

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO GRANDE DO SUL
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA
Dissertação de Mestrado

EXCHANGE BIAS EM FILMES POLICRISTALINOS:
ESTUDO DA IMPORTÂNCIA DOS SPINS DE
INTERFACE E DE VOLUME DO
ANTIFERROMAGNETO[†]

Artur Harres de Oliveira

Dissertação realizada sob orientação do Prof. Dr. Julian Penkov Geshev, apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Física da UFRGS, como requisito parcial para a obtenção do título de Mestre em Física.

Porto Alegre
Fevereiro de 2011

[†]Trabalho parcialmente financiado pelo Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico – CNPq

Agradecimentos

Muitas pessoas foram fundamentais para que este trabalho fosse realizado. Algumas delas tiveram influência direta em sua produção e outras ajudaram este que vos escreve a manter a tranquilidade durante estes quase dois anos de mestrado.

Primeiramente gostaria de agradecer aos meus pais, Júlia e Cícero, por terem me apoiado em todas as minhas decisões. Por terem tornado possível minha estada na capital nestes últimos seis anos de estudo e por dedicarem a mim todo o amor e atenção que um filho pode merecer.

Agradeço ao meu irmão Igor pelo companheirismo e pela compreensão. Dividir o apartamento com qualquer outra pessoa tornaria minha vida muito mais complicada.

Nenhum texto de agradecimento escrito por mim poderia deixar de citar minha namorada Patrícia. Com ela vivi muitos momentos felizes, e outros nem tanto. Aprendi uma infinidade de coisas e me tornei uma pessoa melhor. Admiro sua competência e dedicação e espero um dia poder dar a ela toda a felicidade que ela merece.

Dentro do laboratório, duas pessoas foram de vital importância para a evolução deste projeto. Julian foi um excelente orientador e com ele aprendi muito mais do que física. Nestes últimos anos de convivência ele me mostrou como se faz ciência e foi um exemplo de caráter e competência. Como todo pupilo, gostaria de me tornar um dia tão bom quanto meu mestre. Sabrina me deu uma direção a seguir, e hoje aquele projeto despretensioso que iniciamos juntos durante minha iniciação científica culmina nesta dissertação. É uma pessoa alegre, apesar de ter seus dias de fúria. Está sempre disposta a ajudar e é peça fundamental para que nosso laboratório se mantenha nos eixos. Ela e seu marido Alexandre foram os responsáveis pelas medidas de raios-x apresentadas neste trabalho, pelas quais sou muito grato.

Muitos outros contribuíram para que minha estadia no LAM fosse um período feliz e agradável. Me ajudaram com o trabalho, me deram ideias, me ofereceram seu tempo para algumas discussões relevantes e muitas irrelevantes. Somos muito mais do que um grupo de pesquisa, somos uma família. Temos, inclusive, o maior time de futebol que já pisou no Laboratório de Magnetismo, o glorioso Dínamo Histerese.

Finalmente, agradeço ao CNPq por financiar nossa pesquisa e ao Instituto de Física da UFRGS por me fornecer ensino de qualidade e infraestrutura. Espero um dia poder retribuir todo investimento depositado em mim.

Resumo

O presente estudo traz uma discussão sobre a modificação dos parâmetros de EB através de tratamentos térmicos em filmes de IrMn/Cu(0,25 nm)/Co e IrMn/Co depositados por sputtering. A temperatura de recozimento foi variada sistematicamente para um campo magnético fixo, suficientemente intenso para a saturação da camada ferromagnética. A duração dos recozimentos foi variada, assim como a direção de aplicação do campo magnético no plano do filme, para algumas T_{ann} . Um máximo extenso foi observado para o campo de exchange bias no plano H_{EB} em função de T_{ann} em $\approx 200^\circ\text{C}$ para o filme de IrMn/Cu(0,25 nm)/Co. Um comportamento similar é observado para a amostra de IrMn/Co, onde o máximo é encontrado próximo de $T_{ann} = 180^\circ\text{C}$. A caracterização estrutural dos filmes foi feita através de medidas convencionais de difratometria e refletividade de raios-x. Simulações numéricas foram feitas para ajustar os dados das medidas de refletividade e das curvas de magnetização experimentais, tanto para o eixo fácil quanto para o eixo difícil. Parâmetros de anisotropia magnética foram extraídos através destas simulações. Nossos resultados indicam que o decréscimo de H_{EB} para T_{ann} entre 200°C e 300° se deve a uma melhora na cristalinidade do *bulk* de IrMn e/ou ao crescimento dos grãos, o que diminuiria o número de spins não-compensados, ao invés da criação de defeitos interfaciais e da inter-difusão das camadas de IrMn e Co.

Além do trabalho experimental, um modelo para bicamadas antiferromagneto/ferromagneto policristalinas com interfaces granulares foi proposto. Diferentes tipos de grãos foram considerados na tentativa de reproduzir um sistema real. Bons resultados qualitativos foram obtidos e diversas características do EB reproduzidas. Foi demonstrado que usando parâmetros de anisotropia e acoplamento próximos dos encontrados em sistemas reais, efeitos de treinamento podem ser obtidos independentemente do tipo de anisotropia (uniaxial ou biaxial) dos grãos interfaciais com spins não-compensados.

Abstract

The present study discusses on modification of the exchange-bias parameters due to magnetic annealing of sputtered IrMn/Cu(0,25 nm)/Co and IrMn/Co films. The annealing temperature T_{ann} has been systematically varied for a fixed, sufficiently strong for the ferromagnetic layer saturation, magnetic field. The duration of the annealing has been varied as well as the in-plane direction of the applied field, for some T_{ann} . Broad maximum at $\approx 200^\circ\text{C}$ was observed in the in-plane exchange-bias field H_{eb} versus T_{ann} dependencies for the IrMn/Cu(0,25 nm)/Co film. A similar behavior was observed for the sample without Cu, where the maximum was found near $T_{ann} = 180^\circ\text{C}$. Conventional X-ray diffractometry and small-angle X-ray reflectivity have been used for the structural characterization of the films. Numerical simulations have been employed in order to fit the reflectivity scans and the experimental magnetization curves in both easy and hard axis configurations. Magnetic anisotropy parameters were extracted from this simulations. Our results indicate that the decrease of H_{eb} for T_{ann} between 200°C and 300°C is due to improvement in the bulk IrMn crystallinity and/or grain growth, which lessen the number of uncompensated spins, rather than IrMn and Co interdiffusion and defect creation at the interface.

Besides the experimental work, a model for polycrystalline antiferromagnet/ferromagnet bilayers with granular interface has been developed. Different types of grains were considered in order to reproduce a real system. Good qualitative results were achieved and several EB characteristics were reproduced. It was demonstrated that using realistic anisotropy and coupling parameters in the simulations, athermal training effects can be obtained regardless of the anisotropy type (uniaxial or biaxial) of the interface grains with uncompensated spins.

Lista de abreviações

M Magnetização

FM Ferromagnético/ferromagneto

AF Antiferromagnético/antiferromagneto

M_S Magnetização de saturação

T_C Temperatura de Curie

T_N Temperatura de Néel

H Campo magnético

RA *Rotatable anisotropy* (Anisotropia rodável)

EB *Exchange bias*

H_C Campo coercivo

H_{EB} Campo de *exchange bias*

T_B Temperatura de bloqueio

FMR *Ferromagnetic resonance* (Ressonância ferromagnética)

SG *Spin glass* (Vidro de spin)

AGFM *Alternating gradient force magnetometer* (Magnetômetro de gradiente de força alternada)

VSM *Vibrating sample magnetometer* (Magnetômetro de amostra vibrante)

SQUID *Superconducting quantum interference device*

DC *Direct current* (Corrente contínua)

RF Rádio frequência

ef Eixo de fácil magnetização

ed Eixo de difícil magnetização

TEM *Transmission electron microscopy* (Microscopia eletrônica de transmissão)

NBD *Nano beam diffraction*

UCS *Uncompensated spins* (Spins não-compensados)

SPM Superparamagnéticos

DWF *Domain wall formation* (Formação de parede de domínio)

Sumário

Introdução	1
1 Revisão teórica	3
1.1 Ferromagnetismo e antiferromagnetismo	3
1.2 Anisotropias magnéticas	6
1.2.1 Anisotropia magnetocristalina	6
1.2.2 Anisotropia de forma	8
2 Exchange bias	10
2.1 O início	10
2.2 Modelo intuitivo	12
2.3 Características gerais	14
2.4 Modelos teóricos	17
2.5 Anisotropia rodável	21
3 Técnicas experimentais	24
3.1 AGFM	24
3.2 Forno resistivo	26
4 Procedimentos experimentais	29
4.1 Amostras	29
4.2 Produção das amostras	30
4.3 Tratamentos térmicos	31

4.4	Caracterização magnética	32
4.5	Caracterização estrutural	33
5	Resultados e discussões	36
5.1	Modelo teórico	36
5.2	Resultados experimentais	39
5.3	Modelo policristalino para o EB	49
5.3.1	Efeitos de treinamento	54
	Conclusões	63
	Referências	65

Introdução

Considerado como uma parte integral do Magnetismo moderno, o fenômeno de *exchange bias* (EB) foi descoberto em 1956 por Meiklejohn e Bean. Apesar da intensiva pesquisa realizada sobre o assunto nas últimas décadas, ainda não foi encontrada uma teoria aceita por toda a comunidade científica que explica e prevê todas as características de um sistema real com EB. Mesmo que este conhecimento ainda esteja ausente, sistemas com EB encontraram grande aplicação em dispositivos magnetoeletrônicos, e hoje são parte fundamental das mídias de gravação magnética. Portanto, desvendar os seus mistérios torna-se tarefa importantíssima, tanto do ponto de vista da ciência básica, quanto do das aplicações tecnológicas.

O efeito surge do acoplamento de troca magnético entre um material ferromagnético (FM) e spins não-compensados (UCS) interfaciais de um material antiferromagnético (AF) adjacente. Diversas são as manifestações do fenômeno, sendo as mais bem conhecidas o deslocamento em campo do ciclo de histerese magnética e o aumento da coercividade. Podemos observá-lo em uma vasta gama de sistemas, dentre eles estão interfaces FM/AF na forma de pequenas partículas, filmes finos e materiais inomogêneos. Sistemas compostos por materiais ferrimagnéticos também podem apresentar EB, por exemplo, interfaces AF/ferri e FM/ferri.

Uma das características fundamentais do efeito é a necessidade de ativá-lo. Isto pode ser feito de diferentes maneiras, como por exemplo através da aplicação de intensos campos magnéticos, de um bombardeamento iônico na presença de campo magnético e de tratamentos térmicos, também com campo magnético aplicado. O presente trabalho apresenta um estudo da influência deste último procedimento. Filmes finos de IrMn/Cu/Co e IrMn/Co foram submetidos a tratamentos térmicos em diferentes temperaturas, e um perfil da variação dos parâmetros do EB foi traçado. Algumas das curvas de histerese obtidas foram ajustadas através de um modelo relativamente simples, e bons resultados foram obtidos. Este modelo, porém, não considera muitas das facetas de um sistema real com EB. Na tentativa de reproduzir o fenômeno considerando sistemas realistas, introduzimos um novo modelo. Por meio deste fomos capazes de obter bons resultados qualitativos e de reproduzir efeitos observados experimentalmente em alguns sistemas.

Dentre estes efeitos podemos citar a mudança do sinal de H_{EB} mediante a aplicação de um campo magnético intenso e o chamado efeito de treinamento. Estes, entretanto, não foram observados experimentalmente nos filmes estudados no decorrer do trabalho.

Quanto a sua organização, este trabalho está dividido em cinco capítulos. O primeiro traz uma revisão de alguns tópicos básicos do magnetismo, que são relevantes para este projeto. No segundo tratamos exclusivamente do fenômeno de *exchange bias*. Um apanhado de suas principais características experimentais é apresentado, juntamente com alguns dos modelos teóricos existentes. Os aparatos experimentais utilizados na caracterização magnética e nos tratamentos das amostras são descritos no capítulo três. O sistema utilizado, multicamadas de IrMn/Cu/Co e IrMn/Co, é apresentado no quarto capítulo, juntamente com os procedimentos experimentais empregados. Finalmente, o quinto e último capítulo retrata os resultados obtidos e uma discussão sobre eles. Neste capítulo também podemos encontrar a descrição do modelo teórico proposto, assim como a de um outro modelo, que foi utilizado em algumas simulações.

1 Revisão teórica

1.1 Ferromagnetismo e antiferromagnetismo

Definimos a magnetização \mathbf{M} de um corpo como uma medida de seu momento magnético por unidade de volume. Uma das manifestações mais notáveis do magnetismo é a magnetização espontânea de certos materiais. Estes são denominados ferromagnéticos¹⁻⁴ (FM), e apresentam um momento magnético resultante mesmo na ausência de um campo externo. Mediante a aplicação de um campo, contudo, a magnetização pode aumentar até atingir um valor máximo \mathbf{M}_s , conhecido como magnetização de saturação. Esta é uma quantidade que depende da temperatura, como mostra a figura 1.1. Conforme a temperatura aumenta, \mathbf{M}_s diminui, atingindo um valor nulo para determinada temperatura crítica T_C , conhecida como temperatura de Curie. Acima desta temperatura o material não apresenta mais ordem ferromagnética, comportando-se como um paramagneto.¹⁻⁴

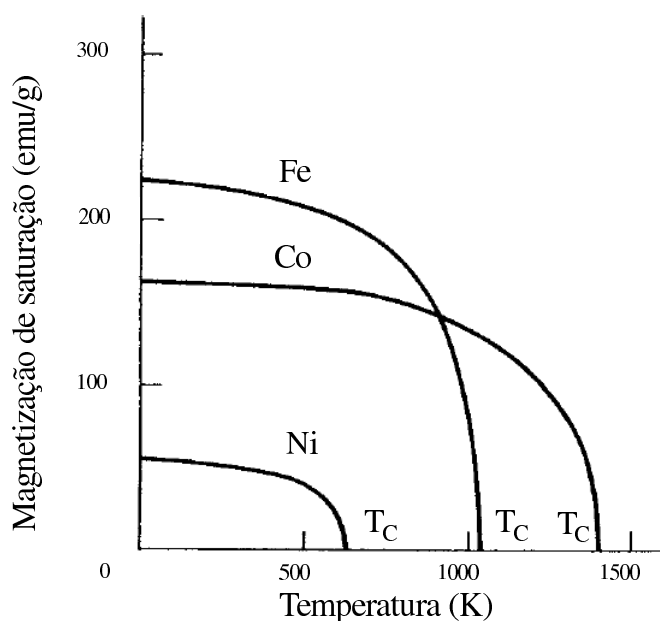


Figura 1.1: Magnetização de saturação em função da temperatura para o Fe, Co e o Ni.¹

Um material paramagnético é composto por átomos, ou moléculas, que possuem um

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

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

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

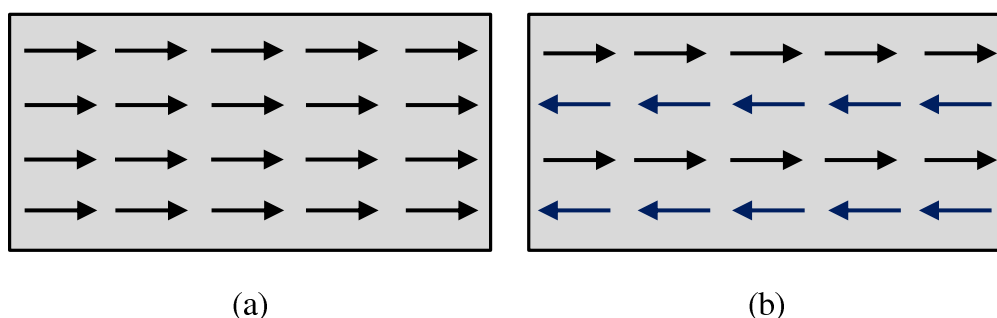


Figura 1.2: Representação ilustrativa de ordem ferromagnética (a) e antiferromagnética (b).

A teoria de Weiss não faz nenhuma menção à origem física do campo molecular. Somente em 1928 esta origem foi compreendida e demonstrada por Heisenberg, através da mecânica quântica. Trata-se de uma interação de troca (*exchange*) entre os momentos

magnéticos do material.^{1, 3} A energia associada a esta interação é dada por

$$E_{ex} = -J_E \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j, \quad (1.1)$$

onde \mathbf{S}_i e \mathbf{S}_j representam os spins de dois átomos, i e j . J_E representa uma integral particular, chamada de integral de troca. Se J_E é positivo, E_{ex} é mínimo quando os spins estão orientados paralelamente, como na figura 1.2(a). Portanto, é necessário que a integral de troca seja positiva para que exista ordem ferromagnética.

Quando consideramos $J_E < 0$, a menor energia se dá quando os spins se orientam antiparalelamente. Poderemos ter um material ferrimagnético,¹⁻⁴ ou um material antiferromagnético¹⁻⁴ (AF). Se considerarmos momentos magnéticos idênticos, divididos em duas sub-redes com orientação antiparalela uma em relação a outra teremos um AF, ilustrado na figura 1.2(b). Estes não apresentam magnetização espontânea, como no caso de um FM, e poderiam ser confundidos com um material magneticamente desordenado. A primeira evidência da ordem antiferromagnética encontrada foi uma variação muito peculiar de χ com a temperatura, figura 1.3. Inicialmente se pensou que poderia tratar-se de um paramagneto anômalo, entretanto, um estudo mais minucioso revelou uma estrutura magnética completamente diferente. Assim como no caso de um FM, um material AF também apresenta uma temperatura crítica, T_N , acima da qual se comporta como um paramagneto. Esta é a chamada temperatura de Néel.

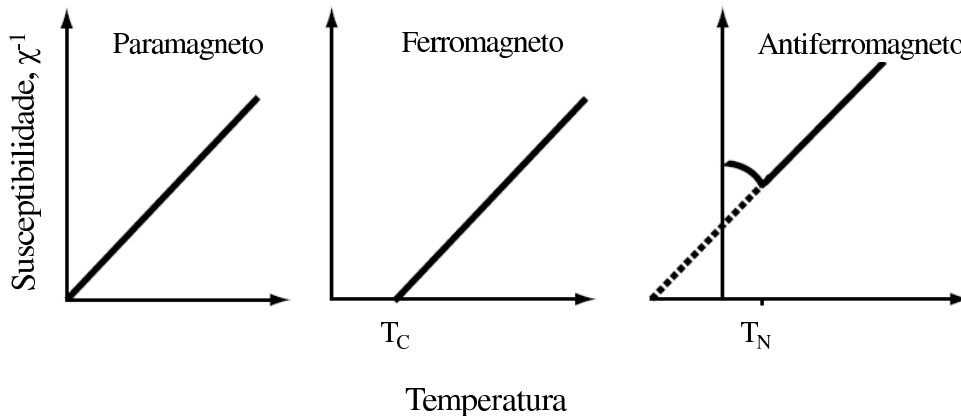


Figura 1.3: Comparação do inverso da susceptibilidade em função da temperatura de um paramagneto, um ferromagneto e um antiferromagneto.²

Pode-se tratar um material AF utilizando a teoria de Weiss assumindo que existem dois campos moleculares, cada um agindo em uma sub-rede. A concordância entre modelo e medidas de susceptibilidade é muito boa e fornece evidências indiretas da ordem AF.

A primeira evidência direta de que um material era de fato AF veio com o advento da difração de nêutrons. Shull e Smart mostraram, em 1949, que os spins do MnO eram divididos em dois grupos, um antiparalelo ao outro.⁷

1.2 Anisotropias magnéticas

As propriedades magnéticas de alguns materiais dependem da direção em que são medidas. Se diz que estes materiais são anisotrópicos, ou, que apresentam anisotropia magnética.^{1, 2} Esta propriedade tem sido estudada nos últimos 80 anos, e surge como uma das mais importantes quando se trata de materiais magnéticos. Além de ser intrigante do ponto de vista da física fundamental, também desempenha papel importante na indústria, sendo explorada em diferentes dispositivos.

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

1.2.1 Anisotropia magnetocristalina

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

Ao observamos curvas de histerese, $M \times H$, de um material ferromagnético podemos notar que, para algumas amostras, o formato das curvas depende da direção em que elas são medidas, como podemos ver na figura 1.4. Para o ferro, cuja estrutura é cúbica de

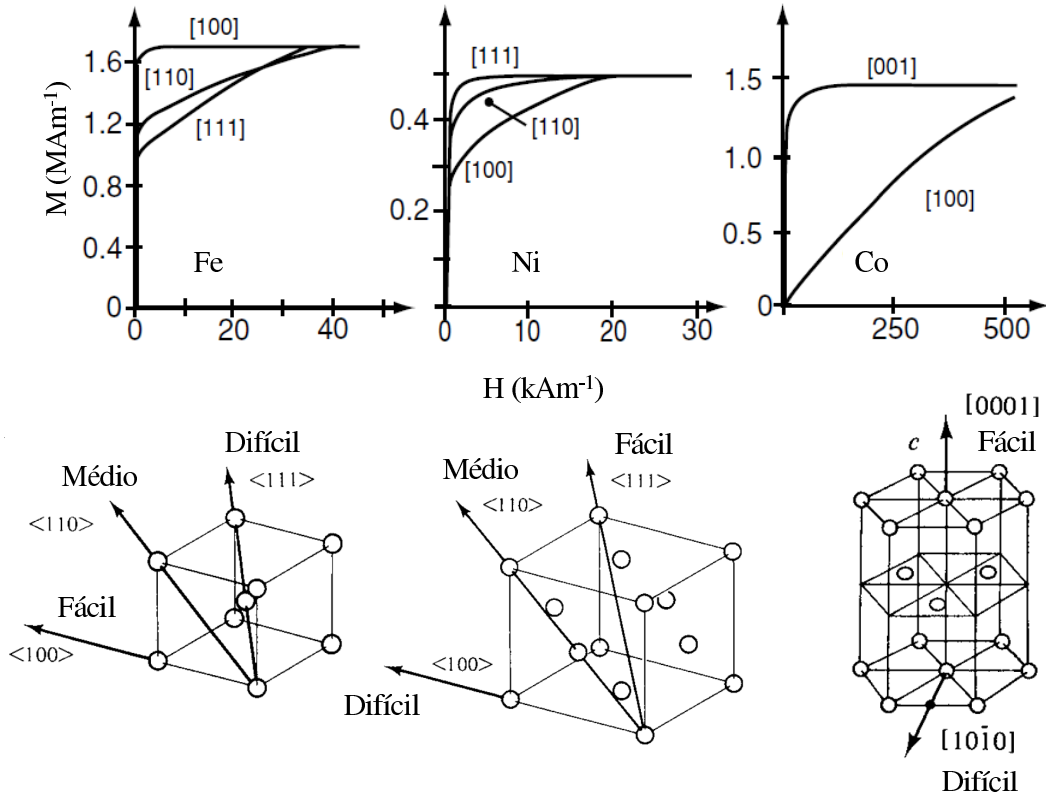


Figura 1.4: Curvas de magnetização para monocristais de ferro, níquel e cobalto² e representação de suas respectivas redes cristalinas.¹

corpo centrado, temos eixos fáceis ao longo das arestas do cubo, $\langle 100 \rangle^*$, e eixo difícil ao longo de sua diagonal, $\langle 111 \rangle$.

O níquel também apresenta estrutura cúbica, porém de face centrada. Ao contrário do ferro, as arestas do cubo são eixos duros e o eixo fácil se encontra na diagonal $\langle 111 \rangle$.

Ao submetemos um cristal à ação de um campo magnético, o campo terá de exercer trabalho para reorientar os spins, e retirá-los de sua posição de equilíbrio. Desta forma o cristal armazena uma certa quantidade de energia, chamada de energia de anisotropia. Para o caso de um cristal cúbico, como Fe e Ni, podemos escrever esta energia, denotada por E_{cub} , em função da orientação da \mathbf{M}_s , em relação e cada um dos eixos do cubo

$$E_{cub} = K_0 + K_1 (\alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2 + \alpha_3^2 \alpha_1^2) + K_2 (\alpha_1^2 \alpha_2^2 \alpha_3^2) + \dots, \quad (1.2)$$

onde K_0 , K_1 e K_2 são constantes particulares de cada material, com dimensão de energia por volume. Os α_i são os cossenos dos ângulos entre \mathbf{M}_s e cada um dos eixos do cubo. Potências mais altas dos α_i geralmente não são necessárias, e eventualmente K_2 é tão

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

pequeno que o seu termo pode ser ignorado.

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

No caso do cobalto, em sua forma maciça, temos uma estrutura cristalina hexagonal, como mostra a figura 1.4. A energia de anisotropia associada com esta estrutura, E_{hex} , só depende do ângulo θ entre \mathbf{M}_s e o eixo c ,

$$E_{hex} = K'_0 + K'_1 \sin^2 \theta + K'_2 \sin^4 \theta + \dots \quad (1.3)$$

Na equação 1.3, K'_0 , K'_1 e K'_2 são constantes que dependem do material, e mais uma vez a relação entre elas determinará quais são os eixos fáceis. Para o cobalto $K'_1 > 0$ e $K'_2 > -K'_1$, e o mínimo de energia é atingido para $\theta = 0$. Apenas o eixo hexagonal c é de fácil magnetização, e qualquer direção no plano basal é igualmente de difícil magnetização. Quando um cristal apresenta apenas um eixo de fácil magnetização, como o cobalto, dizemos que ele tem anisotropia uniaxial. Quando em forma de filme fino, entretanto, o Co pode apresentar uma estrutura cúbica.

1.2.2 Anisotropia de forma

Ao magnetizarmos uma amostra observamos o surgimento de pólos magnéticos. Estes pólos são capazes de produzir um campo magnético, \mathbf{H} , cujas linhas sempre partem do pólo norte e chegam no pólo sul. Isto vale tanto para o exterior quanto para o interior da amostra, como mostra a figura 1.5. O campo magnético criado no interior da amostra tende a se orientar no sentido oposto ao da magnetização que o cria, sendo chamado de campo desmagnetizante, \mathbf{H}_d .

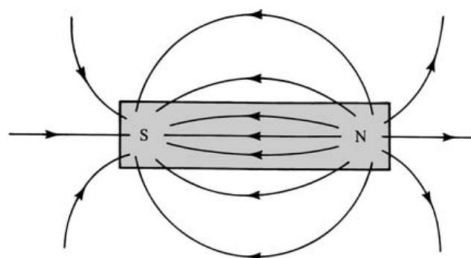


Figura 1.5: Campo magnético, H , produzido pelos pólos de uma barra magnetizada.¹

O campo H_d é extremamente dependente do formato da amostra, e sua intensidade é proporcional à magnetização que o cria, $\mathbf{H}_d = N_d \mathbf{M}_s$. Se tomarmos uma amostra esférica, que não apresenta anisotropia cristalina, e medirmos sua magnetização em diferentes direções, não notaremos diferenças. Repetindo o mesmo procedimento para uma amostra em formato de elipsóide, por exemplo, observaremos o surgimento de uma anisotropia. Trata-se da anisotropia de forma, que se deve ao campo desmagnetizante da amostra.

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

2 *Exchange bias*

2.1 O início

No ano de 1956, W. H. Meiklejohn e C. P. Bean se depararam com um novo fenômeno, que foi descrito por eles como uma nova anisotropia magnética e hoje é conhecido como exchange bias (EB).⁸⁻¹¹ Eles perceberam que a curva de histerese magnética de partículas de cobalto envolvidas por uma camada de seu óxido natural, CoO, apresentava um deslocamento em campo. Isto só acontecia quando a amostra era resfriada de 300 até 77 K, na presença de um campo magnético externo aplicado, cuja intensidade era suficiente para saturá-la magneticamente. Ao executar o mesmo procedimento, mas sem a aplicação do campo, a curva de histerese não apresentava deslocamento algum (figura 2.1). Além disso, para uma temperatura maior do que a temperatura de Néel (T_N) do CoO, as partículas apresentavam um comportamento magnético como o que seria esperado para partículas de Co puro. Concluiu-se então que o efeito surgia da interação entre uma material ferromagnético e um antiferromagnético, e poderia ser descrito como uma anisotropia de troca.

Além de curvas de magnetização, Meiklejohn e Bean também utilizaram medidas de torque para caracterizar as partículas de Co envolvidas pelo óxido. Tais medidas foram executadas com a ajuda de um magnetômetro de torque feito por eles. O sistema era composto por uma mola conectada à amostra, que por sua vez era exposta a um campo magnético. O torque na amostra é medido como função do ângulo θ entre alguma direção cristalográfica e o campo magnético externo aplicado. Para campos intensos, a magnetização na amostra é praticamente paralela à direção do campo, e podemos escrever o torque como

$$T = -\frac{\partial E(\theta)}{\partial \theta}, \quad (2.1)$$

onde $E(\theta)$ é a energia magnética em função do ângulo θ .

Através destas medidas de torque, outra manifestação do EB foi observada. Um

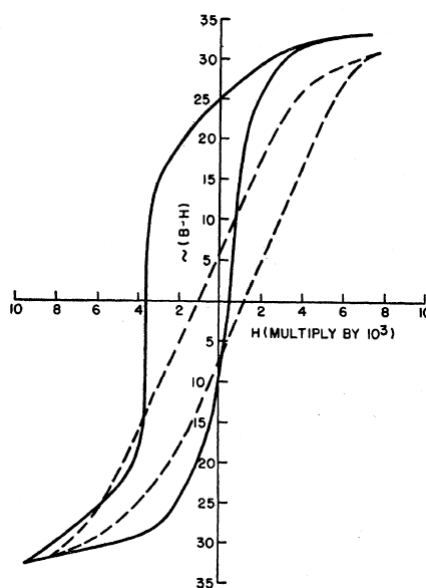


Figura 2.1: Curvas de histerese obtidas por Meiklejohn e Bean⁸ para partículas de Co envolvidos por CoO a 77 K. A curva tracejada foi obtida para uma amostra resfriada sem campo magnético aplicado. A curva cheia foi obtida para uma amostra resfriada na presença de campo magnético.

sistema com anisotropia uniaxial, tal qual partículas de Co puro, apresenta uma curva de torque proporcional a $\sin 2\theta$. Entretanto, para as amostras que apresentavam um deslocamento em campo de sua curva de magnetização, esta curva era proporcional a $\sin \theta$. Então, pela equação 2.1, temos

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

$$E(\theta) = \int K_u \sin \theta d\theta, \quad (2.3)$$

$$E(\theta) = -K_u \cos \theta + C, \quad (2.4)$$

onde K_u é uma constante de proporcionalidade e C uma constante de integração. Pela equação 2.4 percebemos que a energia associada com uma curva de torque proporcional a $\sin \theta$ tem apenas um mínimo, $\theta = 0$. Isto indica que o EB é uma anisotropia unidirecional ou, mais precisamente, “unisentidal”, pois produz apenas um sentido fácil de magnetização, não uma direção.

Meiklejohn tentou explicar o fenômeno do EB através de um modelo teórico simples.¹² Pode-se dizer que este primeiro modelo, que será explicado mais detalhadamente na seção 2.4, obteve bons resultados qualitativos. Quantitativamente, entretanto, os valores do deslocamento previstos por tal modelo poderiam ser ordens de grandeza maiores que os obtidos experimentalmente.

2.2 Modelo intuitivo

Mais de cinco décadas se passaram desde a descoberta do EB, e durante este período inúmeros avanços foram alcançados. Ainda existem diversas dúvidas e discordâncias sobre o assunto, mas também existem certezas. A origem física do fenômeno que é geralmente aceita é a de que existe um acoplamento de troca na interface FM/AF. O modo em que este acoplamento se converte em EB é mais controverso, e muitos modelos foram propostos. Apesar disto, é possível explicar o fenômeno de maneira simples, lançando mão de uma visão intuitiva sobre o assunto.¹²⁻¹⁴

A ideia é descrever o efeito em termos do alinhamento paralelo dos spins AF com os FM na interface FM/AF que acontece durante o processo de resfriamento em campo (tratamento térmico). Vamos considerar um material FM cuja temperatura de Curie, T_C , seja maior do que a T_N do AF. Sendo assim, ao aquecermos o sistema até uma temperatura T , tal que $T_C > T > T_N$, teremos um FM no estado ferromagnético, enquanto que o AF estará desorientado, em um estado paramagnético [figura 2.2(a)]. Se este processo for feito na presença de um campo magnético externo suficientemente grande, a tendência dos spins na camada FM será de se alinhar com tal campo, até atingirem um estado de saturação. Iremos nos referir a este campo como H_{FC} , onde FC são as iniciais de *field cooling*. Os spins interfaciais da camada AF começarão a interagir com os da camada FM, tentando manter um alinhamento paralelo a estes. Conforme o sistema é resfriado, ainda na presença do campo, o AF retorna ao seu estado antiferromagnético original. Entretanto, seus spins interfaciais permanecem alinhados com a camada FM. Como consequência, cada subcamada subsequente do AF irá se orientar antiparalelamente a anterior, resultando em uma magnetização total nula [figura 2.2(b)].

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

Aplicamos um campo magnético com mesma direção e sentido que o campo H_{FC} , e intenso o suficiente para saturar magneticamente a amostra [figura 2.2(b)]. Aos poucos vamos diminuindo o campo, até que ele se torne nulo, e em seguida invertamos seu sentido.

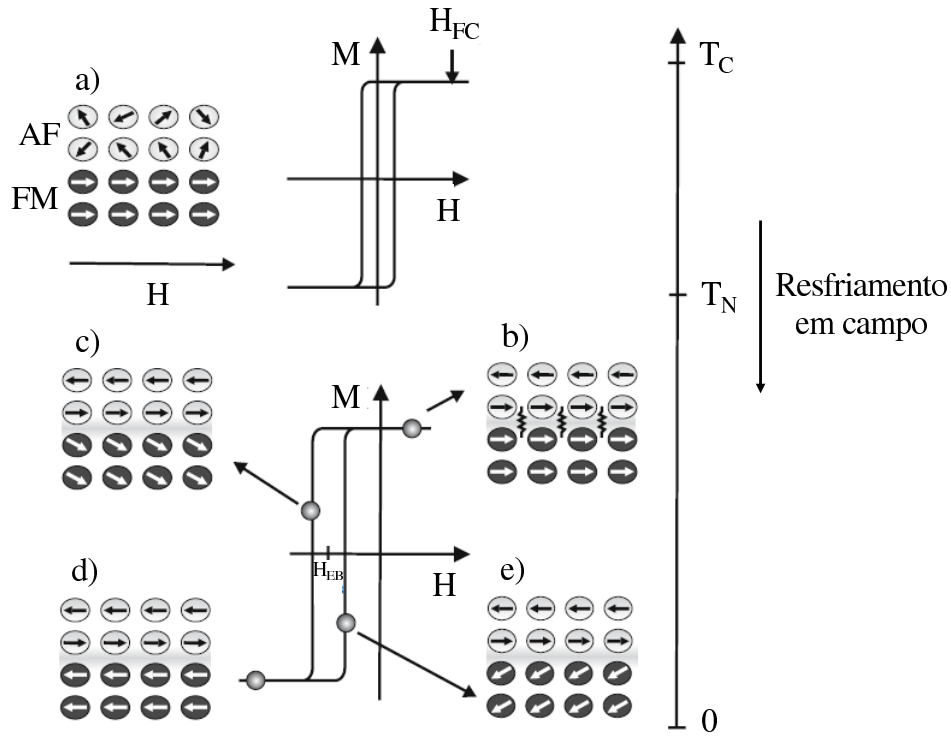


Figura 2.2: Modelo intuitivo para o EB.¹⁴

A tendência dos spins FM será a de se reorientar com o novo sentido do campo. Os spins interfaciais da camada AF permanecem fixos, devido a sua grande anisotropia, e tentam impedir esta reorientação, exercendo um torque sobre os spins FM. Isto irá manter a camada FM presa a sua direção original. Para que exista uma reversão da magnetização, o campo externo aplicado deverá ser aumentado, compensando assim o torque exercido pelo AF [figura 2.2(c)]. Em outras palavras, a reversão da magnetização acontece para um valor de campo magnético maior do que o esperado na ausência do AF. Aumentando ainda mais o campo, chegamos a um estado de saturação na direção oposta a do campo aplicado durante o resfriamento [figura 2.2(d)]. Em seguida diminuimos a intensidade do campo. Agora, o torque exercido pelos spins AF irá ajudar na inversão da magnetização, ao invés de dificultar o processo. Desta forma, um campo magnético menos intenso será necessário para efetuar a inversão. O resultado final desta interação será o deslocamento da curva de histerese magnética. Considerando o sentido do campo H_{FC} como positivo, o deslocamento será no sentido negativo. Finalmente, invertendo o sentido do campo mais uma vez, e aumentando seu módulo, voltamos ao estado inicial, de saturação [figura 2.2(b)].

Para o caso de uma anisotropia pequena do material AF, teremos um processo um

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

Apesar de útil para explicar o fenômeno de maneira simples, este modelo deve ser usado com cuidado. Ele não é capaz de prever muitos efeitos associados com o EB que são comumente observados em laboratório. Além disso, parâmetros que se mostram importantes na descrição de um sistema com EB são deixados de fora, como a formação de domínios AF ou FM, a rugosidade das interfaces e a estrutura de spins do material AF.

2.3 Características gerais

As duas características mais bem conhecidas de um sistema com EB são o deslocamento em campo da curva de histerese e um aumento da coercividade, quando comparada com a de um material FM desacoplado. Uma curva de magnetização típica pode ser observada na figura 2.3, onde estão representados o campo coercivo H_C e campo de exchange bias H_{EB} . Estes dois campos representam, respectivamente, metade da largura da curva para $M = 0$ e o seu deslocamento em relação a origem. Podemos definir estes campos conhecendo os valores de H para os quais a curva cruza o eixo $M = 0$:

$$H_C = -\frac{H_{C,1} - H_{C,2}}{2}, \quad (2.5)$$

$$H_{EB} = \frac{H_{C,1} + H_{C,2}}{2}. \quad (2.6)$$

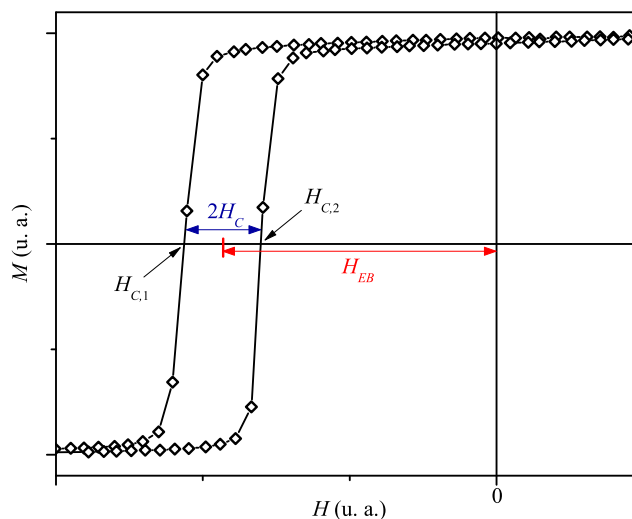


Figura 2.3: Curva de magnetização típica de um sistema com EB.

Além destas, o EB apresenta uma vasta gama de outras características interessantes. Muitas delas são extremamente complicadas de se entender, o que torna o fenômeno ainda mais desafiador e intrigante para os pesquisadores. Segue uma breve discussão de algumas destas características.

Sistemas com EB na forma de filmes finos são intensamente estudados, principalmente pelo seu potencial em aplicações tecnológicas. Cabe, então, a pergunta: qual a influência da espessura destes filmes sobre o efeito? Esta é uma questão bastante explorada, e algumas tendências são observadas. Em geral, H_{EB} é proporcional ao inverso da espessura da camada FM,^{10, 14, 15} mais um indício de seu caráter interfacial. Este comportamento segue para filmes relativamente espessos, com varias dezenas de nanômetros, desde que esta espessura seja menor que o tamanho da parede de domínio FM. Para o caso de filmes muito finos, a relação não é válida. A espessura em que isso ocorre pode variar para diferentes sistemas, e alguns sistemas simplesmente não obedecem este comportamento.

A dependência do EB com a espessura do material AF é mais complicada. Observa-se a existência de uma espessura mínima, abaixo da qual não se verifica-se o fenômeno. Aumentando um pouco esta espessura o efeito surge, aumenta abruptamente, e finalmente se estabiliza.^{10, 15} Em alguns casos podemos observar um máximo de H_{EB} antes que este atinja um valor estável. A espessura exata em que cada um destes estágios é atingido depende do material em questão, de sua estrutura microscópica e da temperatura de medida. Tal comportamento pode estar ligado a diversos fatores, dentre eles o fato de

que a anisotropia de um filme muito fino pode não ser suficiente para impedir a rotação da camada FM e de que T_N pode se modificar com a espessura do AF.

A curva de histerese de um material FM livre, ou seja, não acoplado com um AF, geralmente é simétrica, tanto em relação ao eixo de magnetização quanto ao de campo magnético. Para um sistema com EB isso nem sempre é verdade, e observa-se frequentemente uma assimetria entre o ramo descendente e o ascendente do campo.¹⁴ Esta é uma propriedade intrínseca do EB, porém, efeitos semelhantes podem acontecer devido a mudanças irreversíveis do AF durante a curva de magnetização. Tais mudanças geralmente estão associadas a sistemas que apresentam os chamados efeitos de treinamento. Trata-se da diminuição de H_{EB} após sucessivas medidas do laço de histerese. Este efeito não foi observado experimentalmente em nossos filmes, porém foi obtido através de simulações (ver seção 5.3.1).

Tratando-se de um fenômeno interfacial, devemos esperar uma forte correlação entre a configuração de spins na interface FM/AF e H_{EB} . Podemos caracterizar a camada AF interfacial como compensada ou não-compensada. No primeiro caso temos uma configuração de spins com momentos magnéticos que se anulam e não existe momento resultante. No segundo existe uma orientação preferencial, e os momentos magnéticos de cada spin não se anulam. Se pensarmos no modelo intuitivo descrito na seção 2.2, concluiríamos que apenas uma interface não-compensada seria capaz de produzir EB. Não é o que se observa experimentalmente, onde se verifica o efeito em diversos sistemas com interfaces compensadas.¹⁵⁻¹⁸ Alguns deles, inclusive, apresentam deslocamentos em campo maiores que para os mesmos materiais com interfaces não-compensadas. Este efeito poderia estar ligado a algum tipo de re-arranjo interfacial dos spins, que é normalmente negligenciado. Alguns modelos o atribuem a formação de domínios na camada AF,^{19, 20} acoplamento não-colinear na interface,²¹ transferência de ondas de spins entre a camada FM e a AF,²² ou spins não-compensados residuais na interface.²³

Seguindo a discussão sobre a influência das características da interface sobre o EB, temos a rugosidade. A maior parte dos resultados experimentais concordam que, em filmes finos texturizados, a magnitude de H_{EB} decresce com o seu aumento.^{17, 24} Entretanto, alguns sistemas se mostram mais resistentes a sua influência,^{25, 26} e outros se comportam da maneira inversa, ou seja, quanto maior a rugosidade maior H_{EB} .²⁷

Existe, também, um forte relação entre EB e temperatura. Ao elevarmos a temperatura do sistema perceberemos que em certo momento o efeito some, e a temperatura em que isto acontece é chamada de temperatura de bloqueio, T_B . Em alguns casos T_B pode

ser menor que T_N do material AF envolvido, em outros temos $T_B \approx T_N$. O valor de T_B pode estar ligado ao tamanho dos grãos interfaciais ou a anisotropia do AF, podendo ser menor para filmes finos do que para materiais macroscópicos.¹⁰

A cristalinidade e o tamanho dos grãos também são parâmetros que devem ser controlados e caracterizados. No caso do IrMn, que é o material AF estudado neste trabalho, o crescimento do filme com uma textura (111) é fundamental para a observação do EB.²⁸ O tamanho dos grãos AF também pode ter influência, modificando, inclusive, a T_B do sistema.²⁹

2.4 Modelos teóricos

Um entendimento teórico completo do EB tem se mostrado um objetivo difícil de ser alcançado. A primeira dificuldade que surge ao tentarmos desvendar os mistérios do fenômeno é a vasta gama de sistemas em que ele é observado. Podemos citar sistemas que apresentam uma interface FM/AF na forma de pequenas partículas,^{8, 9} filmes finos,^{15, 30, 31} filmes FM sobre monocristais AF,^{32, 33} e materiais inomogêneos.^{34, 35} Além destes, também pode-se observar EB em sistemas envolvendo materiais ferrimagnéticos (ferri), por exemplo, interfaces AF/ferri¹⁶ e FM/ferri.³⁶

Também é preciso contornar um outro problema fundamental, que está intimamente ligado ao surgimento do efeito. O EB é um fenômeno de interface, e esta esconde inúmeras características relevantes para o efeito, que são desconhecidas por nós. Conhecer tais características seria fundamental para construirmos um modelo satisfatório, completo. Infelizmente, na maioria das vezes, a caracterização experimental de interfaces é complicada, e não consegue fornecer informações suficientes.

Finalmente, um bom modelo teórico para o EB também precisa levar em conta os diversos efeitos que o acompanham. Podemos citar, entre eles, a variação da temperatura de bloqueio, T_B ; o efeito de treinamento; e o aumento da coercividade.

Diversos modelos foram propostos desde 1956, e pode-se dizer que vários deles obtiveram bons resultados. Infelizmente, nenhum deles foi capaz de explicar o fenômeno de maneira totalmente eficaz. A seguir serão apresentados alguns dos modelos teóricos existentes. Muitos outros serão deixados de fora, mas poderão ser encontrados em artigos de revisão que existem sobre o assunto.^{10, 14, 37, 38}

Na tentativa de jogar luz sobre o fenômeno que havia recém descoberto, Meiklejohn¹²

propôs um modelo simples, que partia de alguns pressupostos. Ele considerou uma camada FM que rotaciona de forma rígida, como um todo. Tanto o FM como o AF foram tratados como monodomínios, e a interface entre eles como sendo perfeitamente lisa. A camada AF possui anisotropia uniaxial no plano, e não rotaciona, permanecendo imóvel durante a reversão da magnetização da camada FM. Os spins interfaciais AF são não-compensados, ou seja, possuem momento magnético resultante e apresentam uma interação de troca com os spins interfaciais FM. O parâmetro que rege esta interação é a constante de energia de acoplamento de troca interfacial por unidade de volume do FM, J_E .

O modelo de Meiklejohn é bem sucedido em prever o deslocamento do ciclo de histerese, porém, o valor previsto por ele para tal deslocamento pode ser ordens de grandeza maior do que o observado experimentalmente.¹⁴ Para estimar o valor de H_{EB} usando este modelo é necessário conhecer J_E , mas este valor é difícil de ser medido experimentalmente. Normalmente, se utiliza para o cálculo um valor tal que $J_{AF} < J_E < J_{FM}$, onde J_{AF} e J_{FM} são as constantes de acoplamento de troca para a camada AF e FM respectivamente. Além da falta de informação sobre J_E , existe a suposição de que a interface é perfeitamente lisa, o que geralmente não é o caso.

Dez anos após a descoberta de Meiklejohn e Bean, Néel propôs uma nova teoria sobre o EB.³⁹ Seu modelo trazia uma interface AF não-compensada, que poderia sofrer deformações irreversíveis durante a reversão da magnetização da camada FM. Esta era uma grande mudança em relação ao modelo de Meiklejohn, que assumia uma camada AF rígida, ou com um pequeno desvio de seu eixo de anisotropia. Néel foi o primeiro a introduzir a possibilidade da evolução de uma parede de domínio no interior do AF durante a reversão da magnetização. Esta parede seria capaz de armazenar parte de energia de acoplamento de troca envolvida, o que diminuiria o H_{EB} . Apesar destas ideias inovadoras, o modelo falha em obter valores razoáveis para o deslocamento em campo das curvas de histerese. Além disso, exige espessuras mínimas das camadas FM e AF, o que restringe muito sua aplicação em filmes finos comumente utilizados nos dias de hoje. Mesmo assim deve ser exaltado, pois serviu de base para modelos que viriam mais tarde e trouxe uma nova visão do fenômeno.

Em meados de 1972, Fulcomer e Charap⁴⁰ propuseram um modelo que considera um filme fino de material FM coberto por uma camada AF constituída de inúmeras pequenas partículas. Foram levadas em conta diversos tamanhos e formatos de partículas, e uma boa concordância entre simulação e experimento foi obtida para *permalloy* oxidado. A dependência de H_{EB} e H_C com a temperatura, mesmo para $T > T_N$, foi prevista com

sucesso. Este modelo, considerado por alguns como um dos mais bem sucedidos quando se trata de EB, hoje serve como alicerce para modelos granulares baseados em flutuações térmicas.

Para obter uma melhor previsão quantitativa dos efeitos do EB, Mauri e colaboradores propuseram, em 1987, a criação de uma parede de domínio no interior do material AF, impondo assim um limite superior para o valor de H_{EB} . Eles consideraram um acoplamento ferromagnético através de uma interface FM/AF perfeitamente lisa. A camada AF era infinitamente mais espessa do que a FM, e esta última tinha espessura menor do que a largura de uma parede de domínio. Desta forma uma parede de domínio não poderia se desenvolver dentro do FM, evoluindo, então, para o interior do AF. Este foi o primeiro modelo de domínios para o EB após o de Néel, e obteve bons resultados quando se trata dos valores de H_{EB} . Entretanto, algumas das características básicas do fenômeno não puderam ser explicadas por ele, como por exemplo o aumento do H_C e a diminuição do deslocamento em campo das curvas após ciclos repetidos.

Malozemoff, também em 1987, publicou um modelo que introduzia uma interface aleatoriamente rugosa entre o FM e o AF,¹⁹ e foi capaz de obter valores razoáveis para H_{EB} . Esta rugosidade dava origem a campos magnéticos aleatórios, que agiam sobre os spins da interface, gerando uma anisotropia unidirecional e, conseqüentemente, um deslocamento das curvas de histerese. Infelizmente, este modelo só pode ser aplicado para AF monocristalinos, tornando-se muito complicado para o caso policristalino, onde os resultados dependeriam de sua microestrutura. Outra desvantagem é sua dependência crucial com a concentração de defeitos na interface, e sua incapacidade de prever EB em interfaces perfeitamente compensadas.

Diferentemente de Mauri⁴¹ e Malozemoff,¹⁹ Koon²¹ foi capaz de encontrar, através de uma análise microscópica, EB em interfaces compensadas. Sua proposta era a de uma camada FM cuja magnetização se orientava perpendicularmente ao eixo fácil do AF. Com este acoplamento perpendicular (semelhante ao *spin-flop* em um *bulk* AF) tanto interfaces compensadas como não-compensadas são capazes de produzir valores semelhantes de H_{EB} . Isto se deve a formação de uma parede de domínio no AF, paralela à interface, durante a reversão da magnetização do FM. Koon também observou uma pequena inclinação relativa entre os spins interfaciais da camada AF. Entretanto, este efeito acabava sumindo após algumas mono-camadas.

Os modelos de Malozemoff e Koon foram combinados por Schulthess e Butler^{42, 43} entre 1998 e 1999. Além dos tradicionais termos de anisotropia, acoplamento e Zeeman,

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

Também em 1999, Stiles e McMichael⁴⁴ tentaram uma aproximação diferente do problema, considerando bicamadas FM/AF policristalinas. Ao invés de considerarem átomos ou momentos magnéticos, eles focaram nos grãos interfaciais da camada AF. Estes grãos não interagem entre si, mas eram acoplados via interação de troca e *spin-flop* com o FM. Dois tipos diferentes de grãos são considerados. Os estáveis, que mantêm sua ordem magnética durante a reversão da magnetização são responsáveis pelo deslocamento da curva de histerese. Já os instáveis, desenvolvem uma parede de domínio em seu interior, sendo responsáveis por efeitos histeréticos observados em curvas de torque rotacional e ressonância ferromagnética.

O modelo de estado de domínio (*Domain state model*) foi introduzido por Nowak e colaboradores em 2002.⁴⁵ Ele traz um material AF diluído, com defeitos, representados por átomos não magnéticos, tanto em sua interface quanto no seu interior. Neste modelo o EB aparece através de um estado de domínio criado no AF durante o resfriamento em campo. Este estado é metaestável, mas acaba “congelando-se” durante o processo de resfriamento. A existência de defeitos não magnéticos facilita a criação de uma parede de domínio através destes sítios, diminuindo a energia necessária para formá-la. O modelo é capaz de reproduzir muito bem alguns dos resultados experimentais obtidos para materiais AF cuidadosamente dopados com impurezas não-magnéticas.^{46, 47}

Além dos modelos apresentados acima, ainda poderíamos citar Kiwi,⁴⁸ com seu modelo para interfaces compensadas; Kim e Stamps⁴⁹ e sua parede de domínio parcial entre outros.

2.5 Anisotropia rodável

No início da década de 1960, Prosen e colaboradores⁵⁰ observaram um novo tipo de anisotropia magnética em filmes finos de Ni, onde a direção de fácil magnetização poderia ser selecionada mediante a aplicação de um campo magnético suficientemente forte. O novo fenômeno foi batizado por eles de *rotatable anisotropy*, RA, ou anisotropia rodável,* em tradução livre. O efeito foi atribuído a interação do filme de Ni com uma fina camada de seu óxido, que é um material AF, formada sobre a superfície da amostra. Em 1962, Lommel e Graham⁵¹ observaram um efeito semelhante, agora em filmes de Ni depositados sobre Mo. Mais uma vez uma camada de NiO foi fundamental para a observação do fenômeno.

Como já mencionado, o aumento da coercividade em filmes contendo uma interface FM/AF, quando comparados com um filme contendo apenas a mesma camada FM, é uma das manifestações mais bem conhecidas do EB. A anisotropia rodável surge como uma explicação possível para este efeito. Poderíamos imaginar momentos magnéticos não-compensados provenientes da camada AF que interagem com o FM. Dependendo da estabilidade destes momentos, eles poderiam ser carregados pelo FM durante um processo de reversão da magnetização. Por possuírem sua própria anisotropia, contribuiriam para um aumento de H_C , sem afetar o deslocamento em campo da curva.

Também é possível observarmos a influência do campo de anisotropia rodável em medidas de ressonância ferromagnética (FMR) executadas em filmes com EB. O que normalmente se observa é um deslocamento da curva $H_{res} \times \phi_H$, onde H_{res} representa o campo de ressonância e ϕ_H o ângulo de aplicação deste campo no plano do filme. Valores menores de H_{res} são observados em amostras com RA quando comparados com aqueles obtidos para sistemas sem esta anisotropia. O efeito é isotrópico, o que caracteriza uma anisotropia cujo eixo fácil está sempre alinhado com o campo magnético aplicado.

Alguns modelos foram propostos para explicar este comportamento da FMR em filmes com EB, assim como o aumento de H_C . Após um estudo cuidadoso em filmes de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ acoplados com NiO, McMichael e colaboradores reproduziram seus resultados experimentais considerando um termo de RA na forma $-\mathbf{M} \cdot \mathbf{H}_{\text{RA}}$. Neste caso \mathbf{H}_{RA} era praticamente paralelo ao campo aplicado \mathbf{H} .⁵² Quando processos irreversíveis de magnetização estão envolvidos, entretanto, é necessário considerarmos uma RA proporcional a $-(\mathbf{M} \cdot \mathbf{H})^2$ para que seja possível a reprodução de curvas de histerese completas.⁵³ Desta

*Este nome é comumente utilizado no sul do Brasil. Alguns pesquisadores da região nordeste, entretanto, utilizam a denominação rotatória.

forma, o acoplamento com os UCS rodáveis é sentido pelo FM como uma anisotropia uniaxial adicional que possui um eixo de simetria sempre paralelo ao campo aplicado. Esta aproximação fenomenológica é capaz de explicar qualitativamente tanto o deslocamento das curvas de FMR quanto o aumento da coercividade.

Fulcomer e Charap,⁴⁰ em 1972, propuseram um modelo que trata um sistema de grãos AF com orientações e magnetizações uniformes. O comportamento térmico destes grãos é estudado, e sua barreira de reversão é determinada por sua anisotropia de volume. Já no modelo de Stiles e McMichael,⁴⁴ os grãos são orientados aleatoriamente e apresentam paredes de domínio parciais. Em ambos os modelos, assume-se que a camada AF é dividida em duas partes, uma com anisotropia rodável e outra com anisotropia não-rodável.

Kim *et al.*⁵⁴ simularam os efeitos da RA na magnetoresistência anisotrópica em filmes de FeMn/NiFe. Eles permitiram mudanças na RA, tanto em sua magnitude quanto na direção de seu eixo fácil, conforme o valor do campo magnético aplicado era variado. Os spins AF responsáveis pelo EB foram mantidos em uma direção fixa (anisotropia AF muito grande) e não foi considerada anisotropia na camada FM. Foi observado por eles um valor maior de RA para filmes contendo camadas AF mais finas. A partir de uma determinada espessura, porém, não se observou mais variações desta anisotropia. Este resultado é consistente com o fato de que filmes AF mais finos possuem um número maior de grãos instáveis, e são estes que contribuem para a anisotropia rodável.

Radu e colaboradores, em 2006,⁵⁵ consideraram que o comportamento de filmes policristalinos magneticamente desorientados é similar ao de um sistema de *spin glass* (SG). A expressão para a energia utilizada neste modelo, posteriormente chamado de modelo de SG para o EB,¹⁴ difere daquela proposta anteriormente⁵³ pelo uso de uma anisotropia uniaxial, ao invés da de parede de domínio, para o AF. Também foi assumido um desvio do eixo fácil da RA em relação a direção de EB. Foi uma tentativa de explicar o aparecimento de um máximo de H_{EB} para um campo magnético externo aplicado em uma direção diferente da de EB. Este efeito, contudo, pode ser reproduzido naturalmente através de modelos de DWF^{56, 57} e de AF rígido.⁵⁸

A origem de outra característica intrínseca de sistemas com EB também foi atribuída a RA por Yang e colaboradores.⁵⁹ Ao estudarem filmes de NiO/Ni eles perceberam que a assimetria das curvas de histerese poderia ser explicada através da adição de uma RA nas simulações. Entretanto, esta explicação só é válida para filmes com camadas finas de material AF. Naquelas em que esta camada é mais espessa, o fenômeno pode ser explicado considerando apenas uma competição entre anisotropias, e os grãos rodáveis

não desempenham papel tão importante.

Temos, portanto, diversos efeitos ligados ao EB que podem ser explicados através de momentos interfaciais rodáveis. Na seção 5.3 apresentaremos um modelo teórico que considera a existência destes grãos instáveis, juntamente com grãos estáveis que contribuem para o deslocamento da curva de histerese. Já na seção 5.3.1, mostraremos que, pelo menos teoricamente, os efeitos de treinamento atérmicos observados em alguns sistemas com EB podem ser reproduzidos através de uma RA.

3 *Técnicas experimentais*

3.1 AGFM

O *Alternating Gradient Force Magnetometer*,^{1, 60}(AGFM) ou Magnetômetro de Gradiente de Força Alternada, é um dispositivo capaz de medir variações no momento magnético com alta sensibilidade ($\approx 10^{-9} \text{Am}^2$). Através dele é possível realizar medidas de magnetização em filmes com espessuras da ordem de 1 nm. É um equipamento muito mais sensível que um VSM convencional, e pode traçar curvas de histerese mais rapidamente que um SQUID. Seu princípio de funcionamento baseia-se na força sofrida por um momento magnético quando submetido a um gradiente de campo magnético.

O AGFM utilizado na caracterização magnética das amostras estudadas no presente trabalho não é um equipamento comercial, tendo sido produzido em nosso próprio laboratório. A figura 3.1 mostra esquematicamente a configuração do equipamento. Ele é constituído basicamente por uma haste, uma cápsula protetora, um eletroímã e pequenas bobinas de gradiente. A haste é formada por um tubo capilar de vidro. Em uma de suas extremidades encontra-se um pedaço retangular de vidro, que serve como porta-amostra, enquanto na outra temos um elemento de material piezoelétrico colado a um suporte plástico. Pequenos fios de cobre são soldados ao piezoelétrico e o conectam ao suporte plástico, onde se encontram coletores para a leitura do sinal elétrico.

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

Para que uma medida seja realizada, colocamos uma amostra magnética na extremidade da haste, onde encontra-se o suporte de vidro, fixando-a com graxa. Na outra extremidade da haste, temos incorporado o material piezoelétrico. A amostra é então magnetizada por um campo magnético DC, \mathbf{H}_{DC} , produzido pelas bobinas do eletroímã.

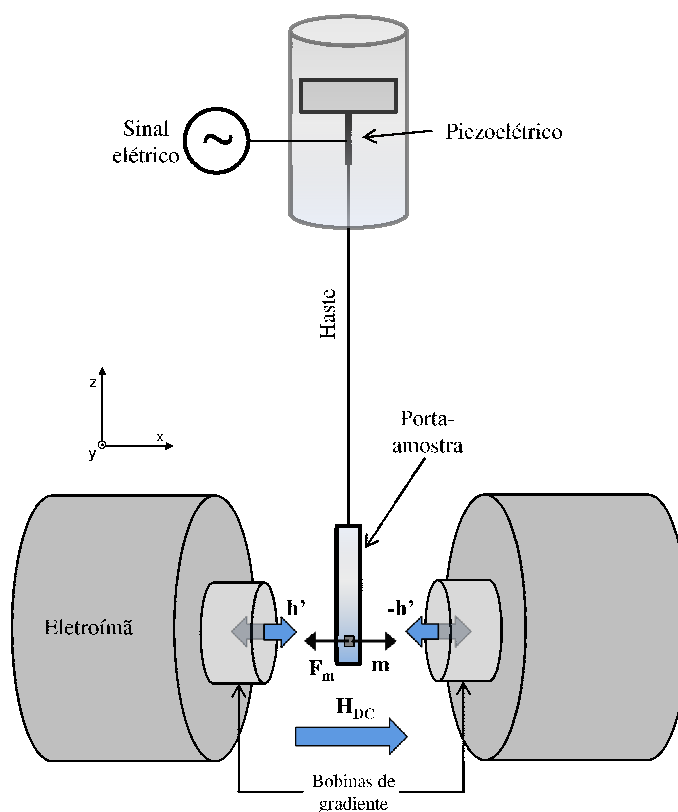


Figura 3.1: Configuração esquemática do AGFM.

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

Temos na figura 3.2 um diagrama de blocos do equipamento, onde todos os seus componentes estão representados. Aqui podemos ver, além dos componentes citados anteriormente, outros itens importantíssimos para o funcionamento do AGFM. Uma fonte

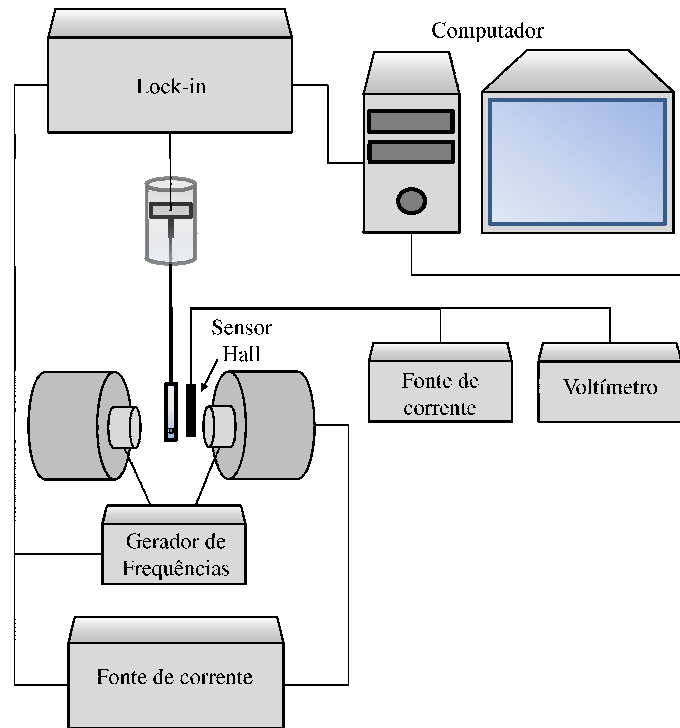


Figura 3.2: Diagrama de blocos do AGFM.

de corrente e um multímetro, juntamente com um sensor Hall, são utilizados para medir H_{DC} . As bobinas responsáveis pelo gradiente de campo são alimentadas por um gerador de funções, que conecta-se também com o *Lock-in*. Através desta comunicação, as fases do amplificador e do sistema permanecem iguais durante uma medida. O *Lock-in*, além de executar a leitura do sinal proveniente do piezoelétrico, controla a fonte de alimentação das bobinas que magnetizam a amostra. Finalmente, os dados são recebidos por um computador, onde são armazenados e processados.

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

3.2 Forno resistivo

O EB é um fenômeno de interface, e ocorre quando existe contato atômico entre um material FM e um AF. Entretanto, nem todas as amostras que possuem tal interface apresentam o efeito. Em algumas delas não existe uma estrutura cristalográfica que o favoreça. O IrMn, por exemplo, deve crescer com uma textura (111) para que seja observado EB. Certas amostras como-feitas, porém, não exibem um deslocamento da curva de histerese magnética, mesmo possuindo as características estruturais adequadas. Na realidade,

o efeito precisa ser iniciado, e para este fim diferentes técnicas podem ser empregadas. Pode-se fabricar amostras na presença de um campo magnético aplicado, submetê-las a um bombardeamento iônico também na presença de um campo,⁶¹⁻⁶⁴ ou ainda expô-las a campos magnéticos extremamente intensos.^{65, 66} Tal ativação também pode ser obtida através de tratamentos térmicos na presença de campo magnético aplicado, como foi feito neste trabalho.⁶⁷ No caso de um material FM com anisotropia pequena, mesmo sua magnetização remanente é capaz de principiar o fenômeno.⁶⁸

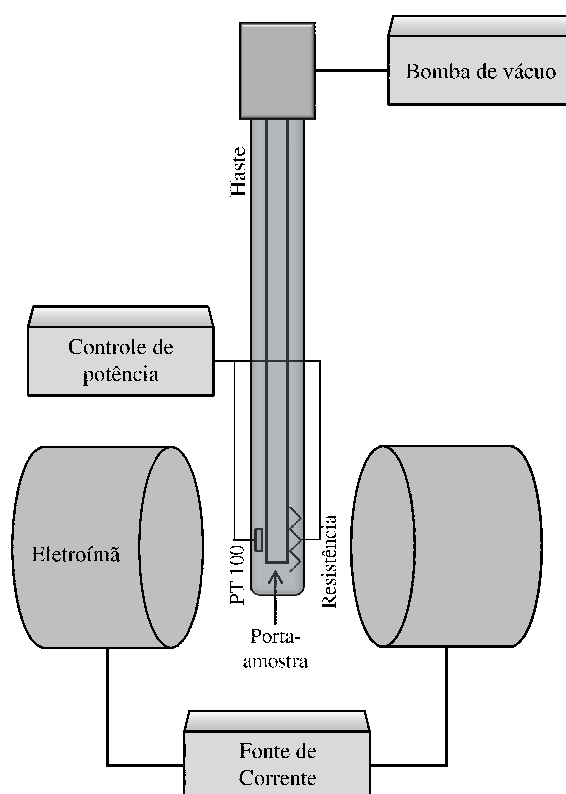


Figura 3.3: Diagrama de blocos do forno resistivo.

Entende-se por tratamento térmico a exposição de uma amostra a altas temperaturas, na presença de um campo magnético aplicado. Este procedimento foi realizado por nós com a ajuda de um forno resistivo, representado na figura 3.3. O equipamento é constituído basicamente de uma haste que possui uma resistência elétrica em sua ponta, onde encontra-se um porta-amostra. A haste é envolvida por uma cápsula, isolando-a do ambiente. Conectada a esta cápsula existe uma bomba de vácuo, garantindo que a pressão do sistema mantenha-se baixa durante os tratamentos evitando a oxidação das amostras.

Colocado próximo ao porta-amostra, existe um sensor de temperatura do tipo PT100 que conecta-se a um controlador de potência. Neste controlador somos capazes de programar a temperatura na qual desejamos realizar o tratamento térmico. O controlador faz com que uma corrente elétrica percorra a resistência que existe na ponta da haste,

fazendo com que o sistema se aqueça. Conforme a temperatura dentro do sistema varia, o sensor manda esta informação para o controlador de potência, que aumenta ou diminui a corrente na resistência de maneira a alcançar e manter a temperatura programada.

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

4 *Procedimentos experimentais*

4.1 Amostras

A maioria dos sistemas estudados hoje que apresentam EB são concebidos na forma de filmes finos. Esta configuração permite um melhor controle de interfaces e facilita aplicações tecnológicas.^{69, 70} Além disso, um grande número de combinações diferentes de materiais FM e AF pode ser empregado nesta configuração. Todas as amostras estudadas no presente trabalho se apresentam neste formato, as principais delas possuem as seguintes composições nominais:

- Si(100)/Ru(15 nm)/IrMn₄(15 nm)/Co(5 nm)/Ru(3 nm)
- Si(100)/Ru(15 nm)/IrMn₄(15 nm)/Cu(0,25 nm)/Co(5 nm)/Ru(3 nm)

O IrMn surge como um excelente material AF do ponto de vista tecnológico, mostrando-se superior a sistemas tradicionais, como FeMn e NiO.⁷¹ Sua boa resistência à corrosão, alta temperatura de bloqueio e relativamente alta constante de anisotropia são apenas algumas de suas qualidades. Também poderíamos citar sua baixa espessura crítica, abaixo da qual não se observa EB. Apenas algumas camadas atômicas de IrMn são capazes de produzir o efeito.

Acoplado ao IrMn temos o Co, nosso material FM. Completam a multicamada Ru e, para uma das amostras, Cu. A camada de 15 nm de Ru depositada diretamente sobre o substrato de Si serve como camada semente (*buffer*), influenciando na cristalinidade, aderência e rugosidade do filme. Já a camada superior, de 3 nm, serve apenas como proteção. Estas amostras fazem parte de uma série maior,^{31, 72} estudada em trabalhos prévios de nosso grupo, onde a espessura do espaçador de Cu foi sistematicamente variada. Aqui o espaçador foi utilizado como um artifício para modificar a interface FM/AF, tendo em vista que um de nossos objetivos era estudar a criação de defeitos e inter-difusão na interface devidos aos tratamentos térmicos. Esta amostra, tendo a menor quantidade de Cu,

também foi escolhida para evitar substituições não-magnéticas no volume do IrMn, causadas por uma possível difusão durante o aquecimento (note que Co e Cu são imiscíveis). Os filmes são mostrados esquematicamente na figura 4.1.

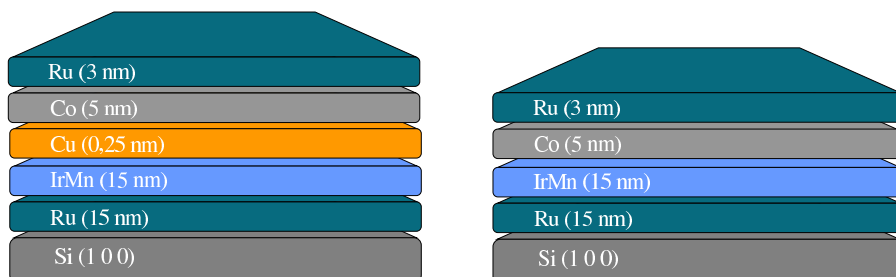


Figura 4.1: Configuração dos filmes finos estudados no presente trabalho.

4.2 Produção das amostras

Diversas técnicas podem ser empregadas na fabricação dos filmes, dentre elas destacamos o desbastamento iônico, ou *sputtering*,⁷³ que foi a técnica utilizada na produção das amostras estudadas neste trabalho. Trata-se de um processo de vaporização física, não térmica, de átomos de uma superfície (alvo) através do bombardeamento de partículas energéticas. Tais partículas energéticas são geralmente íons de um material gasoso aceleradas por um campo elétrico. Uma vez ejetadas do alvo, as partículas podem se depositar em um substrato, formando assim o filme fino.

A deposição de filmes via desbastamento iônico é feita dentro de uma câmara fechada, conectada a um sistema de vácuo. Dentro da câmara temos um canhão, sobre o qual colocamos o alvo composto do material que pretendemos depositar. O substrato onde o filme será crescido se coloca, em geral, diametralmente oposto ao alvo. Admite-se então vácuo no sistema, de maneira a evitar possíveis contaminações. Logo após se introduz o gás que será responsável por fornecer os íons a serem acelerados, em geral se utiliza argônio. O canhão é então ligado e cria uma diferença de potencial entre o alvo e o substrato. Isto faz com que o gás no interior da câmara se ionize, formando uma mistura de elétrons e íons, um plasma. Os íons são acelerados, e ao colidirem com o alvo são capazes de remover átomos de sua superfície e ejetá-los. Estes átomos acabam se depositando sobre o substrato e formam o filme.

A configuração descrita no parágrafo anterior é apenas uma das possíveis na deposição de um filme via *sputtering*. Ela é conhecida como diodo DC. Para alvos isolantes, por

exemplo, utiliza-se o chamado *sputtering* RF (rádio frequência). Neste caso um potencial periódico é introduzido, com uma frequência entre 0,5 e 30 MHz. Durante parte de cada ciclo, o potencial é capaz de acelerar os íons e promover o desbastamento do alvo. Na outra parte do ciclo os elétrons do plasma são atraídos para o alvo e evitam um acúmulo de cargas.

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

As multicamadas estudadas foram produzidas na França, por C Deranlot e F. Petroff. A deposição foi feita via *magnetron sputtering* RF no Unité Mixte de Physique CNRS/Thales, Université Paris-Sud, Orsay. Para todos os filmes a pressão de base na câmara foi de 5×10^{-8} mbar. Uma atmosfera de Ar foi utilizada para o desbastamento, onde a pressão foi mantida em $2,5 \times 10^{-3}$ mbar para o Ru, o Cu e o Co. Já para o IrMn foi utilizada uma pressão de $1,0 \times 10^{-2}$ mbar.

4.3 Tratamentos térmicos

Como já foi discutido anteriormente, para a maioria dos sistemas com EB é necessário que o efeito seja ativado. Uma das maneiras de se fazer isto é através de um tratamento térmico, ou recozimento, na presença de um campo magnético. Este foi o procedimento utilizado por nós, com a ajuda do forno resistivo descrito na seção 3.2. Mais do que isto, um dos objetivos deste trabalho era justamente estudar a influência dos tratamentos térmicos sobre os parâmetros do EB. Entretanto, mesmo para uma única amostra, esta pode ser uma tarefa que consome muito tempo, gerando uma grande quantidade de informação. Muitos parâmetros podem ser variados, cada um deles podendo ter influência

significativa nos resultados. Temos, basicamente, o tempo de tratamento, a temperatura T_{ann} , a direção (θ_{ann}) e a intensidade do campo \mathbf{H}_{ann} aplicado durante o processo.

Inúmeros recozimentos foram realizados, com diferentes conjuntos de parâmetros. Escolhemos manter $H_{ann} = 2 \text{ kOe}$ para todos os tratamentos. Este campo é suficiente para saturar magneticamente a camada FM de nossas amostras, o que é desejável para a obtenção de EB. Desta forma mantivemos constante um dos parâmetros envolvidos. A pressão no forno também foi controlada, tendo sido mantida sempre na ordem de 10^{-6} mbar .

Os filmes como-depositados apresentaram um pequeno deslocamento de suas curvas de histerese, como mostra a figura 4.2. Além disto, podemos notar o formato muito peculiar destas curvas, que parece indicar a existência de duas fases magnéticas. Em outro estudo de nosso grupo,⁷⁴ onde a contribuição do espaçador de Cu foi analisada, torna-se claro que este formato de curva é uma assinatura do EB. Filmes com uma camada de Cu muito espessa, que não apresentam EB, também não possuem curvas de magnetização com esta forma para amostras como-feitas. Provavelmente o campo magnético do *magnetron*, mesmo sendo pequeno, foi capaz de induzir uma direção preferencial de EB durante a deposição. Antes de cada tratamento esta direção foi determinada, assim como o sentido de máximo H_{EB} , ao qual iremos nos referir como eixo fácil de magnetização (ef). Definimos, então, θ_{ann} como o ângulo entre o \mathbf{H}_{ann} e este sentido, sempre aplicando o campo no plano do filme. Para a maioria dos casos mantivemos $\theta_{ann} = 0^\circ$, entretanto, este ângulo foi variado para determinados valores de T_{ann} .

Uma variação sistemática da temperatura foi realizada para ambas as amostras, com $\theta_{ann} = 0^\circ$ e duração de tratamento de 15 minutos. A temperatura mínima foi de 75°C e a máxima de 300°C . Tratamentos a temperaturas mais altas poderiam gerar difusão e defeitos interfaciais, danificando as amostras.

Cada um dos casos mencionados acima foi realizado com um pedaço diferente de amostra, que media aproximadamente $0,3 \times 0,3 \text{ cm}^2$. A grande maioria destes filmes foi submetida a apenas um tratamento. Todavia, para algumas temperaturas específicas, foi feito um estudo dos efeitos de recozimentos consecutivos.

4.4 Caracterização magnética

As curvas de histerese obtidas durante a confecção deste trabalho foram traçadas utilizando o AGFM apresentado na seção 3.1. As medidas foram sempre realizadas em temperatura ambiente, com um campo de no máximo 2 kOe aplicado no plano do filme.

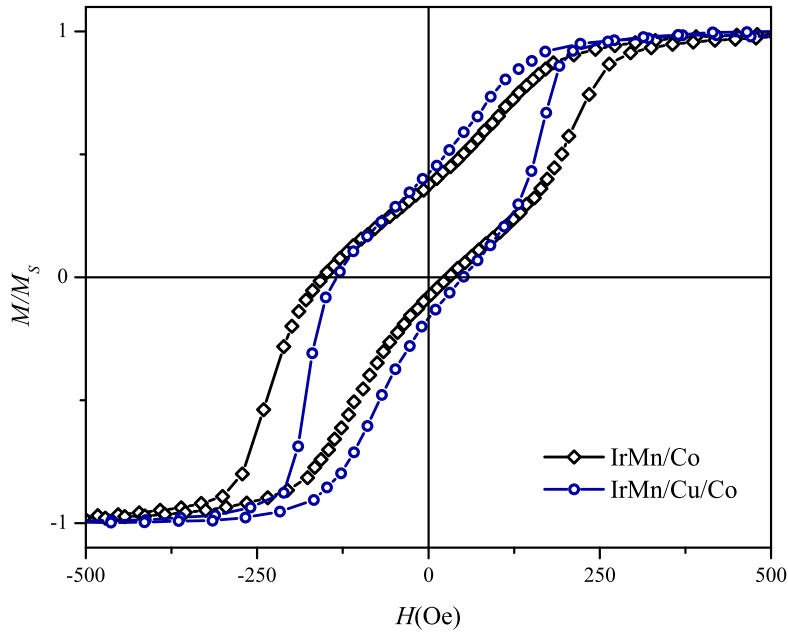


Figura 4.2: Curvas de histerese obtidas via AGFM para as amostras como-feitas. Ambas as curvas foram medidas no eixo de EB, onde os valores máximos de H_{EB} são observados.

Este campo é suficiente para saturar magneticamente a camada FM de nossos filmes, evitando possíveis efeitos de *minor loops*.⁷⁵

Medidas de magnetização com variação angular foram realizadas para cada uma das amostras, como-depositadas e tratadas. Em outras palavras, cada filme foi medido inúmeras vezes, com o campo magnético do AGFM aplicado em diferentes direções no plano. Definida uma referência, em geral o eixo de EB, foram feitas medições a cada 10° . Um círculo graduado ajudou na determinação destes ângulos. Infelizmente, este não é o método ideal e nossa precisão não é maior do que 5° neste tipo de procedimento.

Os primeiros laços de histerese de cada amostra foram repetidos algumas vezes, mantendo os parâmetros do magnetômetro constantes. Nenhuma diferença nas curvas foi observada, o que indica que o sistema estudado não apresenta efeitos de treinamento. Além disso, demonstra a estabilidade de nosso sistema de medidas.

4.5 Caracterização estrutural

No ano de 1912, o físico alemão von Laue decidiu incidir um feixe de raios-x sobre uma amostra cristalina. Na época existiam indicações de que os raios-x poderiam ser ondas

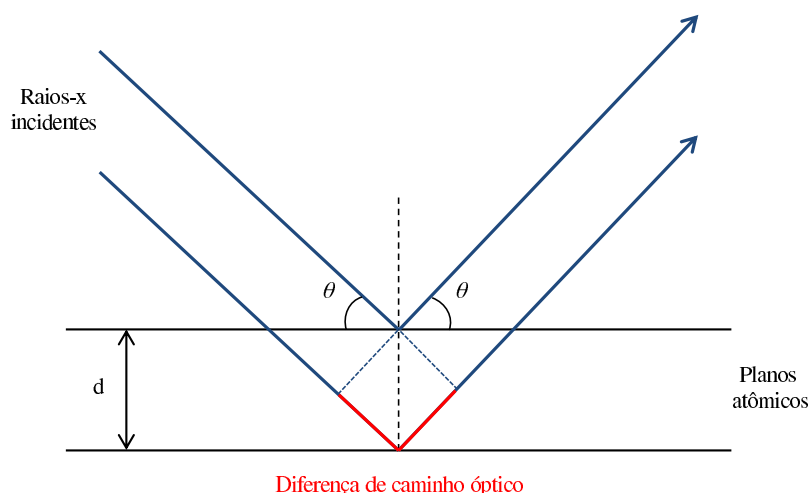


Figura 4.3: Figura esquemática da difração de raios-x.

eletromagnéticas com comprimento de onda da ordem de 1 ou 2 Å. Também existiam indícios de que materiais cristalinos eram formados a partir da repetição periódica de blocos fundamentais, átomos ou moléculas, que encontravam-se afastados também por alguns Å. Já em seu primeiro experimento von Laue conseguiu provar que as duas coisas eram verdade, ao observar a difração do feixe de raios-x pelo cristal. Desde então um enorme avanço foi alcançado na área, e as mais diversas estruturas foram minuciosamente caracterizadas.

A técnica de difração de raio-x é relativamente simples, baseando-se no espalhamento da radiação incidente pelos átomos do material que está sendo analisado. Este espalhamento se dá em todas as direções, porém, quando se está examinando um material cristalino, existirão determinadas direções em que os feixes espalhados por diferentes planos atômicos se encontrarão completamente em fase, interferindo construtivamente. Para que esta interferência construtiva ocorra é necessário que a diferença entre caminhos ópticos de raios distintos, indicada em vermelho na figura 4.3, corresponda a um múltiplo inteiro do comprimento de onda incidente.^{4, 76} Esta condição pode ser expressa através da chamada Lei de Bragg

$$2d \sin \theta = n\lambda, \quad (4.1)$$

onde d representa a distância entre planos atômicos, θ o ângulo entre estes planos e a radiação incidente, λ o comprimento de onda desta radiação e n um número inteiro. Desta forma, conhecendo o comprimento de onda dos raios-x incidentes e medindo o ângulo de incidência é possível determinarmos experimentalmente a distância entre os

planos atômicos.

Realizamos uma caracterização estrutural através das técnicas de difratometria e refletividade de raios-x. A primeira técnica é capaz de determinar qual é a estrutura cristalina de nossos filmes. A segunda, que consiste na incidência em baixo ângulo da radiação, é capaz de revelar as espessuras de cada camada e, até certo ponto, caracterizar as interfaces entre elas. Infelizmente, os inúmeros tratamentos térmicos consumiram totalmente os filmes estudados, e não existiam, portanto, amostras com dimensões adequadas para uma caracterização. Utilizamos, então, um filme de composição nominal Si(100)/Ru(15 nm)/IrMn₄(15 nm)/Cu(0,5 nm)/Co(5 nm)/Ru(3 nm) que fazia parte da mesma série de amostras estudadas neste trabalho, tendo sido depositada sob as mesmas condições. O filme foi tratado termicamente antes da análise em duas temperaturas distintas: 200 °C e 300 °C. Os recozimentos foram realizados na presença de um campo magnético de 1,5 kOe, durante 15 minutos.

5 *Resultados e discussões*

5.1 Modelo teórico

Antes de apresentarmos os resultados experimentais obtidos neste trabalho, seria interessante expormos o modelo teórico utilizado para extrair alguns parâmetros das curvas de magnetização. Trata-se de um modelo que considera um material FM policristalino acoplado com um AF, também policristalino. Na interface entre eles existem *clusters* de spins ferromagneticamente ordenados que possuem propriedades distintas, tanto das do FM quanto das do AF. O’Grady *et al.*³⁸ observaram este tipo de comportamento em filmes de IrMn/CoFe e assumiram que os spins não-compensados (UCS) faziam parte da camada AF, e “congelavam” espontaneamente na interface. Já Berkowitz *et al.*⁷⁷, ao estudar uma bicamada de NiFe/CoO, consideraram que os *clusters* eram partículas ferro-ou ferrimagnéticas que se formaram através de reações químicas.

Estudos prévios de nosso grupo, através da técnica de ressonância ferromagnética, mostraram que para amostras de IrMn/Cu/Co, da mesma série das estudadas neste trabalho, existe um campo adicional agindo sobre o FM, o campo de anisotropia rodável,^{56, 78} H_{RA} . Este se origina de momentos magnéticos parcialmente estáveis que se encontram na interface, e que rotam irreversivelmente quando a magnetização da camada FM é revertida. O acoplamento com estes spins é sentido pelo material FM como uma anisotropia uniaxial adicional que, apesar de contribuir para o aumento de H_C , não leva a um deslocamento em campo da curva de histerese.

O deslocamento do ciclo de histerese se deve ao acoplamento entre o material FM e UCS estáveis e anisotrópicos da interface. Estes, por sua vez, encontram-se acoplados com o AF, extraindo principalmente daí seu campo de anisotropia, H_{ucs} . Podemos considerar que durante a reversão da magnetização existe a evolução de uma parede de domínio no AF, ou uma reconfiguração de paredes já existentes. Neste caso, o termo de energia de anisotropia uniaxial dos UCS estáveis, $H_{ucs} \cos \phi_{ucs}$, se tornaria idêntico ao de um material AF que obedece o modelo de formação de parede de domínio (DWF).⁴¹ A energia livre do

sistema, normalizada por M_{St} (magnetização de saturação do FM multiplicada por sua espessura) poderia ser escrita da seguinte forma, para um campo magnético \mathbf{H} aplicado no plano do filme:

$$\begin{aligned} \eta = & - H \cos(\phi_H - \phi_{FM}) - \frac{1}{2} H_U \cos^2 \phi_{FM} \\ & - H_{ucs} \cos \phi_{ucs} - H_E \cos(\phi_{ucs} - \phi_{FM}) \\ & - \frac{1}{2} H_{RA} \cos^2(\phi_H - \phi_{FM}). \end{aligned} \quad (5.1)$$

Na equação (5.1) identificamos H_E como o campo de acoplamento de troca entre os UCS e o FM, sendo H_U o campo de anisotropia uniaxial deste último. H_{RA} representa o campo de anisotropia rodável. Estes campos podem ser escritos como $H_E = \frac{J_E}{M_{St}}$, $H_U = \frac{2K_U}{M_S}$ e $H_{RA} = \frac{2K_{RA}}{M_S}$ onde J_E é a constante de acoplamento de troca interfacial e K_U e K_{RA} as constantes de anisotropia. Os ângulos ϕ_H e ϕ_{FM} são aqueles que \mathbf{H} e \mathbf{M}_S formam com a direção de EB, respectivamente.

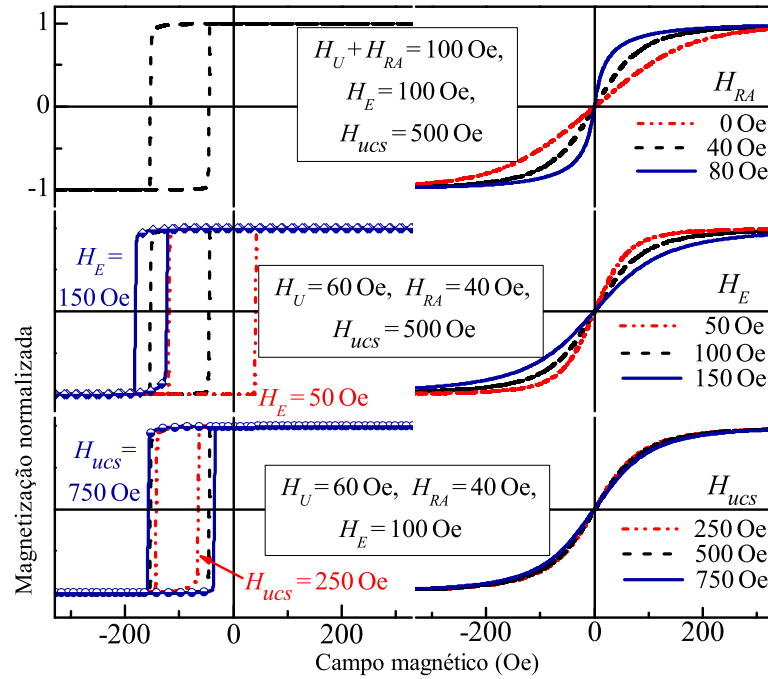


Figura 5.1: Curvas de magnetização simuladas numericamente para eixo fácil (painel da esquerda) e eixo difícil (direita) de magnetização. Nível superior: H_{RA} variável mantendo a soma $H_U + H_{RA}$ constante; nível intermediário: H_E variável; nível inferior: H_{ucs} variável. Os valores dos parâmetros mantidos constantes são dados no centro de cada nível da figura.

Curvas experimentais foram simuladas com sucesso através deste modelo e serão apresentadas na próxima seção. Antes disto, porém, exploraremos um pouco mais este aparato numérico, discutindo como a variação de parâmetros influencia nas características das curvas de magnetização. A figura 5.1 traz curvas simuladas numericamente para eixos fáceis

(painéis da esquerda) e eixos difíceis (painéis da direita). Em cada um dos níveis da figura, um determinado conjunto de parâmetros foi mantido fixo, enquanto um outro era variado. No superior temos $H_U + H_{RA} = 100$ Oe, $H_E = 100$ Oe e $H_{ucs} = 500$ Oe e uma variação de H_{RA} entre 0 e 80 Oe. Aqui é importante salientar que a expressão usada para o campo de anisotropia H_{ucs} e aquela para a camada interfacial de spins do AF no modelo de formação de parede de domínio são idênticas, $H_{ucs} = H_W$. Como resultado temos uma curva de histerese independente de H_{RA} para o eixo fácil, enquanto que no eixo difícil a declividade das curvas na origem aumenta com a razão $\frac{H_{RA}}{H_U}$. Este resultado é perfeitamente razoável, pois a anisotropia rodável funciona como uma uniaxial adicional, de maneira que apenas a soma $H_U + H_{RA}$ influi no traçado das curvas no *ef*. A expressão para a anisotropia total no *ef* é dada por^{79, 80}

$$H_A^{ef} = H_U + H_{RA} + \frac{H_E H_{ucs}}{H_E + H_{ucs}}. \quad (5.2)$$

Entretanto, ao aplicarmos o campo magnético no *ed* os eixos fáceis da camada FM e dos momentos rodáveis tornam-se ortogonais, modificando o sinal de H_{RA} na expressão acima:

$$H_A^{ed} = H_U - H_{RA} + \frac{H_E H_{ucs}}{H_E + H_{ucs}}. \quad (5.3)$$

Concluimos, portanto, que é necessário uma análise tanto no *ef* quanto no *ed*, onde $\frac{H_{RA}}{H_U}$ é importante, para que se possa separar as duas contribuições.

No nível central temos curvas para H_U , H_{RA} e H_{ucs} constantes, com diferentes valores de H_E . Agora são claras as modificações no *ef* e no *ed*. Nota-se uma dependência de H_{EB} e também de H_C com H_E para as curvas simuladas no *ef*. Conforme H_E aumenta, observamos um maior deslocamento da curva e uma diminuição de sua coercividade. Para o *ed* temos, novamente, mudanças nas declividades das curvas nas proximidades da origem. Esta inclinação é maior para valores menores de H_E , ao contrário do que tínhamos com H_{RA} , onde ela aumentava juntamente com o campo de anisotropia.

Finalmente, no nível inferior, mostramos curvas calculadas para diferentes valores de H_{ucs} , com todos os outros parâmetros mantidos constantes. Praticamente não se nota mudanças no *ed*, mesmo para valores significativamente diferentes de H_{ucs} . Para as curvas no *ef*, podemos perceber mudanças em H_C , que mostra uma diminuição para valores pequenos do parâmetro em questão.

Em resumo, as curvas simuladas para o *ef* apresentam grande dependência com H_E apenas, enquanto aquelas para o *ed* são sensíveis a H_E e H_{RA} .

5.2 Resultados experimentais

O principal objetivo de nosso trabalho é tentar entender melhor o fenômeno de EB. Não temos a pretensão de compreendê-lo totalmente, mas sim de avançar um pequeno passo nessa direção. Para isto estudamos os filmes de IrMn/Co e IrMn/Cu/Co descritos na seção 4.1. O movimento inicial foi o de mapear o comportamento dos parâmetros de EB em função da temperatura dos tratamentos térmicos utilizados para ativar o efeito. Como podemos ver claramente na figura 4.2, ambas as amostras já apresentavam o efeito como-depositadas. Suas curvas de histerese apresentam um formato típico de um sistema contendo dois tipos distintos de domínios magnéticos, orientados localmente em direções opostas. Isto, provavelmente, se deve a um padrão estampado no material FM pelo AF durante a deposição.⁸¹ As curvas tratadas mostram um formato completamente diferente, como podemos ver na figura 5.2. Esta figura traz laços de histerese representativos obtidos para amostras de IrMn/Cu/Co, tanto como-feitas (a), medidas no *ef* e no *ed*, quanto tratadas (b). Amostras tratadas com $T_{ann} > 150$ °C apresentam curvas com um formato bem definido, próximo do retangular, o que caracteriza uma única fase magnética. Já para temperaturas menores, como por exemplo $T_{ann} = 130$ °C, os laços ainda se mostram bastante arredondados. Resultados semelhantes foram obtidos para as amostras de IrMn/Co, e algumas curvas estão representadas na figura 5.3. Todos os tratamentos apresentados foram realizados com $\theta_{ann} = 0^\circ$, ou seja, aplicando o campo magnético no *ef*, e tiveram duração de 15 minutos.

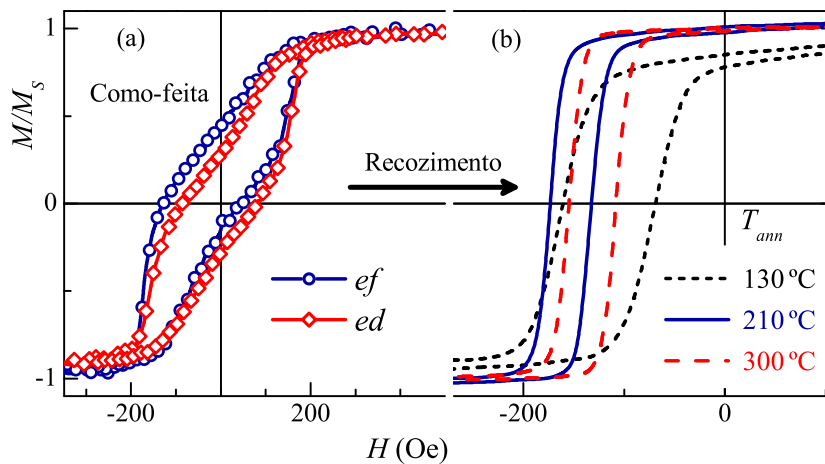


Figura 5.2: Curvas de histerese para a amostra de IrMn/Cu/Co. (a) Campo do magnetômetro aplicado no eixo fácil (círculos) e no eixo difícil (quadrados) de magnetização para as amostras como-feitas. (b) Curvas medidas no eixo fácil para amostras tratadas com $T_{ann} = 130, 210$ e 300 °C durante 15 minutos.

Claramente nota-se nas figuras 5.2 e 5.3 que existe uma forte dependência entre a tem-

peratura de tratamento e o valor de H_{EB} e H_C . Esta relação entre T_{ann} e os parâmetros de EB é mostrada na figura 5.4. Para ambas as amostras podemos perceber um crescimento gradual de H_{EB} até uma certa temperatura limite, experimentando, em seguida, uma diminuição aproximadamente linear. Para filmes sem o espaçador de cobre observamos um máximo próximo de 180°C . Já para filmes com Cu este fica em torno de 210°C . Os formatos das duas curvas são muito semelhantes, e poderíamos citar como principal diferença entre elas os valores de deslocamento maiores obtidos para a amostra sem espaçador. Isto, entretanto, não é nada surpreendente. A camada de $0,25\text{ nm}$ provavelmente não é completa,⁵⁷ permitindo contato direto entre a camada FM e a AF. O que ocorre é uma diminuição da área de contato FM/AF, diminuindo assim o valor de $H_E = \frac{J_E}{M_{st}}$. Como temos $H_{EB} \propto H_E$, observa-se uma diminuição do efeito. A mesma figura também traz o comportamento de H_C em função de T_{ann} . Para ambas as amostras nota-se um decréscimo gradual da coercividade até 200°C , tornando-se praticamente constante para temperaturas de recozimento maiores.

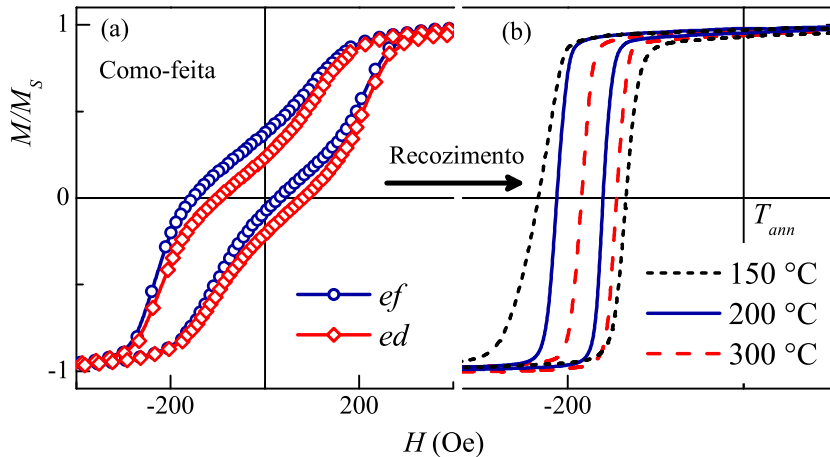


Figura 5.3: Curvas de histerese para a amostra de IrMn/Co. (a) Campo do magnetômetro aplicado no eixo fácil (círculos) e no eixo difícil (quadrados) de magnetização para as amostras como-feitas. (b) Curvas medidas no eixo fácil para amostras tratadas com $T_{ann} = 150, 200$ e 300°C durante 15 minutos.

Resultados qualitativamente similares são encontrados na literatura para outros sistemas com EB, como por exemplo FeMn/NiFe⁸² e NiFe/IrMn.⁸³ Em filmes de CoFe/IrMn,⁸³ recozimentos de até 300°C não produziram mudanças em H_{EB} , entretanto um aumento gradual da coercividade foi observado. Já em bicamadas de IrMn/CoFeB,^{29, 38} verificou-se somente um aumento de H_{EB} com T_{ann} . Um comportamento semelhante também é observado em filmes de Co(4 nm)/IrMn(10 nm), onde uma camada de Co mais espessa do que 4 nm não demonstra variação significativa do campo de EB.⁸⁴ O H_{EB} de camadas de CoFe na configuração *bottom-pinned*, onde a camada AF é depositada abaixo da FM, mostrou

um aumento drástico com tratamentos térmicos para campos magnéticos suficientemente grandes. Assim como em nossas amostras, porém, acima de uma certa temperatura (que neste caso foi de 180°C) percebeu-se uma diminuição deste campo com T_{ann} crescente. H_{EB} chegou a tornar-se menor do que o obtido para as amostras como-depositas quando a temperatura de recozimento ultrapassou 270°C .

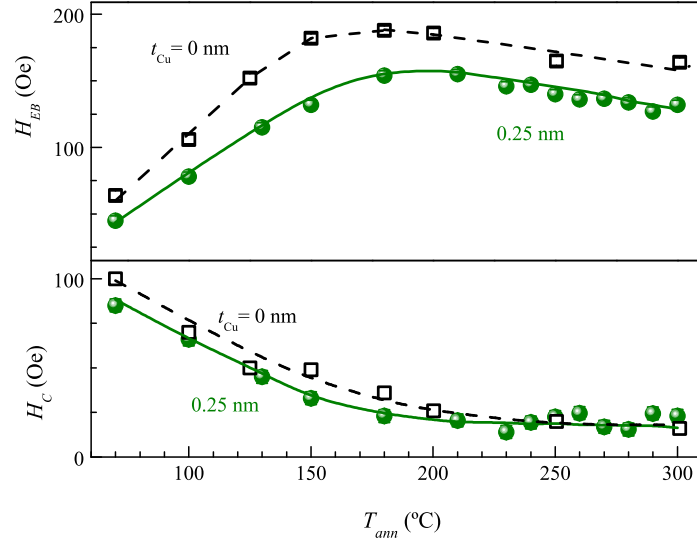


Figura 5.4: Campo de EB e coercividade obtidos no eixo fácil para filmes de IrMn/Cu(0,25 nm)/Co (círculos cheios) e IrMn/Co (quadrados vazios) em função da temperatura de recozimento. Barras de erro de para H_{EB} e H_C são do tamanho dos pontos. As linhas servem apenas como guias para os olhos.

Takenaga *et al.*⁸⁵ estudaram a variação de H_{EB} com T_{ann} no sistema IrMn/CoFe, aplicando um campo magnético de 1 kOe durante os tratamentos. Eles observaram um aumento gradual de H_{EB} até $T_{ann} \approx 200^\circ\text{C}$, entretanto este permaneceu constante para temperaturas maiores, independentemente de θ_{ann} . Também em filmes de IrMn/CoFe, Imakita *et al.*⁸⁶ reportaram um comportamento de $H_{EB} \times T_{ann}$ qualitativamente similar ao nosso, onde um decréscimo gradual do campo de EB foi observado para temperaturas de tratamento maiores do que 280°C . Esta diminuição foi atribuída por eles a uma inter-difusão das camadas de IrMn e de CoFe.

Um dos mecanismos capazes de aumentar o valor de H_{EB} durante o processo de recozimento é o alinhamento termicamente ativado dos UCS interfaciais através de um torque exercido pela camada FM saturada. Este pode ser acompanhado por uma diluição do material AF e criação de defeitos não-magnéticos em seu *bulk*, diminuindo a anisotropia do AF ou seu volume magnético efetivo.^{46, 87} Este último, porém, poderia ser descartado em nosso caso, pois a amostra que poderia apresentar defeitos não-magnéticos, isto é, a com espaçador de cobre, apresenta um crescimento menos abrupto de H_{EB} do que o filme

sem espaçador.

A diminuição do campo de EB para $T_{ann} > 210^\circ\text{C}$, ou para $T_{ann} > 180^\circ\text{C}$ no caso da amostra sem espaçador, pode ter muitas explicações. Já foram observados diversos mecanismos capazes de produzir este efeito, dentre eles temos uma mistura (*intermixing*) das interfaces, ou seja, uma migração do Mn para o interior da camada de Co, acarretando uma diminuição do momento magnético do FM. O fenômeno também poderia ser atribuído a criação de defeitos na interface, que poderiam diminuir a simetria dos campos cristalinos levando a um aumento de anisotropia por deformações estruturais locais e tensões elásticas associadas.⁴⁹ Ainda poderíamos citar a relaxação da estrutura magnética frustrada do AF, que é normalmente associada apenas com estruturas *top-pinned*, onde o material AF é depositado por cima do FM. Um decréscimo dos defeitos estruturais no volume do material AF, acompanhado de uma relaxação estrutural na interface também poderiam produzir o mesmo efeito.

Apesar de serem geralmente aceitos quando se trata de temperaturas de recozimento elevadas, os dois primeiros mecanismos citados acima não são as ideias para explicar o comportamento decrescente de $H_{EB}(T_{ann})$ de nossas amostras. A primeira evidência que suporta esta hipótese é a declividade do decréscimo linear experimentado por H_{EB} , que é a mesma para ambas as amostras. Este não é o tipo de comportamento que esperaríamos no caso de criação de defeitos e *intermixing* interfacial. As mudanças provenientes dos tratamentos térmicos deveriam ser diferentes para os filmes de IrMn/Co e IrMn/Cu/Co, já que estes apresentam interfaces distintas. Desta forma, a criação de defeitos não-magnéticos interfaciais não pode ser a única responsável pela diminuição observada, sugerindo que modificações no volume do material AF⁸⁸ podem estar agindo neste sentido.

Outra evidência que reforça a hipótese de modificações no *bulk* do AF é obtida através de uma análise de raios-x. A figura 5.5 traz curvas de difração de raios-x obtidas para uma amostra de IrMn/Cu(0,5 nm)/Co tratada em duas temperaturas diferentes, 200°C e 300°C , durante 15 minutos na presença de um campo magnético de 2 kOe. Cada espectro corresponde a uma média de dez medidas consecutivas. O painel superior mostra medidas de alto ângulo, onde podemos notar uma clara separação entre os picos do IrMn $\langle 111 \rangle$ e do Ru $\langle 002 \rangle$. A amostra tratada em 300°C apresenta um aumento no pico $\langle 111 \rangle$ do IrMn em relação àquela recozida em temperatura mais baixa. Isto indica uma melhora na cristalinidade e/ou um aumento no tamanho dos grãos da camada de IrMn para valores maiores de T_{ann} . Como os picos do Co $\langle 111 \rangle$ e do Ru $\langle 101 \rangle$ encontram-se muito próximos, não somos capazes de identificar as mudanças sofridas por estes em diferentes

temperaturas de recozimento.

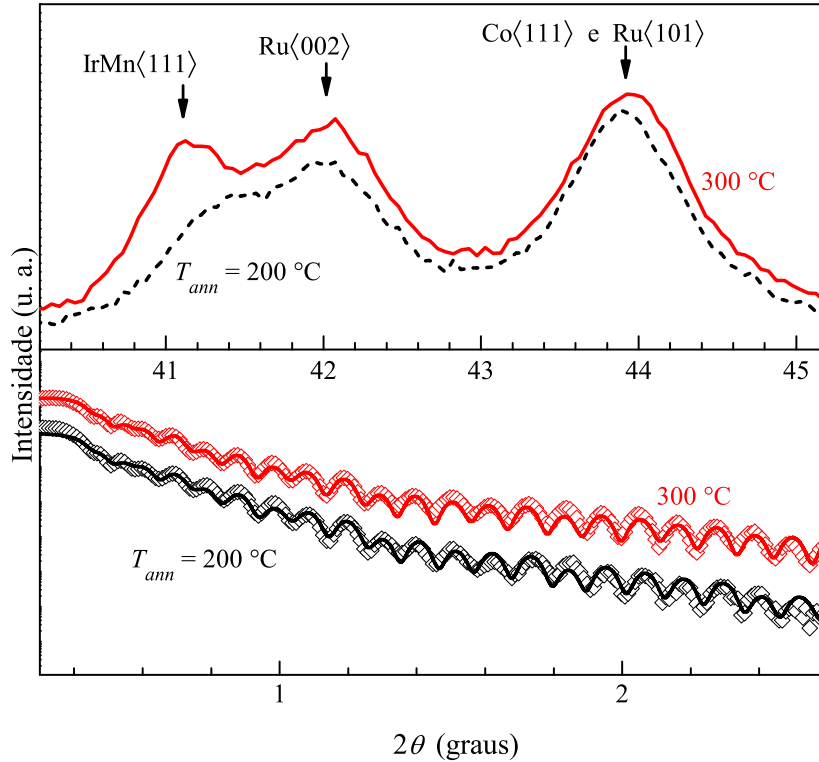


Figura 5.5: Painel superior: padrões de difração de raios-x para um filme de IrMn/Cu(0,5 nm)/Co tratado termicamente em 200 e 300°C, respectivamente, durante 15 minutos. Painel inferior: respectivos padrões de refletividade (pontos), acompanhados de uma simulação computacional (linhas). Para uma melhor visualização, uma das curvas foi deslocada para baixo.

As medidas de refletividade obtidas para as mesmas amostras são mostradas no painel inferior da figura 5.5. Os pontos representam dados experimentais, enquanto as linhas foram obtidas através de simulações, com o programa Philips WINGIXA. Os parâmetros utilizados nas simulações concordam com os valores nominais da amostra e podem ser observados na tabela 1. As barras de erro foram estimadas através do parâmetro $\chi^2 = \sum [\log(I_{cal}) - \log(I_{exp})]^2$, onde I_{cal} e I_{exp} correspondem, respectivamente, a intensidades de refletividade calculadas e experimentais. Podemos ver que as curvas simuladas reproduzem muitíssimo bem os dados experimentais, indicando espessuras praticamente iguais às nominais. Apesar desta técnica não distinguir entre rugosidade e inter-difusão, os parâmetros quase idênticos para ambas as amostras indicam fortemente que não houve modificação nas interfaces AF/FM durante o processo de recozimento.

Outro estudo de nosso grupo, feito recentemente em amostras de Co(3 nm)/IrMn/Co(7 nm), aponta na mesma direção. Uma amostra como-depositada e outra tratada a 215°C foram analisadas através das técnicas de microscopia eletrônica de transmissão (TEM) e *nano beam diffraction* (NBD). As medidas foram feitas em um microscópio JEOL JEM-

Tabela 1: Valores de espessura e rugosidade extraídos de medidas de refletividade de raios-x através de simulações numéricas para amostras de composição nominal Ru(15 nm)/IrMn(15 nm)/Cu(0,5 nm)/Co(5 nm)/Ru(3 nm). As amostras foram tratadas termicamente em 200 e 300 °C, respectivamente, durante 15 min, na presença de um campo magnético de 2 kOe.

	Espessura (nm)		Rugosidade rms (nm)	
	200 °C / 300 °C		200 °C / 300 °C	
Ru	14,923 (± 0,015)	14,948 (± 0,020)	0,690 (± 0,030)	0,702 (± 0,050)
IrMn	15,065 (± 0,015)	15,500 (± 0,020)	0,892 (± 0,035)	0,793 (± 0,055)
Cu	0,535 (± 0,015)	0,545 (± 0,020)	0,588 (± 0,250)	0,585 (± 0,250)
Co	5,286 (± 0,015)	5,297 (± 0,020)	0,882 (± 0,035)	0,959 (± 0,025)
Ru	2,929 (± 0,015)	3,063 (± 0,020)	0,608 (± 0,010)	0,248 (± 0,010)

2100, com um canhão de elétrons LaB₆ operando em uma voltagem de aceleração de 200 kV. Uma inspeção minuciosa nas imagens de TEM indicou que não existe difusão considerável entre as camadas de Co e IrMn. Diferentes regiões da camada mais fina de Co da amostra tratada foram inspecionadas pela técnica de NBD, através de um feixe de aproximadamente 2 nm de diâmetro. Esta análise revelou apenas Co com estrutura cúbica de face centrada e nenhum traço de Mn foi encontrado. Estudos indicam que uma camada *top pinned* em sistemas contendo interfaces CoFe/IrMn é mais propensa a difusão.⁸⁹ Desta forma poderíamos esperar que nossa camada de Co *bottom pinned* seja mais resistente a este processo, o que descartaria *intermixing* entre esta e a camada de IrMn. A figura 5.6 apresenta uma imagem de TEM da amostra recozida, assim como um padrão de NBD representativo da camada de 3 nm de Co.

Em um estudo recente, Du e colaboradores⁹⁰ observaram um comportamento semelhante de $H_{EB} \times T_{ann}$ ao encontrado por nós. Foram analisados filmes finos de IrMn/CoFe e IrMn/CoFeB, ambos depositados sobre camadas sementes de CoFe. A inter-difusão foi apontada por eles como possível mecanismo causador da diminuição de H_{EB} com o aumento de T_{ann} . Este efeito, entretanto, só foi observado para temperaturas de recozimento maiores do que 350 °C, após tratamentos com uma hora de duração. Segundo os autores, o aumento abrupto de H_C acima de $T_{ann} = 350$ °C reforça esta hipótese. No nosso caso, porém, a temperatura e a duração dos tratamentos são bem menores e não se observa aumento na coercividade.

Um aumento na cristalinidade e/ou no tamanho dos grãos da camada AF, portanto, segue como forte candidato para explicar o comportamento dos campos de EB em nossos filmes. Este tipo de modificação estrutural resultaria em um aumento da rigidez de troca, A_{AF} , em H_W , uma vez que $H_W \propto \sqrt{A_{AF}}$, e consequentemente em H_{ucs} . Como podemos

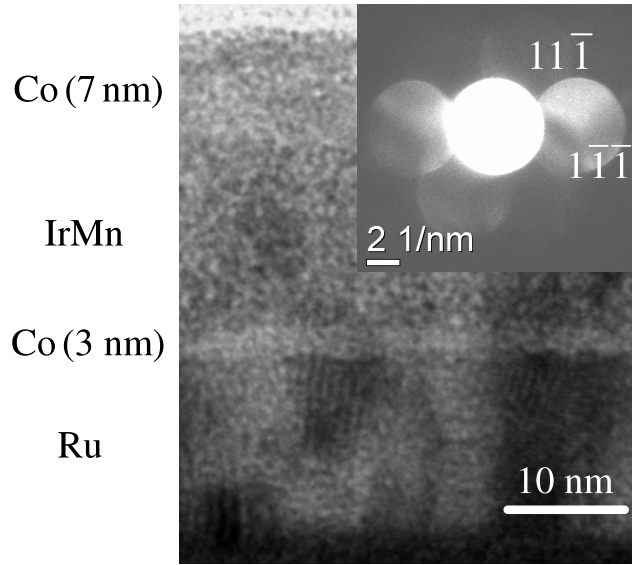


Figura 5.6: Imagem de TEM obtida para uma amostra de Co(3 nm)/IrMn/Co(7 nm) recozida em campo magnético a uma temperatura de 215 °C. No painel superior direito temos um padrão de NBD representativo da camada de 3 nm de Co obtido para esta mesma amostra.

notar no painel inferior da figura 5.1, este último parâmetro, entretanto, não tem grande influência no H_{EB} . Já o acoplamento de troca AF, J_{AF} , que é diretamente proporcional a A_{AF} , poderia gerar mudanças. Um aumento deste parâmetro resultaria em uma estrutura AF mais estável e bem organizada.

Os filmes como-depositados estudados apresentam uma estrutura granular. Desta forma, esperamos que antes de serem tratados termicamente estes filmes possuam UCS interfaciais distribuídos quase que isotropicamente no plano do filme. A tarefa do recozimento é indicar um sentido preferencial de orientação para estes momentos, através do torque gerado pela camada FM saturada pelo campo magnético. Quanto maior o número de momentos ativados, ou seja, alinhados com o campo, e que permanecem estáveis durante um ciclo de histerese, maior H_{EB} . A figura 5.4, neste caso, indicaria que para $T_{ann} = 200^\circ\text{C}$ foi possível ativar um maior número de spins do que para qualquer outra temperatura, considerando o filme de IrMn/Cu/Co. Alguns tratamentos térmicos foram realizados nesta temperatura para $\theta_{ann} = 0^\circ, 90^\circ$ e 180° . Não foram observadas grandes diferenças entre as curvas de histerese obtidas com estes tratamentos, e eixos de EB foram sempre encontrados na direção de \mathbf{H}_{ann} . Ou seja, o campo magnético, em conjunto com a temperatura elevada, é capaz de criar uma nova direção de EB, determinada pela direção e sentido de H_{ann} . Torna-se evidente que grandes deslocamentos só podem ser obtidos se um bom número de UCS interfaciais estiver apto a ser ativado. Nossos resultados sugerem que amostras recozidas em temperaturas mais altas do que $T_{ann} = 200^\circ\text{C}$ (180°C para filmes sem Cu), por apresentarem melhor cristalinidade e/ou maiores grãos, sofrem uma

diminuição de seus UCS disponíveis, o que leva a uma diminuição de H_{EB} . Um material AF mais bem organizado e estável, com um valor mais alto de J_{AF} , poderia, portanto, recuperar momentos não-compensados de sua interface e reintegrá-los a sua estrutura.

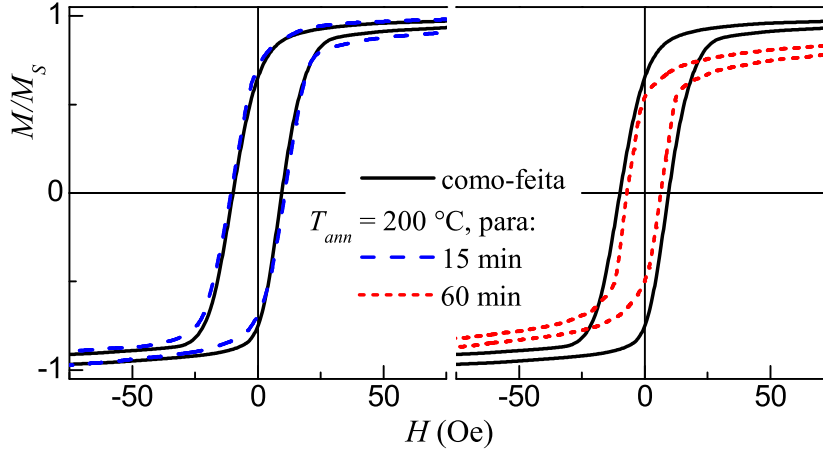


Figura 5.7: Curvas de magnetização para amostras de IrMn(15 nm)/Cu(1,2 nm)/Co(7 nm) tratadas em 200 °C durante 15 e 60 minutos na presença de campo magnético, juntamente com a curva obtida para a amostra como-feita.

Podemos obter algumas informações sobre os efeitos dos tratamentos térmicos na camada de Co de maneira indireta, analisando um filme de IrMn(15 nm)/Cu(1,2 nm)/Co(7 nm). Para isto dois tratamentos térmicos distintos foram realizados, um com duração de 15 minutos e o outro de 60, ambos em 200 °C e na presença de um campo magnético aplicado. A figura 5.7 mostra as curvas de magnetização obtidas para estes tratamentos, assim como a curva para a amostra como-feita. Em trabalhos anteriores,⁵⁷ nosso grupo mostrou que para um espaçador de Cu maior do que 1 nm, em filmes depositados via *magnetron sputtering*, as camadas AF e FM encontram-se completamente desacopladas. Como era esperado, nenhuma das curvas mostradas na figura 5.7 apresenta qualquer deslocamento em campo. Entretanto, nota-se claras modificações com a duração do tratamento. Enquanto que para o recozimento de 15 minutos praticamente não existem mudanças, o de 60 minutos proporcionou uma diminuição na coercividade, um arredondamento da curva e aumentou o campo de saturação. Isto indica que, para um tratamento de curta duração, não existem modificações nas características magnéticas da camada de Co, e provavelmente as características estruturais também permanecem intocadas. Quando se trata do tratamento mais longo, encontram-se relatos na literatura de que o H_C de uma camada FM livre decresce com a duração do recozimento. Isto também estaria por trás do arredondamento das curvas $M(H)$ e da modificação no campo de saturação. Este resultado indica uma estrutura mais granular do Co para filmes recozidos durante um período mais longo. Provavelmente, o que ocorre é uma relaxação de tensões e o aparecimento de limi-

tes de grãos nesta camada. Com estes resultados em mente poderíamos, então, descartar modificações no FM como possíveis causas da diminuição de H_{EB} com o aumento de T_{ann} , já que estas não foram observadas para tratamentos térmicos de curta duração.

Ainda buscando entender melhor os efeitos dos tratamentos térmicos em nossos filmes, outro experimento foi realizado. Dois pedaços da amostra de IrMn/Co foram recozidos, caracterizados magneticamente, e recozidos novamente. Um deles experimentou inicialmente um tratamento a uma temperatura de 200 °C durante 15 minutos e em seguida foi submetido a novo tratamento na mesma temperatura, por mais 15 minutos. A direção do campo aplicado foi modificada de um tratamento para o outro. No primeiro \mathbf{H}_{ann} foi aplicado no eixo de fácil magnetização, e no segundo a 90° desta direção. Vamos nos referir a este conjunto de tratamentos térmicos como sequência A. Outro pedaço de amostra foi submetido a um procedimento análogo, onde a única mudança foi a temperatura do primeiro recozimento, que atingiu o valor de 300 °C, que será chamado de sequência B. As curvas de histerese obtidas nesta empreitada podem ser observadas na figura 5.8.

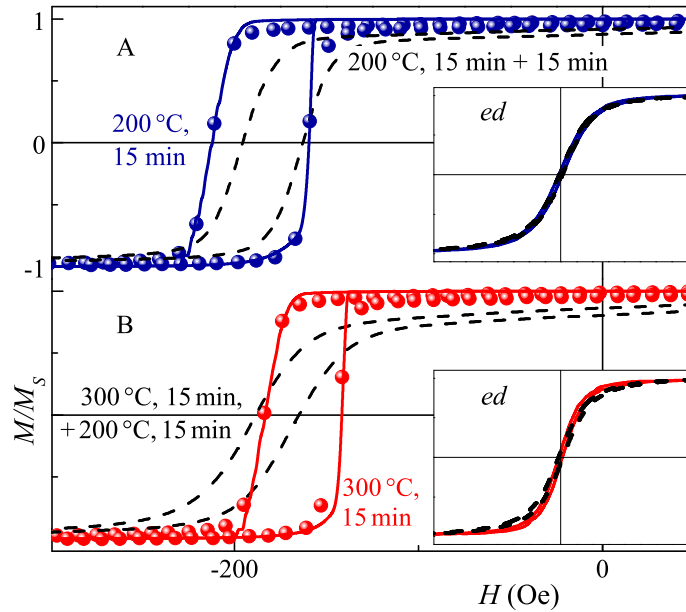


Figura 5.8: Curvas de magnetização para amostras de IrMn/Co tratadas em duas sequências diferentes. A) curvas de magnetização, ef e ed , obtidas para um tratamento de 200 °C durante 15 minutos, e após novo tratamento com a mesma duração e temperatura. B) laços obtidos para um filme tratado inicialmente em 300 °C, e em seguida submetido a mais 15 minutos em 200 °C. Para curvas de ef , as linhas que acompanham os dados experimentais representam simulações numéricas. Os parâmetros utilizados são apresentados na tabela 2.

As amostras tratadas duas vezes apresentam curvas mais arredondadas, e com menor coercividade. Este efeito, como foi discutido anteriormente, poderia ser atribuído somente a modificações na camada FM. Entretanto, outros resultados interessantes aparecem após

Tabela 2: Parâmetros utilizados na simulação de laços de histerese obtidos para amostras de IrMn/Co tratadas em 200 e 300 °C. As barras de erro correspondem a mudanças significativas nas curvas calculadas.

T_{ann} (°C)	J_E (erg/cm ²)	H_U (Oe)	H_{RA} (Oe)	σ (graus)
200	$0,126 \pm 0,001$	88 ± 1	8 ± 1	$2,0 \pm 0,2$
300	$0,110 \pm 0,001$	52 ± 1	26 ± 1	$2,5 \pm 0,2$

o segundo tratamento, onde podemos notar claras modificações nos valores de H_{EB} . A amostra tratada por duas vezes em 200 °C teve uma redução em seu deslocamento em campo, quando comparamos os valores medidos após o primeiro e após o segundo recozimento. Já o filme inicialmente exposto a 300 °C teve seu H_{EB} aumentado.

Com a ajuda de simulações numéricas, utilizando o modelo descrito na seção 5.1, fomos capazes de extrair parâmetros importantes de alguns laços de histerese. Curvas de ef representadas por linhas na figura 5.8, e que acompanham os pontos experimentais, são resultados de simulações, cujos parâmetros se apresentam na tabela 2. Também foram realizadas simulações para os ed , porém estas não estão sendo mostradas na figura. É importante lembrar que simulações realizadas para o ed são fundamentais para a distinção entre H_U e H_{RA} . Os melhores ajustes foram obtidos assumindo uma distribuição angular de eixos fáceis, tanto para o FM quanto para o AF, para ambas as amostras. Esta distribuição gaussiana, caracterizada pelo desvio padrão σ , faz com que as curvas calculadas tornem-se mais arredondadas, a semelhança dos dados experimentais. Como podemos ver na tabela, valores distintos de σ foram utilizados em cada uma das simulações. Os valores de J_E e H_U são menores para a amostra submetida a sequência B, com diferenças de 13 e 41% em relação ao outro tratamento.

O aumento do campo de EB observado durante a sequência B poderia ser explicado de duas formas. A primeira seria um aumento de J_{AF} após o segundo tratamento, que implicaria em um aumento na constante de acoplamento de troca $J_E \propto \sqrt{J_{AF}}$. A segunda seria uma promoção de momentos rodáveis a UCS estáveis, capazes de contribuir para o EB. Como podemos inferir ao observarmos os valores de H_{RA} , após o recozimento em 300 °C temos um número maior de momentos rodáveis do que após o processo em 200 °C. O segundo recozimento de cada sequência aumentaria ainda mais o tamanho dos grãos, e os tornaria mais estáveis. Para a sequência B isto resultaria em um aumento de H_{EB} , pois um número maior de momentos rodáveis estaria disponível na interface, e poderia ser ativado. Ao observarmos a curva obtida para o ed ao final da sequência B, podemos notar que esta apresenta uma declividade menor do que aquela observada após

o primeiro tratamento (figura 5.8). Esta seria uma evidência da diminuição dos UCS rodáveis, consequência de um decréscimo de H_{RA}/H_U ou de um aumento de J_E . Já para a sequência A, não observamos diferenças entre as curvas de ed . Isto indica que não houve aumento de J_E , e que o número de momentos rodáveis após o primeiro tratamento não foi suficiente para acarretar modificações em H_{EB} .

5.3 Modelo policristalino para o EB

O modelo descrito na seção 5.1, e que foi utilizado para simular curvas de histerese experimentais, é bastante simples, principalmente quando se trata de sistemas com anisotropia rodável. Ele considera que a RA tem um eixo de simetria sempre alinhado com a direção do campo magnético e não explora diretamente a natureza policristalina dos filmes. Na busca por um modelo que se aproxime mais de um sistema real, uma abordagem teórica foi desenvolvida no decorrer deste trabalho. Um dos nossos objetivos era o de entender melhor o papel dos grãos interfaciais rodáveis em sistemas com EB. Para tanto trabalhamos em um modelo que considera diferentes tipos de grãos interfaciais interagindo entre si.

A ideia principal continua sendo a mesma do modelo descrito anteriormente. Temos uma interface FM/AF habitada por UCS, com propriedades diferentes das duas outras camadas. Estes momentos poderiam ter surgido através de reações químicas na interface,⁷⁷ ou simplesmente serem UCS congelados espontaneamente.³⁸ Cada um destes *clusters*, ou grãos, se comporta como um mono-domínio, podendo estar acoplado com o FM e/ou com o AF por uma interação de troca.

Nosso modelo considera diferentes tipos de *clusters* interfaciais, classificando-os por sua estabilidade. Para determinada temperatura e campo magnético de medida, temos grãos estáveis, parcialmente estáveis e instáveis. Esta estabilidade dependerá da anisotropia e dos parâmetros de acoplamento de cada grão. Grãos estáveis podem ser divididos em dois grupos: (*i*) aqueles onde os UCS estão preferencialmente alinhados ao longo de uma direção específica, que coincide com a do campo magnético aplicado durante a deposição do filme, ou tratamento térmico; (*ii*) aqueles que apontam em direções aleatórias. Grãos instáveis também são separados em dois grupos, os superparamagnéticos (SPM) e os rodáveis, cuja magnetização acompanha a rotação dos spins da camada FM. *Clusters* SPM e estáveis do tipo *ii* não apresentam contribuições para o H_{EB} , tampouco para o H_C . Grãos estáveis e alinhados, tipo *i*, são os responsáveis pelo EB, já os rodáveis contribuem

para um aumento na coercividade. A figura 5.9 mostra esquematicamente a distribuição de probabilidade³⁸ de se encontrar um determinado grão em função de um parâmetro de estabilidade. A figura também mostra os limites de estabilidade que separam cada tipo de grão.

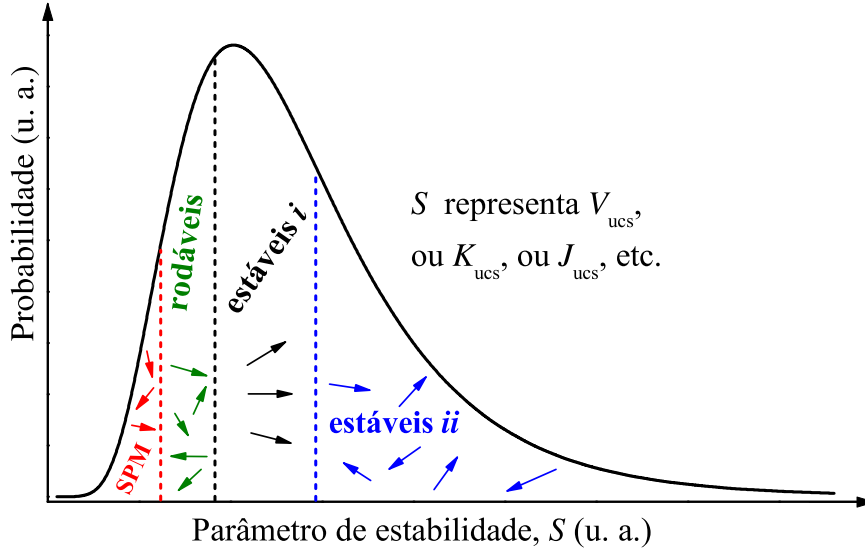


Figura 5.9: Esquema para a distribuição de probabilidade³⁸ de se encontrar um determinado grão em função de um de seus parâmetros de estabilidade. A figura também mostra as regiões em que cada tipo de grão se encontra.

Cada grão é tratado como um mono-domínio magnético, tendo sua própria magnetização de saturação, volume e espessura. Cada um deles também possuirá características únicas de anisotropia e acoplamento. A energia deste sistema, para um campo magnético \mathbf{H} aplicado no plano do filme, pode ser escrita na seguinte forma

$$E = E_{FM} + E_{ucs} + E_{ex}. \quad (5.4)$$

O primeiro termo representa a energia associada à camada FM, e pode ser escrito como

$$E_{FM} = E_{an} - V\mathbf{H} \cdot \mathbf{M}, \quad (5.5)$$

sendo \mathbf{M} sua magnetização e V seu volume, compondo o termo Zeeman. E_{an} é a energia de anisotropia que pode ser de forma, magnetocristalina, de stress, etc. O segundo termo na equação (5.4) está relacionado com a energia dos momentos magnéticos interfaciais não-compensados. Temos

$$E_{ucs} = \sum_i (E_{an}^i - v_i \mathbf{H} \cdot \mathbf{m}_i), \quad (5.6)$$

onde o primeiro termo novamente representa a energia de anisotropia e o segundo o Zeeman. O índice i distingue cada um dos *clusters*, que possuem seus próprios volumes,

v_i e magnetizações, m_i .

Finalmente, o termo E_{ex} traz a interação de troca entre os momentos. Esta interação envolverá normalmente um dos UCS e a camada FM. Podemos escrevê-la como:

$$E_{ex} = - \sum_i a_i J_i \frac{\mathbf{M} \cdot \mathbf{m}_i}{M m_i} \quad (5.7)$$

onde J_i representa a constante de troca e a_i a área de contato efetiva entre os dois grãos.

Como podemos ver, o modelo permite um grande número de configurações possíveis. As anisotropias de cada grão podem ser definidas individualmente, tanto seu tipo, (uni-axial, biaxial, etc.) quanto sua intensidade. O mesmo vale para as energias de troca, e o conjunto destes parâmetros irá definir se o grão permanecerá estável ou não durante um processo de reversão da magnetização. Assim como no modelo descrito anteriormente na seção 5.1, as curvas de histerese são obtidas minimizando a energia magnética para diferentes valores do campo magnético aplicado. Os ângulos que definem as direções das magnetizações no plano são as variáveis do sistema. Este processo de minimização da energia é equivalente ao de empregar a equação de Landau-Lifshitz-Gilbert no limite de grande amortecimento. Para o propósito do presente estudo, que é o de simular curvas de magnetização estáticas, sem levar em conta a dinâmica das magnetizações, mas sim seu estado final, este procedimento é bastante apropriado.

Um exemplo do que pode ser obtido através do modelo pode ser visto na figura 5.10. Esta traz um conjunto de quatro curvas, que representam diferentes estados de uma mesma amostra medidos no *ef*. No painel superior esquerdo temos o que seria a curva de histerese para o filme como-depositado. Esta foi obtida assumindo uma camada FM dividida em duas partes, uma delas acoplada ferromagneticamente com a camada AF, e outra acoplada antiferromagneticamente, porém com constante de acoplamento menor. Este valor menor para a constante poderia estar relacionado com uma menor área de contato. O resultado é um laço de histerese que apresenta duas fases magnéticas, e um pequeno deslocamento em campo, qualitativamente similar ao observado em nossas amostras (figura 4.2). As outras três curvas representam as variações obtidas ao modificarmos a quantidade de UCS rodáveis em relação aos estáveis. As barras horizontais que as acompanham representam a quantidade de grãos estáveis (barras cheias) e rodáveis (hachuradas) presentes. A curva exposta no painel superior direito foi obtida para um sistema de quatro grãos, um deles representando a camada FM e os outros UCS rodáveis idênticos. Como podemos ver a curva não apresenta deslocamento, entretanto é a que possui maior coercividade. Este resultado era exatamente o esperado, pois os momentos rodáveis não contribuem para

H_{EB} , somente para H_C . A curva mostrada no canto inferior esquerdo é resultado da interação entre um domínio FM, dois momentos rodáveis e um estável. Quando comparada com a curva anterior percebemos claramente uma diminuição do campo coercivo e o aparecimento de um deslocamento em campo. Para a última curva, um grão rodável foi retirado e um estável acrescentado. O que vemos é um valor ainda maior de H_{EB} e uma nova diminuição de H_C . Esta transição poderia ser causada por um tratamento térmico, por exemplo.

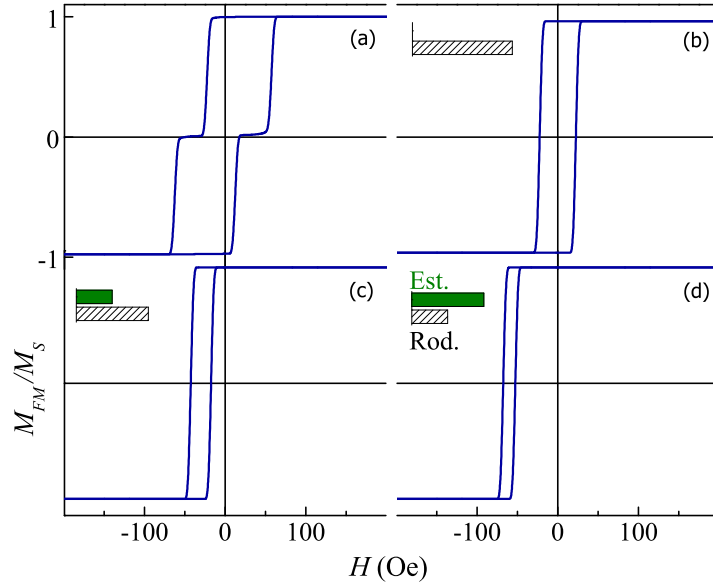


Figura 5.10: Painel superior esquerdo: curva de histerese simulada reproduzindo qualitativamente uma amostra como-depositada. Nos outros três painéis temos laços simulados para sistemas contendo uma camada FM e mais três UCS, com diferentes combinações de momentos rodáveis e estáveis. As barras horizontais indicam as quantidades de cada um destes tipos de UCS. Os parâmetros utilizados nas simulações destas três curvas foram $M_{FM} = 1400 \text{ emu/cm}^3$, $m_1 = m_2 = m_3 = 450 \text{ emu/cm}^3$ e $J_{E1}t = J_{E2}t = J_{E3}t = 2,1 \times 10^{-2} \text{ erg/cm}^2$, sendo t a espessura de cada grão, que é assumida igual para todos eles. Para momentos rodáveis assumimos um anisotropia uniaxial com constante $K = 1,69 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$. Já para os momentos estáveis esta constante assume o valor de $K = 1,13 \times 10^8 \text{ erg/cm}^3$.

As curvas da figura 5.10 foram traçadas a partir da minimização da seguinte expressão para a energia magnética

$$\begin{aligned}
 E &= -VHM \cos(\phi_H - \phi) \\
 &+ \sum_i v_i [K_i \sin^2(\phi_i - \phi_{i,0}) - Hm_i \cos(\phi_H - \phi_i)] \\
 &- \sum_i a_i J_i \cos(\phi_i - \phi), \tag{5.8}
 \end{aligned}$$

considerando um campo magnético \mathbf{H} aplicado no plano do filme. Respectivamente, M , m_i , V e v_i representam as magnetizações e volumes da camada FM e dos UCS. Os

ângulos ϕ_H , ϕ , ϕ_i e $\phi_{i,0}$ são aqueles compreendidos entre a direção do campo aplicado, da magnetização do FM, das magnetizações dos UCS e de seus eixos fáceis com a direção de EB. Neste caso não consideramos uma anisotropia própria do material FM, e o campo coercivo obtido se deve apenas a interação com os grãos rodáveis. Estes, por sua vez, possuem anisotropia uniaxial, caracterizada pelas constantes K_i . Sua interação de troca com o FM é medida pelas constantes J_i .

Nas curvas mostradas na figura 5.10 consideramos diferentes tipos de grãos interfaciais, na tentativa de reproduzir a natureza policristalina de muitos dos filmes finos que apresentam EB. Nestas simulações, porém, todos os grãos possuem eixos fáceis colineares e apenas uma anisotropia uniaxial é considerada. Este cenário não reproduz o que se espera de um sistema real, onde o eixo fácil de cada um dos grãos poderia se alinhar com uma direção diferente. Para tanto, podemos considerar distribuições angulares de eixos fáceis, para grãos rodáveis, estáveis e até mesmo para a camada FM. Neste caso, o laço de histerese é formado pela média de diversas curvas, calculadas individualmente considerando direções distintas para o eixo fácil. A cada uma destas é atribuído um peso diferente, dependendo do ângulo ϕ_{dis} que seu eixo fácil faz com a direção de EB, seguindo uma distribuição gaussiana centrada em $\phi_{dis} = 0^\circ$, com desvio padrão σ . Esta distribuição poderia estar centrada em outra direção, mas isto não seria esperado em um sistema real. O que consideramos aqui é uma amostra cujo EB já tenha sido ativado, através da aplicação de um campo magnético durante sua deposição ou de um tratamento térmico, por exemplo. Desta forma seria bastante razoável que os eixos fáceis se distribuíssem em torno do sentido de aplicação deste campo.

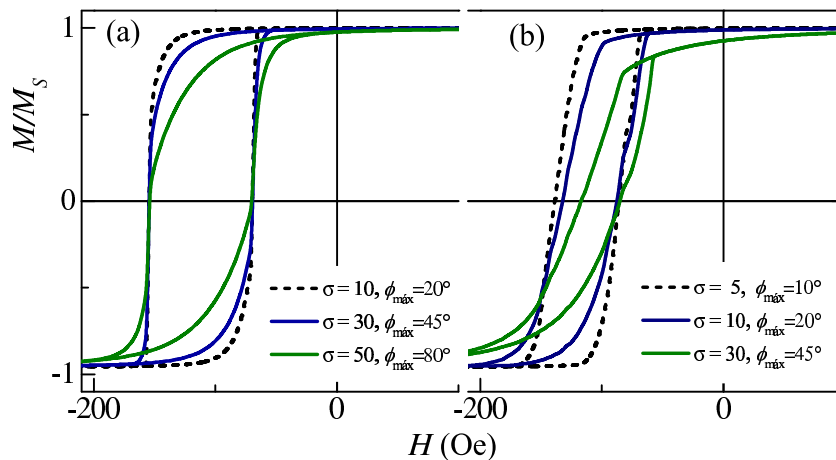


Figura 5.11: Curvas de histerese simuladas considerando distribuições de eixos fáceis para anisotropias (a) uniaxial e (b) cúbica.

Também seria possível considerarmos um sistema onde os grãos possuem anisotropia

cúbica. Para tanto consideramos uma energia de anisotropia na forma

$$E_{cub} = k_i^c v_i \sin^2(2\phi_i), \quad (5.9)$$

onde v_i representa o volume do grãos, k_i^c é a constante de anisotropia e ϕ_i o ângulo que a magnetização faz com o eixo de EB. Assim como no caso de uma anisotropia uniaxial, distribuições angulares também poderiam ser consideradas aqui de maneira análoga.

A figura 5.11 traz curvas obtidas para diferentes distribuições, para grãos rodáveis com anisotropia (a) uniaxial e (b) cúbica. Não foram assumidas distribuições para a camada FM, tampouco para os grãos estáveis, que possuem anisotropia uniaxial em ambos os casos. Podemos notar que para grãos rodáveis uniaxiais as diferentes distribuições não afetam a coercividade e o deslocamento em campo das curvas. Entretanto, as distribuições afetam o seu formato, tornando-as mais arredondadas e inclinadas conforme o valor de σ aumenta. Já para grãos com anisotropia cúbica, H_C e H_{EB} dependem de σ , ambos diminuindo conforme este aumenta. O formato dos laços de histerese também é afetado neste caso.

Em 2006, Saha e Victora⁹¹ consideraram um modelo micro-magnético para o EB, onde os materiais FM e AF eram compostos por inúmeros elementos. Cada um destes elementos, ou grãos, possuía sua própria magnetização e, no caso do AF, sua própria anisotropia. Foram consideradas anisotropias uniaxiais e cúbicas para o AF, e a direção do eixo fácil de cada elemento foi determinada aleatoriamente. Os resultados mostrados na figura 5.11(a) são semelhantes, ao menos qualitativamente, àqueles obtidos por Saha e Victora para um material AF com anisotropia uniaxial. Entretanto, os resultados obtidos por eles para uma anisotropia cúbica diferem bastante dos ilustrados na figura 5.11(b). Tal modelo micro-magnético é capaz de prever efeitos de treinamento. O nosso modelo também pode reproduzir este fenômeno, entretanto é necessário que consideremos um arranjo de grãos um pouco diferente daquele que utilizado até este ponto. A próxima seção trata exclusivamente deste tópico, e apresenta o cenário necessário para que efeitos de treinamento surjam, assim como os resultados obtidos através de nosso modelo.

5.3.1 Efeitos de treinamento

É comum observarmos uma dependência de H_{EB} com o número de medidas de magnetização realizadas em filmes finos. Em geral, H_{EB} decresce com medidas consecutivas,

seguinto um comportamento do tipo

$$H_{EB}(n) = H_{EB}^{equi} + \frac{\kappa}{\sqrt{n}}, \quad (5.10)$$

onde n é o número de ciclos realizados, H_{EB}^{equi} é o valor de equilíbrio do campo de *exchange bias*, atingido após a realização de ciclos infinitos, e κ é uma constante. Este comportamento só é válido para $n > 1$. A transição entre o primeiro e o segundo laço de histerese normalmente é mais abrupta, e não pode ser reproduzida pela equação 5.10.

O fenômeno em questão é chamado de efeito de treinamento, e foi observado pela primeira vez em sistemas contendo interfaces de Co/CoO e NiFe/AF.⁹² A figura 5.12 mostra um exemplo de curvas de histerese reais obtidas para um sistema que apresenta este fenômeno. Muitas foram as tentativas de explicá-lo. Néel o atribuiu a um forte acoplamento antiparalelo entre domínios vizinhos, causado por degraus na interface do AF.³⁹ Binek considerou o problema à luz da termodinâmica de não-equilíbrio, onde os ciclos de histerese consecutivos rearranjavam os spins interfaciais até que o equilíbrio fosse atingido.⁹³ Suess *et al.* obtiveram o efeito para uma interface perfeitamente compensada, assumindo acoplamento ortogonal entre o FM e o AF, através de um modelo de grãos interagentes.⁹⁴

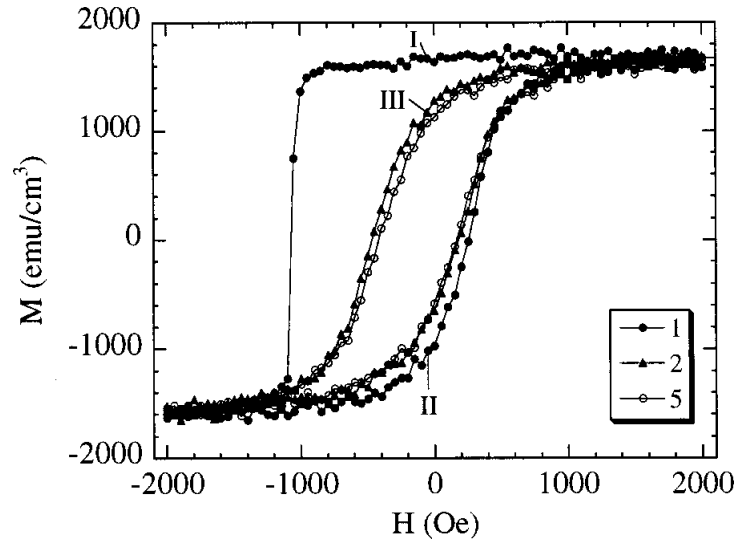


Figura 5.12: Curvas de histerese obtidas para filmes de Co/CoO, sistema que apresenta efeitos de treinamento.⁹⁵

O efeito de treinamento também surge quando consideramos o modelo de estado de domínio⁴⁵ (*domain state model*). Nesse caso, o campo magnético responsável pela reversão consecutiva da magnetização do FM também causaria um pequeno rearranjo da estrutura de domínio do AF.⁹⁶

Usando um modelo simples de rotação coerente, Hoffmann⁹⁷ foi capaz de demonstrar que os efeitos de treinamento podem ser causados por um acoplamento do tipo *spin-flop*. Este efeito só é válido para a primeira repetição do laço de histerese, chamado efeito de treinamento atérmico,^{96, 98} que não segue um comportamento do tipo descrito pela equação (5.10). Recentemente o modelo foi expandido para três dimensões por Biagioni e colaboradores.⁹⁹ Entretanto, para que se possa encontrar efeito de treinamento com este modelo, é necessário escolher valores de anisotropia do AF duas ou três ordens de grandeza maiores do que os encontrados em sistemas reais.

O modelo apresentado na seção 5.3 é capaz de reproduzir efeitos de treinamento atérmicos de maneira muito simples. Para tanto é necessário considerarmos uma interface contendo quatro (ou três, como pode ser visto na figura 5.17) tipos diferentes de momentos magnéticos, como mostra a figura 5.13. Um deles, denotado por \mathbf{M}_{FM} , representa a camada FM, e os outros três estão contidos na camada AF. São eles \mathbf{m}_{set} , \mathbf{m}_{n} e \mathbf{m}_{rot} , representando, respectivamente, dois momentos estáveis e um rodável. Tanto \mathbf{m}_{set} quanto \mathbf{m}_{rot} estão acoplados via interação de troca com a camada FM, mas não entre si. Um contribui para o EB e o outro para um aumento no campo coercivo. \mathbf{m}_{n} faz o papel de grão estável, porém, não é considerado um acoplamento dele com \mathbf{M}_{FM} , tampouco com \mathbf{m}_{set} . Considera-se apenas uma interação entre \mathbf{m}_{n} e \mathbf{m}_{rot} , que pode ser dipolar ou de troca, com constante positiva ou negativa. Com este cenário em mente, a energia do sistema pode ser escrita da seguinte forma, para um campo magnético \mathbf{H} aplicado no plano do filme

$$\begin{aligned}
 E = & -\mathbf{H} \cdot (\mathbf{M}_{\text{FM}} + \mathbf{m}_{\text{set}} + \mathbf{m}_{\text{rot}} + \mathbf{m}_{\text{n}}) + K_{\text{FM}}V \sin^2(\phi - \phi_0) \\
 & + k_{\text{set}}v_{\text{set}} \sin^2(\phi_{\text{set}} - \phi_0) + E_{\text{rot}}^a + E_{\text{n}}^a + E_{\text{rot}/\text{n}} \\
 & - J_E \cos(\phi - \phi_{\text{set}}) - J'_E \cos(\phi - \phi_{\text{rot}}). \quad (5.11)
 \end{aligned}$$

O primeiro termo na equação (5.11) representa a contribuição Zeeman de cada um dos grãos, considerando que $\mathbf{M}_{\text{FM}} = M_{\text{FM}}V$, $\mathbf{m}_{\text{set}} = m_{\text{set}}v_{\text{set}}$, $\mathbf{m}_{\text{rot}} = m_{\text{rot}}v_{\text{rot}}$ e $\mathbf{m}_{\text{n}} = m_{\text{n}}v_{\text{n}}$. O segundo e o terceiro termo são as energias de anisotropia da camada FM e do momento AF responsável pelo EB. Ambas são energias uniaxiais, com constantes de anisotropia dadas por K_{FM} e k_{set} . ϕ_0 , ϕ e ϕ_{set} são os ângulos que a direção de EB, \mathbf{M}_{FM} e \mathbf{m}_{set} fazem com a direção [100]. Aqui, um filme com textura (001) é considerado. E_{rot}^a e E_{n}^a são as energias de anisotropia do grão rodável e do grão estável que está acoplado apenas com ele. Os últimos dois termos levam em conta as interações de troca de \mathbf{M}_{FM} com \mathbf{m}_{set} e \mathbf{m}_{rot} respectivamente, sendo J_E e J'_E suas constantes de acoplamento. Finalmente, o termo $E_{\text{rot}/\text{n}}$ representa a interação entre \mathbf{m}_{rot} e \mathbf{m}_{n} .

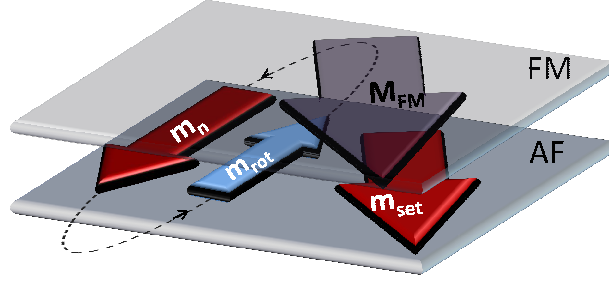


Figura 5.13: Representação de uma interface FM/AF contendo tipos diferentes de grãos. A linha tracejada denota interação dipolar entre \mathbf{m}_{rot} e \mathbf{m}_n .

Durante as simulações foram consideradas anisotropias uniaxiais e/ou cúbicas para o momento rodável e seu vizinho estável. Tais energias estão descritas nas equações (5.12) e (5.13), onde o índice i pode denotar “rot” ou “n”. ϕ_i e $\phi_{i,0}$ representam os ângulos que \mathbf{m}_i e o eixo de anisotropia uniaxial fazem com a direção [100]. A maneira com que estes dois grãos interagem entre si também foi variada. $E_{rot/n}$ pode ser tanto uma interação de troca, com constante de acoplamento J_E'' positiva ou negativa, equação (5.14), quanto dipolar, equação (5.15). Nesta última, R representa a distância entre os dois grãos e $\hat{\mathbf{r}}$ um vetor unitário no plano, com mesma direção e sentido do vetor que os conecta.

$$E_i^a = k_i^u v_i \sin^2(\phi_i - \phi_{i,0}), \quad (5.12)$$

$$E_i^a = k_i^c v_i \sin^2(2\phi_i), \quad (5.13)$$

$$E_{rot/n}^{exchange} = -J_E'' \cos(\phi_{rot} - \phi_n), \quad (5.14)$$

$$E_{rot/n}^{dipolar} = \frac{\mathbf{m}_{rot} \cdot \mathbf{m}_n - 3(\mathbf{m}_{rot} \cdot \hat{\mathbf{r}})(\mathbf{m}_n \cdot \hat{\mathbf{r}})}{R^3}. \quad (5.15)$$

Para se simular uma curva de histerese magnética é necessário minimizar a equação (5.11) para diferentes valores de H , partindo de um valor máximo H_{max} , passando por $-H_{max}$ e retornando ao valor inicial. Para se verificar efeitos de treinamento duas curvas devem ser traçadas e é necessário escolhermos condições iniciais adequadas para o processo. No nosso caso consideramos um sistema cujo EB já foi ativado, por um tratamento térmico, por exemplo. Desta maneira a magnetização de cada grão escolhe uma orientação que minimiza a energia global do sistema, coerentemente com a direção do campo magnético aplicado durante sua ativação. A única exceção é no caso de um acoplamento ferromagnético (paralelo) entre m_{rot} e m_n , onde a magnetização de m_n orienta-se em uma direção fácil que não é a mais próxima da do campo aplicado durante a ativação. Esta situação pode existir se H_{ann} e T_{ann} não são suficientes para orientar esta magnetização. Na figura 5.14(a) podemos ver um esboço da configuração de nossos quatro momentos

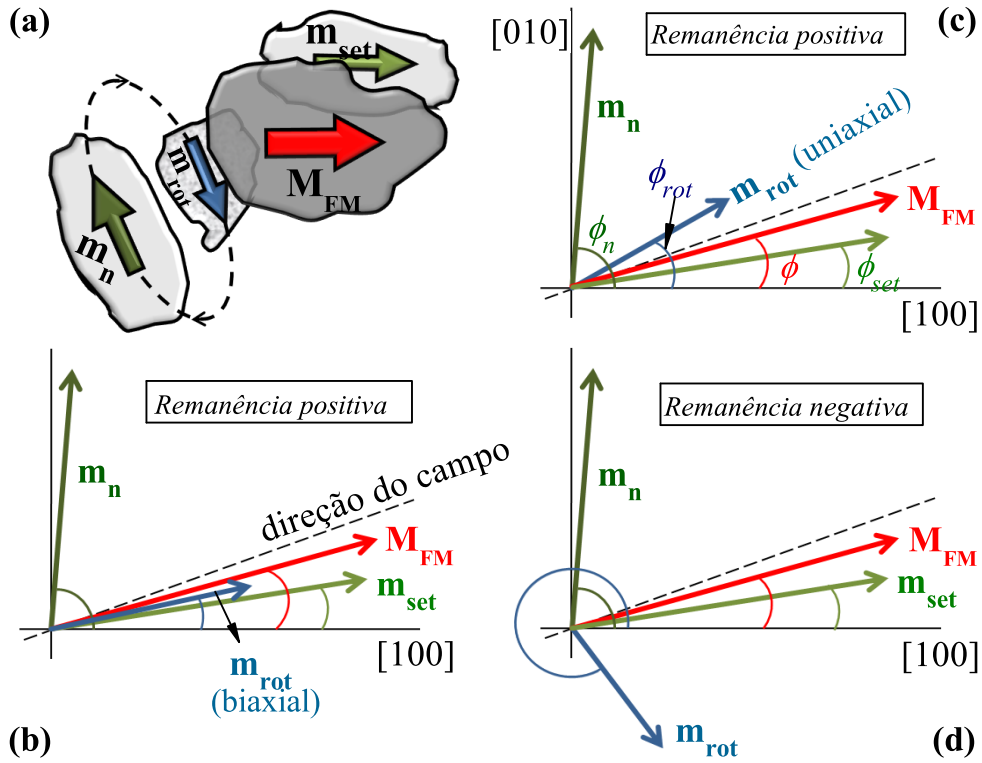


Figura 5.14: Esboço (a) do conjunto de quatro grãos considerando interação dipolar entre \mathbf{m}_{rot} e \mathbf{m}_n . Configurações esquemáticas das magnetizações de cada grão na remanência positiva para anisotropia biaxial (b) e uniaxial $[010]$ (c) de \mathbf{m}_{rot} . Configuração para remanência negativa (d).

magnéticos. Nos painéis (b) e (c) da mesma figura temos ilustrado a configuração dos momentos para o estado de remanência positiva, ou seja, após diminuir H de H_{max} até $H = 0$. Consideramos anisotropia biaxial (b) ou uniaxial $[010]$ (c) de \mathbf{m}_{rot} e podemos notar que todas as magnetizações apresentam um pequeno desvio de seus eixos de anisotropia. Este estado é o mínimo global do sistema, que foi estabelecido durante a ativação (tratamento térmico) do mesmo, e reflete a competição entre acoplamentos e anisotropias. Podemos notar que, no caso da remanência positiva, a única diferença substancial entre os painéis (b) e (c) é a orientação da magnetização de \mathbf{m}_{rot} . No caso biaxial ele está alinhado com uma direção próxima a direção $[100]$, que é um de seus eixos fáceis. Já para uma anisotropia uniaxial ele posiciona-se entre a direção do campo aplicado e a direção $[010]$, que é sua direção fácil.

A configuração de spins após a saturação negativa de \mathbf{M}_{FM} e o retorno para $H = 0$ é mostrada na figura 5.14(d). Este estado é um mínimo global para todos os grãos, exceto \mathbf{m}_{rot} , que fica preso em um mínimo local, na vizinhança da direção $[0\bar{1}0]$, devido a sua interação com \mathbf{m}_n . Caso o campo máximo $+H_{max}$ não seja forte o suficiente para, além de saturar \mathbf{M}_{FM} , remover \mathbf{m}_{rot} de seu mínimo local, teremos uma configuração

de spins diferente da inicial ao final do ciclo de histerese. Ao repetirmos o processo teremos uma nova configuração inicial, que irá acarretar em uma modificação na curva de magnetização. As energias envolvidas se modificam, e passa a ser mais favorável para \mathbf{M}_{FM} e \mathbf{m}_{rot} reverterem sua magnetização mais cedo. Para as curvas subsequentes não se observa qualquer modificação, pois o estado inicial e final é o mesmo, e \mathbf{m}_{rot} permanece em seu mínimo local.

A competição entre mínimos locais e globais tem um papel importantíssimo, portanto, no processo de reversão da magnetização, uma vez que caminhos diferentes podem levar a estados estacionários diferentes em $H = +H_{\text{max}}$. Em sistemas como o nosso isto pode ser identificado como a origem dos efeitos de treinamento.

Interações interfaciais entre *clusters* podem ter um papel importante em sistemas policristalinos com interfaces FM/AF.³⁸ Vamos, inicialmente, analisar o caso de uma interação de troca entre *clusters* vizinhos, ou seja, entre \mathbf{m}_{rot} e \mathbf{m}_{n} . O resultado pode ser visto na figura 5.15, onde temos curvas simuladas para o primeiro e segundo ciclos de histerese. A figura mostra $M_{\text{FM}}(H)$ considerando anisotropia biaxial ou uniaxial do grão rodável, que está acoplado antiferromagneticamente com \mathbf{m}_{n} . Em ambos os casos foi observada uma diferença entre o primeiro e o segundo laço de histerese, e um resultado semelhante é obtido se considerarmos uma interação ferromagnética entre os grãos. Para tanto é necessário que \mathbf{m}_{n} encontre-se inicialmente orientado próximo a direção $[0\bar{1}0]$.

A figura 5.16 traz as curvas de magnetização de $M_{\text{FM}}(H)$, $m_{\text{rot}}(H)$ e $m_{\text{n}}(H)$, tanto para o primeiro quanto para o segundo ciclo, considerando interação dipolar entre \mathbf{m}_{rot} e \mathbf{m}_{n} . O eixo fácil de \mathbf{m}_{n} encontra-se na direção $[010]$, que é a mesma direção de fácil magnetização de \mathbf{m}_{rot} , no caso de considerarmos anisotropia uniaxial para este grão. Ao considerarmos uma anisotropia biaxial, esta direção também aparece como um dos eixos fáceis. Assumimos também uma orientação praticamente perpendicular à direção $[100]$ de $\hat{\mathbf{r}}$. Algumas modificações foram feitas nos parâmetros em relação àqueles utilizados na figura 5.15, garantindo uma melhor visualização. Mais uma vez fomos capazes de reproduzir efeitos de treinamento para anisotropia uniaxial e biaxial de \mathbf{m}_{rot} .

Como acontece em diversos modelos que reproduzem efeitos de treinamento, o nosso prevê que a aplicação de um campo muito intenso pode recuperar a configuração original de spins, reiniciando o sistema. Um par de curvas composto pelo terceiro e quarto ciclo do sistema mostrado no painel esquerdo da figura 5.15, simuladas com $H_{\text{max}} = 200$ Oe pode apresentar exatamente o mesmo comportamento que as duas primeiras curvas. Para isto basta submeter o sistema a um campo magnético maior que $+220$ Oe apenas uma vez,

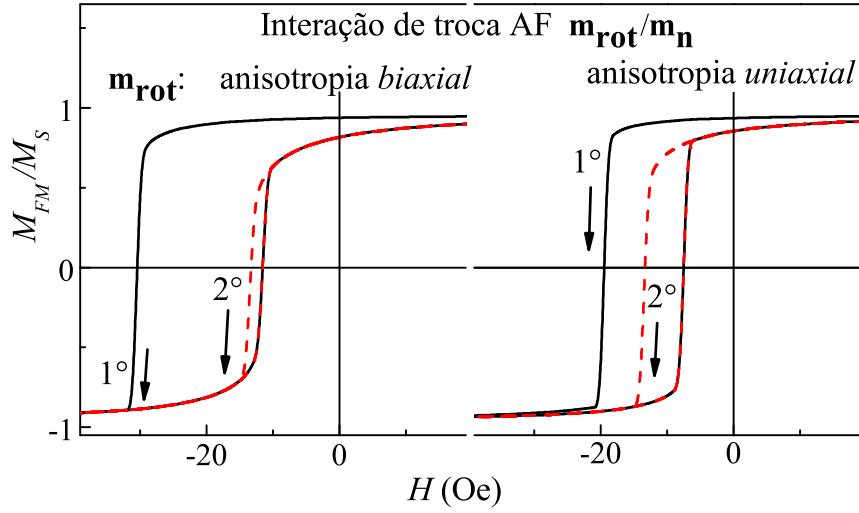


Figura 5.15: Primeiro (linha cheia) e segundo (linha tracejada) ciclos de $M_{FM}(H)$, normalizados pela magnetização de saturação do sistema, M_S . Considera-se uma interação de troca AF entre \mathbf{m}_{rot} e \mathbf{m}_n . As curvas foram calculadas para $\phi_0 = 10^\circ$, \mathbf{H} aplicado em 15° , anisotropia biaxial ($k_{rot}^c = 7,9 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$, $J_{Et} = J'_{Et} = 0,105 \text{ erg/cm}^2$, $J''_{Et} = -0,07 \text{ erg/cm}^2$) ou uniaxial ($k_{rot}^u = 4,1 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$, $\phi_{rot,0} = 90^\circ$, $J_{Et} = J'_{Et} = 0,084 \text{ erg/cm}^2$, $J''_{Et} = -0,035 \text{ erg/cm}^2$) de \mathbf{m}_{rot} e uniaxial dos outros dois grãos estáveis. Outros parâmetros relevantes utilizados nas simulações são: $v_{set} = v_{rot} = v_n = V/20 = 1,05 \text{ nm}^3$, $M_{FM} = 1400 \text{ emu/cm}^3$, $m_{set} = m_{rot} = m_n = 450 \text{ emu/cm}^3$, $K_{FM} = 1,4 \times 10^4 \text{ erg/cm}^3$, $k_{set} = k_n^u = 7,4 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$ e $\phi_{n,0} = 90^\circ$. Curvas praticamente idênticas são obtidas para um acoplamento \mathbf{m}_{rot} - \mathbf{m}_n ferromagnético, assumindo que \mathbf{m}_n esteja alinhado com o sentido $[0\bar{1}0]$.

após a segunda curva. O resultado são curvas idênticas às duas primeiras, que apresentam o mesmo efeito de treinamento.

Uma recuperação parcial de amostras que apresentam treinamento através de tratamentos térmicos pode ser observada experimentalmente.¹⁰⁰ Também pode-se obter resultados semelhantes simplesmente submetendo o sistema a um campo capaz de saturá-lo.¹⁰¹ A intensidade do efeito pode depender fortemente da magnitude deste campo.^{102, 103}

Hauet e colaboradores¹⁰⁴ observaram efeitos de treinamento em bicamadas de $\text{Gd}_{40}\text{Fe}_{60}/\text{Tb}_{12}\text{Fe}_{88}$ acopladas antiferromagneticamente que levavam a uma inversão de sinal de H_{EB} . Este comportamento incomum também pode ser obtido através de nosso modelo. Basta considerar um sistema simples, onde \mathbf{M}_{FM} está acoplado apenas com \mathbf{m}_{rot} , que por sua vez interage com \mathbf{m}_n . Não existe, portanto, acoplamento direto entre \mathbf{M}_{FM} e \mathbf{m}_n , apenas uma interação mediada por \mathbf{m}_{rot} , como proposto recentemente.^{38, 77} A figura 5.17 mostra o primeiro e o segundo laço de histerese traçados utilizando parâmetros parecidos com aqueles das figuras 5.15 e 5.16, porém com $\mathbf{m}_{set} = \mathbf{0}$. Apesar de, para os parâmetros aqui considerados, apenas os primeiros laços calculados para o caso de anisotropia biaxial de \mathbf{m}_{rot} mostrarem EB negativo, ambos os tipos de anisotropia resultam em treinamento,

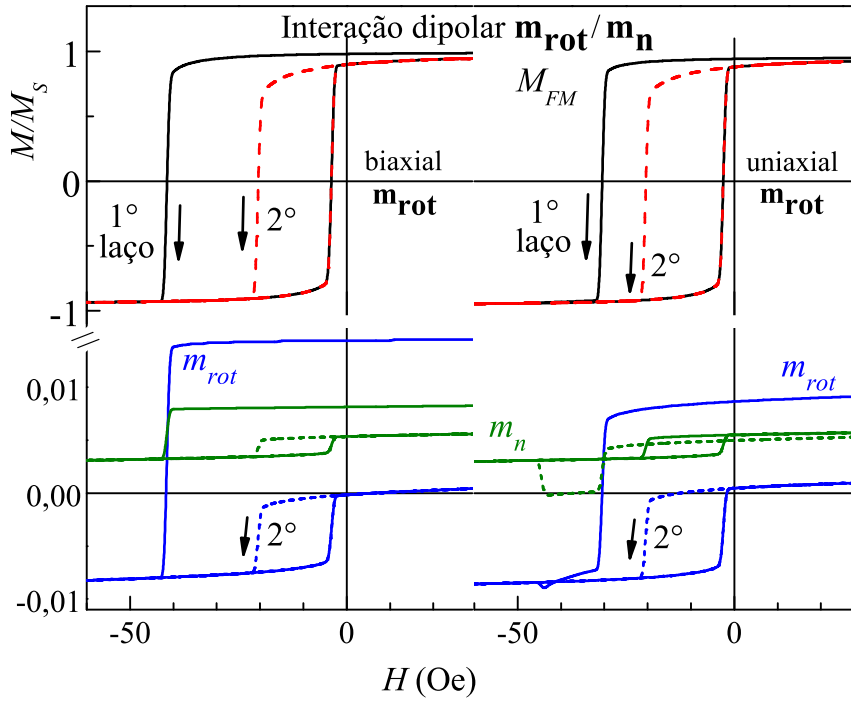


Figura 5.16: Painel superior: mesmo que a figura 5.15, porém considerando interação dipolar. Alguns parâmetros diferentes foram utilizados: $K_{FM} = 2,5 \times 10^4 \text{ erg/cm}^3$, anisotropia biaxial ($k_{rot}^c = 7,6 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$) ou uniaxial (eixo fácil na direção [010], $k_{rot}^u = 5,6 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$) para \mathbf{m}_{rot} . Painel inferior: curvas correspondentes a $m_{rot}(H)$ e $m_n(H)$. Outros parâmetros utilizados: $\theta_{\hat{r}} = -5^\circ$, $R = 1 \text{ nm}$, $k_n^u = 7,4 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$ e $J_{Et} = J'_{Et} = J''_{Et} = 0,105 \text{ erg/cm}^2$.

sendo que os segundos ciclos apresentam todos deslocamento positivo em campo. Este resultado é similar às observações experimentais citadas anteriormente.

É importante salientarmos que, diferentemente de outros modelos,⁹⁷ o nosso é capaz de reproduzir efeitos de treinamento através de parâmetros de anisotropia e acoplamento próximos dos encontrados em sistemas reais. Além disto, o efeito foi observado independentemente do tipo de anisotropia assumida para os UCS.

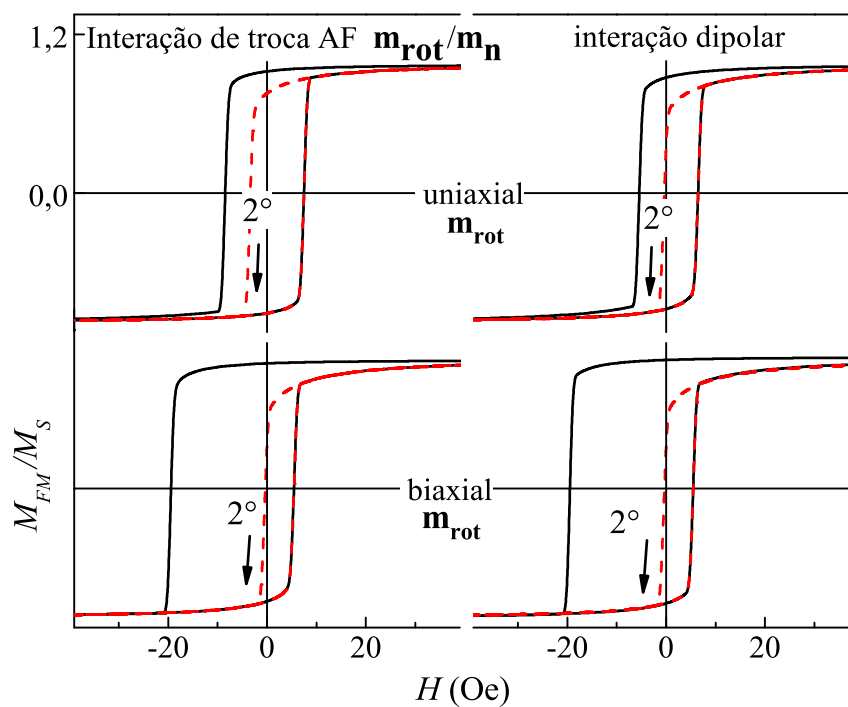


Figura 5.17: Mesmo que as figuras 5.15 e 5.16, mas com $\mathbf{m}_{set} = \mathbf{0}$ e $K_{FM} = 1,4 \times 10^4 \text{ erg/cm}^3$.

Conclusões

Na primeira parte deste trabalho, a influência dos tratamentos térmicos nos parâmetros de *exchange bias* foi estudada. Filmes finos de IrMn(15 nm)/Co(5 nm) e IrMn(15 nm)/Cu(0,25 nm)/Co(5 nm) foram recozidos em diversas temperaturas, sempre na presença de um campo magnético aplicado no plano do filme.

A variação da coercividade e do campo de EB com a temperatura de recozimento é similar para as duas amostras estudadas. Um decréscimo gradual de H_C é observado até $T_{ann} \approx 200^\circ\text{C}$, mantendo-se em um valor quase constante para temperaturas maiores. Para H_{EB} observa-se um aumento gradual $T_{ann} \approx 200^\circ\text{C}$, onde temos um máximo extenso. Em seguida, os valores diminuem quase que linearmente até $T_{ann} = 300^\circ\text{C}$.

O aumento do valor de H_{EB} observado se deve, provavelmente, ao alinhamento termicamente ativado dos UCS interfaciais através de um torque exercido pela camada FM saturada. A explicação geralmente aceita para o decréscimo de H_{EB} com T_{ann} é a de que existe *intermixing* ou criação de defeitos interfaciais. Estes mecanismos, entretanto, não são os ideais para explicar nossos resultados. A declividade do decréscimo linear experimentado por H_{EB} é a mesma para ambas as amostras. Se defeitos interfaciais ou *intermixing* fossem os responsáveis pelo efeito, isto não seria esperado, já que os filmes apresentam interfaces FM/AF distintas. Esta ideia é reforçada quando analisamos os padrões de refletividade e difração de raios-x obtidos para filmes de IrMn/Cu(0,5 nm)/Co tratados em 200 e 300 °C e medidas de TEM e NBD de filmes de Co(3 nm)/IrMn/Co(7 nm), também recozidos.

As técnicas utilizadas não são capazes de provar que não existe inter-difusão ou criação de defeitos interfaciais nos filmes após o recozimento. Entretanto, nossos resultados nos levam a crer que estes não poderiam ser os únicos mecanismos responsáveis pela variação dos parâmetros de EB. Modificações no volume do AF podem ser uma das causas do comportamento observado. Nossos resultados indicam fortemente que o decréscimo de H_{EB} para T_{ann} entre 200 e 300 °C se deve a uma melhora na cristalinidade do *bulk* de IrMn e/ou ao crescimento dos grãos, o que diminuiria o número de spins não-compensados, ao invés da criação de defeitos interfaciais e da inter-difusão das camadas de IrMn e Co.

Outro estudo desenvolvido no decorrer deste trabalho, onde amostras de IrMn/Co foram submetidas a tratamentos térmicos consecutivos, indicou uma possível transformação de grãos rodáveis e estáveis. Curvas de histerese obtidas para estas amostras foram simuladas através de um modelo teórico baseado na evolução de uma parede de domínio no interior do AF, e diversos parâmetros foram determinados, como por exemplo o campo de anisotropia rodável. Este modelo, porém, é bastante simples, principalmente quando se trata de sistemas com esta anisotropia. Na tentativa de abordar o problema considerando um sistema real, um novo modelo teórico foi proposto. Este considera diferentes tipos de grãos em interfaces FM/AF para explicar o EB. A estrutura policristalina encontrada em muitos dos filmes que apresentam o efeito é levada em conta. Bons resultados qualitativos foram obtidos, e diversas características observadas experimentalmente foram reproduzidas. Dentre elas destacamos os efeitos de treinamento atômico. Considerando um arranjo específico na interface e parâmetros cujos valores se aproximam dos observados em sistemas reais, o efeito pode ser alcançado.

Referências

- 1 CULLITY, B. D. **Introduction to magnetic materials**. Menlo Park: Addison-Wesley Publishing Company, 1972.
- 2 COEY, J. M. D. **Magnetism and Magnetic Materials**. The Edinburgh Building, Cambridge CB2 8RU, UK: Cambridge University Press, 2010.
- 3 ASHCROFT, N. W.; MERMIN, N. D. **Solid State Physics**. Philadelphia: Saunders College Publishing, 1976.
- 4 KITTEL, C. **Introduction to Solid State Physics**. 7. ed. New York: John Wiley & Sons, Inc., 1996.
- 5 WEISS, P. La variation du ferromagnétisme avec la temperature. **Comptes Rendus**, v. 143, p. 1136, 1906.
- 6 WEISS, P. L'Hypothèse du champ moléculaire et de la propriété ferromagnétique. **Journal de Physique**, v. 6, p. 661, 1907.
- 7 SHULL, C. G.; SMART, J. S. Detection of antiferromagnetism by neutron diffraction. **Physical Review**, v. 76, p. 1256, 1949.
- 8 MEIKLEJOHN, W. H.; BEAN, C. P. New magnetic anisotropy. **Physical Review**, v. 102, n. 5, p. 1413, 1956.
- 9 MEIKLEJOHN, W. H.; BEAN, C. P. New magnetic anisotropy. **Physical Review**, v. 105, n. 3, p. 904, Fevereiro 1957.
- 10 NOGUÉS, J.; SCHULLER, I. Exchange bias. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 192, p. 203, Julho 1999.
- 11 BERKOWITZ, A. E.; TAKANO, K. Exchange anisotropy — a review. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 200, p. 552, 1999.
- 12 MEIKLEJOHN, W. H. Exchange anisotropy – a review. **Journal of Applied Physics**, v. 33, n. 3, p. 1328, 1962.
- 13 NOGUÉS, J. *et al.* Exchange bias in nanostructures. **Physics Reports**, v. 422, p. 65, Julho 2005.
- 14 RADU, F.; ZABEL, H. **Exchange bias effect of ferro-/antiferromagnetic heterostructures. *Em* Magnetic Heterostructures; Advances and Perspectives in Spinstructures and Spintransport**. Editado por H. Zabel, Samuel D. Bader. Berlin/Heidelberg: Springer-Verlag, 2008.

- 15 JUNGBLUT, R. *et al.* Orientational dependence of the exchange biasing in molecular-beam-epitaxy-grown $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$ bilayers. **Journal of Applied Physics**, v. 75, p. 6659, 1994.
- 16 ZAAG, P. van der *et al.* A study of the magnitude of exchange biasing in [111] $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{CoO}$ bilayers. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 148, p. 346, 1995.
- 17 SHEN, J. X.; KIEF, M. T. Exchange coupling between NiO and NiFe thin films. **Journal of Applied Physics**, v. 79, p. 5008, 1996.
- 18 LEE, S.-S. *et al.* Effects of crystal texture on exchange anisotropy in NiO spin valves. **Journal of Applied Physics**, v. 81, p. 5298, 1997.
- 19 MALOZEMOFF, A. P. Random-field model of exchange anisotropy at rough ferromagnetic-antiferromagnetic interfaces. **Physical Review B**, v. 35, n. 7, p. 3679, 1987.
- 20 MALOZEMOFF, A. P. Heisenberg-to-ising crossover in a random-field model with uniaxial anisotropy. **Physical Review B**, v. 37, p. 7673, 1988.
- 21 KOON, N. C. Calculations of exchange bias in thin films with ferromagnetic/antiferromagnetic interface. **Physical Review Letters**, v. 78, p. 4865, 1997.
- 22 SUHL, H.; SCHULLER, I. K. Spin-wave theory of exchange-induced anisotropy. **Physical Review B**, v. 58, p. 258, 1998.
- 23 TAKANO, K. *et al.* Interfacial uncompensated antiferromagnetic spins: Role in unidirectional anisotropy in polycrystalline $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}/\text{CoO}$ bilayers. **Physical Review Letters**, v. 79, p. 1130, 1997.
- 24 NOGUÉS, J. *et al.* Large exchange bias and its connection to interface structure in $\text{FeF}_2\text{-Fe}$ bilayers. **Applied Physics Letters**, v. 68, p. 3186, 1996.
- 25 HAN, D.; ZHU, J. G.; JUDY, J. H. NiFe/NiO bilayers with high exchange coupling and low coercive fields. **Journal of Applied Physics**, v. 81, p. 4996, 1997.
- 26 HAN, D. *et al.* Texture and surface/interface topological effects on the exchange and coercive fields of NiFe/NiO bilayers. **Journal of Applied Physics**, v. 81, p. 340, 1997.
- 27 UYAMA, H. *et al.* Relation between the exchange-coupling field and the grain size in $\text{Cr}_{70}\text{Al}_{30}/\text{Fe}_{19}\text{Ni}_{81}$ bilayers. **Journal of the Magnetism Society of Japan**, v. 21, p. 911, 1997.
- 28 DRIEL, J. van *et al.* Exchange biasing by $\text{Ir}_{19}\text{Mn}_{81}$: Dependence on temperature, microstructure and antiferromagnetic layer thickness. **Journal of Applied Physics**, v. 88, n. 2, p. 975, Julho 2000.
- 29 VALLEJO-FERNANDEZ, G. *et al.* Annealing effect on thermal stability and microstructure in $\text{IrMn}/\text{Co}_{60}\text{Fe}_{20}\text{B}_{20}$ bilayers. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 310, p. e786, 2007.

- 30 TAKAHASHI, M. *et al.* A study of exchange anisotropy in Co-CoO evaporated thin films. **Japanese Journal of Applied Physics**, v. 19, p. 1093, 1980.
- 31 NICOLODI, S. *et al.* Copper spacer thickness dependence of the exchange bias in IrMn/Cu/Co ultrathin films. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 316, p. e97, 2007.
- 32 BERKOWITZ, A. E.; GREINER, J. H. Exchange anisotropy and strain interactions in the Ni-NiO system. **Journal of Applied Physics**, v. 36, p. 3330, 1965.
- 33 MORAN, T. J.; GALLEGO, J. M.; SCHULLER, I. K. Increased exchange anisotropy due to disorder at permalloy/CoO interfaces. **Journal of Applied Physics**, v. 78, p. 1887, 1995.
- 34 MARCH, N.; LAMBIN, P.; HERMAN, F. Cooperative magnetic-properties in single-phase and 2-phase 3d metallic alloys relevant to exchange and magnetocrystalline anisotropy. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 44, p. 1, 1984.
- 35 KOUVEL, J. A ferromagnetic-antiferromagnetic model for copper-manganese and related alloys. **Journal of Physics and Chemistry of Solids**, v. 24, p. 795, 1963.
- 36 CAIN, W. C.; KRYDER, M. H. Investigation of the exchange mechanism in NiFe-TbCo bilayers. **Journal of Applied Physics**, v. 67, p. 5722, 1990.
- 37 KIWI, M. Exchange bias theory. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 234, p. 584, Junho 2001.
- 38 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, Janeiro 2010.
- 39 NÉEL, L. **Annals of Physics (N. Y.)**, v. 2, p. 61, 1967.
- 40 FULCOMER, E.; CHARAP, S. H. Thermal fluctuation aftereffect model for some systems with ferromagnetic-antiferromagnetic coupling. **Journal of Applied Physics**, v. 43, n. 10, p. 4190, 1972.
- 41 MAURI, D. *et al.* Simple model for thin magnetic films exchange coupled to an anti-ferromagnetic substrate. **Journal of Applied Physics**, v. 62, p. 3047, 1987.
- 42 SCHULTHESS, T. C.; BUTLER, W. H. Consequences of spin-flop coupling in exchange biased films. **Physical Review Letters**, v. 81, n. 20, p. 4516, Novembro 1998.
- 43 SCHULTHESS, T. C.; BUTLER, W. H. Coupling mechanisms in exchange biased films (invited). **Journal of Applied Physics**, v. 85, n. 8, p. 5510, 1999.
- 44 STILES, M. D.; MCMICHAEL, R. D. Model for exchange bias in polycrystalline ferromagnet-antiferromagnet bilayers. **Physical Review B**, v. 59, p. 3722, 1999.
- 45 NOWAK, U. *et al.* Domain state model for exchange bias. I. Theory. **Physical Review B**, v. 66, n. 1, p. 014430, Julho 2002.
- 46 MILTÉNYI, P. *et al.* Diluted antiferromagnets in exchange bias: Proof of the domain state model. **Physical Review Letters**, v. 84, p. 4224, 2000.

- 47 KELLER, J. *et al.* Domain state model for exchange bias. II. Experiments. **Physical Review B**, v. 66, n. 1, p. 014431, Julho 2002.
- 48 KIWI, M. *et al.* Exchange-bias systems with compensated interfaces. **Applied Physics Letters**, v. 75, n. 25, p. 3995, Dezembro 1999.
- 49 KIM, J.-V.; STAMPS, R. L. Hysteresis from antiferromagnet domain-wall processes in exchange-biased systems: Magnetic defects and thermal effects. **Physical Review B**, v. 71, p. 094405, 2005.
- 50 PROSEN, R. J.; HOLMEN, J. O.; GRAN, B. E. Rotatable anisotropy in thin permalloy films. **Journal of Applied Physics**, v. 32, p. S91, 1961.
- 51 LOMMEL, J. M.; GRAHAM, J. C. D. Rotatable anisotropy in composite films. **Journal of Applied Physics**, v. 33, p. 1160, 1962.
- 52 MCMICHAEL, R. D. *et al.* Ferromagnetic resonance studies of NiO-coupled thin films of Ni₈₀Fe₂₀. **Physical Review B**, v. 58, p. 8605, 1998.
- 53 GESHEV, J.; PEREIRA, L. G.; SCHMIDT, J. E. Rotatable anisotropy and coercivity in exchange-bias bilayers. **Physical Review B**, v. 66, n. 9, p. 134432, Junho 2002.
- 54 KIM, J. K. *et al.* Determination of rotatable anisotropy in exchange-biased bilayers using anisotropic magnetoresistance technique. **Journal of Applied Physics**, v. 93, p. 7714, 2003.
- 55 RADU, F. *et al.* Quantitative description of the azimuthal dependence of the exchange bias effect. **Journal of Physics: Condensed Matter**, v. 18, p. L29, 2006.
- 56 GESHEV, J.; PEREIRA, L. G.; SCHMIDT, J. E. Angular dependence of the exchange bias obtained from magnetization and ferromagnetic resonance measurements in exchange-coupled bilayers. **Physical Review B**, v. 64, p. 184411, 2001.
- 57 GESHEV, J. *et al.* Exchange bias through a Cu interlayer in an IrMn/Co system. **Physical Review B**, v. 75, p. 214402, 2007.
- 58 CAMARERO, J. *et al.* Origin of the asymmetric magnetization reversal behavior in exchange-biased systems: Competing anisotropies. **Physical Review Letters**, v. 95, p. 057204, 2005.
- 59 YANG, P. Y. *et al.* The role of rotatable anisotropy in the asymmetric magnetization reversal of exchange biased NiO/Ni bilayers. **Journal of Applied Physics**, v. 106, p. 013902, 2009.
- 60 FLANDERS, P. J. An alternating-gradient magnetometer. **Journal of Applied Physics**, v. 63, p. 3940, 1988.
- 61 FASSBENDER, J.; MCCORD, J. Magnetic patterning by means of ion irradiation and implantation. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, 2008.
- 62 FASSBENDER, J.; RAVELOSONA, D.; SAMSON, Y. Tailoring magnetism by light-ion irradiation. **Journal of Physics D: Applied Physics**, v. 37, p. R179, Novembro 2004.

- 63 SCHAFFER, D. *et al.* Controlled rotation of the exchange-bias direction in IrMn/Cu/Co via ion irradiation. **Applied Physics Letters**, v. 93, p. 042501, Julho 2008.
- 64 SCHAFFER, D. *et al.* Ion irradiation effects on the exchange bias in IrMn/Co films. **Journal of Applied Physics**, v. 109, p. 023905, 2011.
- 65 NOGUÉS, J. *et al.* Antiferromagnetic spin flop and exchange bias. **Physical Review B**, v. 61, p. R6455, 2000.
- 66 NOGUÉS, J. *et al.* Isothermal tuning of exchange bias using pulsed fields. **Applied Physics Letters**, v. 82, p. 3044, 2003.
- 67 CICHELERO, R. *et al.* Engineering double-shifted hysteresis loops in Co/IrMn/Cu/Co films. **Applied Physics Letters**, v. 95, p. 112501, Setembro 2009.
- 68 GESHEV, J.; PEREIRA, L. G.; SKUMRYEV, V. Comment on “Exchange bias dependence on interface spin alignment in a Ni₈₀Fe₂₀/(Ni,Fe)O thin film”. **Physical Review Letters**, v. 100, p. 039701, 2008.
- 69 KOOLS, J. C. S. Exchange-biased spin-valves for magnetic storage. **IEEE Transactions on Magnetics**, v. 32, p. 3165, 1996.
- 70 TSANG, C. Magnetics of small magnetoresistive sensors (invited). **Journal of Applied Physics**, v. 55, p. 2226, 1984.
- 71 DEVASAHAYAM, A. J.; SIDES, P. J.; KRYDER, M. H. Magnetic, temperature, and corrosion properties of the NiFe/IrMn exchange couple. **Journal of Applied Physics**, v. 83, p. 7216, 1998.
- 72 OLIVEIRA, S. N. de. **Exchange Bias em Filmes de IrMn/Cu/Co**. Dissertação (Mestrado) — Universidade Federal do Rio Grande do Sul, 2007.
- 73 MATTOX, D. M. **Handbook of Physical Vapor Deposition (PVD) Processing**. Westwood, New Jersey, USA: Noyes publications, 1998.
- 74 GESHEV, J. *et al.* Role of the uncompensated interface spins in polycrystalline exchange-biased systems. **Journal of Physics D: Applied Physics**, v. 44, p. in press, 2011.
- 75 GESHEV, J. Comment on: “exchange bias and vertical shift in CoFe₂O₄ nanoparticles” [j. magn. magn. mater. 313 (2007) 266]. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 320, p. 600, 2007.
- 76 CULLITY, B. D. **Elements of X-ray diffraction**. Massachussets: Addison-Wesley Publishing Company, 1956.
- 77 BERKOWITZ, A. E. *et al.* Refining the exchange anisotropy paradigm: Magnetic and microstructural heterogeneity at the Permalloy-CoO interface. **Physical Review B**, v. 81, n. 13, p. 134404, Abril 2010.

- 78 GESHEV, J. *et al.* Discrimination between coupling and anisotropy fields in exchange-biased bilayers. **Journal of Applied Physics**, v. 105, p. 053903, 2009.
- 79 GESHEV, J. Analytical solutions for exchange bias and coercivity in ferromagnetic/antiferromagnetic bilayers. **Physical Review B**, v. 62, n. 9, p. 5627, Setembro 2000.
- 80 XI, H.; WHITE, R. M.; REZENDE, S. M. Irreversible and reversible measurements of exchange anisotropy. **Physical Review B**, v. 60, p. 14837, 1999.
- 81 BRÜCK, S. *et al.* Exploiting length scales of exchange-bias systems to fully tailor double-shifted hysteresis loops. **Advanced Materials**, v. 17, p. 2978, 2005.
- 82 XU, M. *et al.* Relation between microstructures and magnetic properties upon annealing in $\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}/\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ films. **Journal of Applied Physics**, v. 92, p. 2052, 2002.
- 83 LEE, C.-G. *et al.* Annealing temperature dependences of magnetization reversal in exchange-biased bilayers. **Physica B**, v. 372, p. 350, 2006.
- 84 GORNAKOV, V. S. *et al.* Thickness and annealing temperature dependences of magnetization reversal and domain structures in exchange biased Co/Ir-Mn bilayer. **Journal of Applied Physics**, v. 105, p. 103917, 2009.
- 85 TAKENAGA, T. *et al.* Control of pinned layer magnetization direction in spin-valve-type magnetic tunnel junction with an IrMn layer. **Journal of Applied Physics**, v. 95, p. 6795, 2004.
- 86 IMAKITA, K.; TSUNODA, M.; TAKAHASHI, M. Thickness dependence of exchange anisotropy of polycrystalline $\text{Mn}_3\text{Ir}/\text{Co-Fe}$ bilayers. **Journal of Applied Physics**, v. 97, p. 10K106, 2005.
- 87 MISRA, A.; NOWAK, U.; USADEL, K. D. Control of exchange bias by diluting the antiferromagnetic layer. **Journal of Applied Physics**, v. 93, p. 6593, 2003.
- 88 MORALES, R. *et al.* Role of the antiferromagnetic bulk spin structure on exchange bias. **Physical Review Letters**, v. 102, p. 097201, 2009.
- 89 KIM, Y. K. *et al.* Interface and microstructure evolutions in synthetic ferrimagnet-based spin valves upon exposure to postdeposition annealing. **Journal of Applied Physics**, v. 93, p. 7924, 2003.
- 90 DU, Y. *et al.* Enhanced exchange anisotropy in IrMn/CoFeB systems and its correlation with uncompensated interfacial spins. **Applied Physics Letters**, v. 96, p. 222503, 2010.
- 91 SAHA, J.; VICTORA, R. H. Large scale micromagnetic simulation for the exchange interaction between a polycrystalline antiferromagnet and a ferromagnet. **Physical Review B**, v. 73, p. 104433, 2006.
- 92 PACCARD, D. *et al.* A new property of ferromagnetic-antiferromagnetic coupling. **Physica Status Solidi**, v. 16, p. 301, 1966.
- 93 BINEK, C. Training of the exchange-bias effect: A simple analytic approach. **Physical Review B**, v. 70, p. 014421, 2004.

- 94 SUESS, D. *et al.* Exchange bias of polycrystalline antiferromagnets with perfectly compensated interfaces. **Physical Review B**, v. 67, p. 054419, 2003.
- 95 VELTHUIS, S. G. E. *te et al.* Training effects and the microscopic magnetic structure of exchange biased Co/CoO bilayers. **Journal of Applied Physics**, v. 87, p. 5046, 2000.
- 96 BITERNAS, A. G.; NOWAK, U.; CHANTRELL, R. W. Training effect of exchange-bias bilayers within the domain state model. **Physical Review B**, v. 80, p. 134419, 2009.
- 97 HOFFMANN, A. Symmetry driven irreversibilities at ferromagnetic-antiferromagnetic interfaces. **Physical Review Letters**, v. 93, p. 097203, 2004.
- 98 FERNANDEZ-OUTON, L. *et al.* Thermal instabilities in exchange biased materials. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 303, p. 296, 2006.
- 99 BIAGIONI, P.; MONTANO, A.; FINAZZI, M. Influence of three-dimensional dynamics on the training effect in ferromagnet-antiferromagnet bilayers. **Physical Review B**, v. 80, p. 134401, 2009.
- 100 ZHANG, K.; ZHAO, T.; FUJIWARA, H. Annealing effect on the recovery of training effect in FeO_x-CoFe polycrystalline systems. **IEEE Transactions on Magnetics**, v. 38, p. 2750, 2002.
- 101 BREMS, S. *et al.* Reversing the training effect in exchange biased CoO/Co bilayers. **Physical Review Letters**, v. 95, p. 157202, 2005.
- 102 BREMS, S.; TEMST, K.; HAESSENDONCK, C. V. Origin of the training effect and asymmetry of the magnetization in polycrystalline exchange bias systems. **Physical Review Letters**, v. 99, p. 067201, 2007.
- 103 PAUL, A.; MATTAUCH, S. Microscopic origin of training in exchange bias system. **Applied Physics Letters**, v. 95, p. 092502, 2009.
- 104 HAUET, T. *et al.* Training effect in an exchange bias system: The role of interfacial domain walls. **Physical Review Letters**, v. 96, p. 067207, 2006.