da magnetorresistência anisotrópica**. 2015. Dissertação (Mestrado) — Programa de PG em Física UFSM, 2015.

SMIT, J.; BELJERS, H. G. Ferromagnetic resonance absorption in  $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ , a highly anisotropic crystal. **Philips Res. Rep.**, v. 10, p. 113–130, 1955.

SPENATO, D.; POGOSSIAN, S. P. Hysteretic resonance frequencies and magnetization reversal in exchange biased polycrystalline F/AF bilayers. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 285, p. 79–87, 2005.

STILES, M. D.; MCMICHAEL, R. D. Model for exchange bias in polycrystalline ferromagnet-antiferromagnet bilayers. **Physical Review B**, v. 59, p. 3722–3733, 1999.

STONER, E. C.; WOHLFARTH, E. P. Interpretation of high coercivity in ferromagnetic materials. **Nature**, v. 160, p. 650–651, 1947.

SUESS, D. et al. Exchange bias of polycrystalline antiferromagnets with perfectly compensated interfaces. **Physical Review B**, v. 67, p. 054419, 2003.

TAKEUCHI, A. Y. **Técnicas de Medidas Magnéticas**. [S.l.]: Livraria da Física, 2010. ISBN 978-85-7861-059-3.

TONG, H. C. et al. Studies on antiferromagnetic/ferromagnetic interfaces. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 209, p. 56–60, 2000.

TORRES, F. et al. Dipole-induced exchange bias. **Nanoscale**, v. 9, p. 17074–17079, 2017.

VONSOVSKII, S. V. **Ferromagnetic Resonance**. [S.l.]: Pergamon Press, 1966.

WELP, U. et al. Domain formation in exchange biased Co/CoO bilayers. **Journal of Applied Physics**, v. 93, p. 7726–7728, 2003.

XI, H.; WHITE, R. M. Angular dependence of exchange anisotropy in  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}/\text{CrMnPt}_x$  bilayers. **Journal of Applied Physics**, v. 86, p. 5169–5174, 1999.

\_\_\_\_\_. Antiferromagnetic thickness dependence of exchange biasing. **Physical Review B**, v. 61, p. 80–83, 2000.

\_\_\_\_\_. Critical thickness effect in the exchange-coupled  $\text{NiFe}/\text{CrMnPt}_x$  bilayer system. **Physical Review B**, v. 61, p. 1318–1323, 2000.

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



ZHANG, S. et al. Coercivity induced by random field at ferromagnetic and antiferromagnetic interfaces. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 198-199, p. 468–470, 1999.

ZIJLSTRA, H. A vibrating reed magnetometer for microscopic particles. **Review of Scientific Instruments**, v. 41, p. 1241–1243, 1970.