

Universidade de São Paulo  
Instituto de Física

# Estudo do acoplamento de troca no sistema NiFe/FeMn e efeitos da irradiação iônica

Angela Dayana Barra Barrera



Prof. Dr. Antonio Domingues dos Santos (orientador)

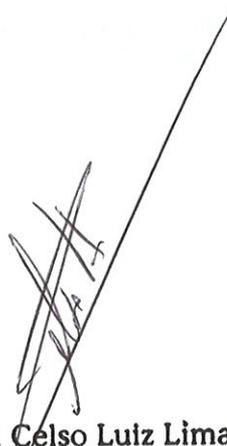
Tese de doutorado apresentada ao Instituto de Física  
para a obtenção do título de Doutor em Ciências

Comissão Examinadora:

Prof. Dr. Antonio Domingues dos Santos (IFUSP)  
Prof. Dr. Frank Patrick Missell (IFUSP)  
Profa. Dra. Marcia Carvalho de Abreu Fantini (IFUSP)  
Prof. Dr. Luiz Carlos Sampaio Lima (CBPF)  
Profa. Dr. Flávio Garcia (LNLS)



São Paulo  
2005



Prof. Celso Luiz Lima  
Presidente da Comissão de Pós-Graduação



SBI-IFUSP

def 01/12/05.

**FICHA CATALOGRÁFICA**  
**Preparada pelo Serviço de Biblioteca e Informação**  
**do Instituto de Física da Universidade de São Paulo**

Barrera, Angela Dayana Barra

Estudo do Acoplamento de Troca no Sistema  
NiFe/FeHn e Efeitos da Irradiação Iônica.  
São Paulo, 2005

Tese (Doutoramento) - Universidade de São Paulo  
Instituto de Física - Depto. de Física dos Materiais e  
Mecânica

Orientador: Prof. Dr. Antonio Domingues dos Santos  
Área de Concentração: Física

Unitermos:

1. Magnetismo;
2. Fenômenos Magnéticos;
3. Filmes Finos.

USP/IF/SBI-093/2005

Este trabalho é dedicado a meu esposo e meu filho:

***Cleber e Lucas de Brito***

*Eu sou grata por tudo o que sou e tenho:  
Vida, perseverança, alegria,  
família, amigos e muitos irmãos.  
Esse tesouro me foi dado como herança eterna,  
como a maior prova de um profundo amor.  
Foi Ele, Jesus-Deus, que me deu esse tesouro.  
O mais importante, Ele me deu a minha salvação.*

## **Agradeço**

Ao meu esposo Luiz Cleber pelo apoio, ajuda, paciência, compreensão e incentivo.

Ao Prof. Antonio Domingues dos Santos pela orientação, ensinamentos e sobretudo pelos conselhos, algumas vezes muito “duros”, que sempre chegaram na hora certa e me ajudaram a crescer como profissional e como pessoa.

Aos Professores: Luiz Sampaio, Lívio Amaral e Márcia Fantini pela colaboração com este trabalho.

Ao Prof. Frank Missell pela curta mais valiosa orientação no início do meu doutoramento.

A Profa. Valquíria Villas Boas por ter me dado a oportunidade de iniciar minha pós-graduação no Laboratório de Matérias Magnéticas (LMM) e pela amizade.

Aos colegas, professores e funcionários do LMM, em especial aos meus amigos: Regina Murakami, Sergio Romero e Iran Amorim, pela ajuda constante e simpatia desde que cheguei ao Brasil.

A minha família, que mesmo estando longe me incentivam a conseguir meus objetivos.

Aos meus sogros Aluízio e Rutilena de Brito que com sua ajuda me permitiram concluir este trabalho.

Aos amigos Zulmara, Ruth, Andrey, Akira e Alexandre pela amizade e agradável convivência que amenizaram minha passagem pelo CRUSP e pelo IFUSP.

Ao grupo de cristãos do CRUSP, em especial as minhas amigas Kâ, Lulu, Nara, Rô e Elaine, pela amizade, carinho e acolhimento.

À família Alcântara Falla e a Marcos Meira pela grande ajuda na etapa final do meu doutorado.

Ao Coseas e a Fapesp.

## Resumo

O objetivo do presente trabalho foi produzir e estudar magnética e estruturalmente filmes finos de  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}/\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$ . Os filmes foram produzidos através da técnica de DC *magnetron sputtering*. Iniciamos nosso estudo em filmes de  $\text{Si}/\text{buffer}/\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}(30\text{nm})/\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}(15\text{nm})/\text{Ta}(5\text{nm})$ , utilizando-se substratos de  $\text{Si}(100)$ ,  $\text{Si}(111)$  e *buffer* de Cu e Ta, a fim de determinar as melhores condições para a obtenção de bom acoplamento de *exchange* entre as bicamadas magnéticas. Em seguida estudamos as propriedades magnéticas de filmes em função da espessura das camadas magnéticas. As amostras produzidas para este estudo foram filmes de  $\text{Si}(100)/\text{Cu}(20\text{nm})/\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}(t_{\text{FM}}\text{nm})/\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}(t_{\text{AFM}}\text{nm})/\text{Ta}(3\text{nm})$ , variando-se  $t_{\text{FM}}$  entre 5 e 53nm e mantendo fixa  $t_{\text{AFM}}$  em 10nm e vice-versa. Finalmente estudamos o efeito das irradiações iônicas de He e Ne no acoplamento de *exchange*.

Os filmes foram caracterizados utilizando-se as técnicas de magnetometria de amostra vibrante, difração de raios-x, refletometria de raios-x, absorção de raios-x na borda do Mn e microscopia óptica de campo próximo (SNOM). Os resultados da caracterização magnética de todos os filmes de  $\text{Si}/\text{buffer}/\text{NiFe}/\text{FeMn}/\text{Ta}$  mostram que eles apresentam acoplamento de *exchange* logo após a sua obtenção por *sputtering*. Porém o acoplamento via troca precisa ser induzido através do procedimento *field cooling* nos filmes de  $\text{Si}/\text{buffer}/\text{FeMn}/\text{NiFe}/\text{Ta}$ . Os resultados das medidas de difração de raios x mostram que os filmes apresentam estrutura cristalina FCC e texturas cristalográficas (111) e (200) quando as camadas magnéticas são depositadas sobre Cu e uma única textura cristalográfica, a textura (111) quando elas são depositadas sobre Ta. Por outro lado, os resultados da caracterização magnética nos indicam que as amostras com *buffer* de Cu apresentam as melhores propriedades magnéticas alto valor de  $H_{\text{exc}}$  e baixa coercividade. A análise de EXAFS dos filmes com diferentes *buffers* nos indica que as amostras depositadas sobre Ta e diretamente sobre silício apresentam maior desordem na sua estrutura fina em relação às amostras depositadas sobre Cu.

A caracterização magnética dos filmes irradiados ionicamente mostrou que o valor de  $H_{\text{exc}}$  dos filmes irradiados com diferentes doses de He a temperatura ambiente aumentou em comparação ao valor do campo de *exchange* das amostras antes das irradiações iônicas. Já nas amostras irradiadas com Ne o campo de *exchange* diminuiu drasticamente. A partir das medidas realizadas no microscópio óptico de varredura em campo próximo (SNOM), em diferentes regiões de amostras antes e depois de serem irradiadas ionicamente observamos que não há variações no valor do campo de *exchange*.

# Abstract

The aim of the present work was to produce and to study magnetic and structural properties of  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}/\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$  thin films. These films were produced by DC magnetron sputtering. We began our study on  $\text{Si}/\text{buffer}/\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}(30\text{nm})/\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}(15\text{nm})/\text{Ta}(5\text{nm})$  films, using Si(100) or Si(111) substrates and Cu or Ta buffer layer, in order to determine the best conditions for obtaining a good exchange coupling between magnetic bilayers. After that, we studied the magnetic properties of these films relative to magnetic layers thickness. The samples studied were  $\text{Si}(100)/\text{Cu}(20\text{nm})/\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}(t_{\text{FM}}\text{ nm})/\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}(t_{\text{AFM}}\text{ nm})/\text{Ta}(3\text{nm})$ , with  $t_{\text{FM}}$  varying between 5 to 53nm, with fixed  $t_{\text{AFM}}$  of 10nm, and vice versa, namely with fixed  $t_{\text{FM}}$  and varying  $t_{\text{AFM}}$ . Finally, we studied the effect of He and Ne ionic irradiation on the exchange-coupling interaction.

The thin films were characterized by vibrating sample magnetometry, X-ray diffraction, X ray reflectometry, X ray absorption spectroscopy at the Mn K edge, and near field optical microscopy (SNOM). The magnetic characterization of all  $\text{Si}/\text{buffer}/\text{NiFe}/\text{FeMn}/\text{Ta}$  films shows that pristine films present exchange coupling. However, the exchange-coupling interaction needs to be inducing through field cooling procedure for  $\text{Si}/\text{buffer}/\text{FeMn}/\text{NiFe}/\text{Ta}$  films. X ray diffraction measurements show that these films presents FCC crystal structure, plus (111) and (200) crystal textures when the magnetic layers are deposited on Cu buffer layer, and only the (111) crystal texture when the layers are deposited on Ta. On other hand, the magnetic measurement point out that the Cu buffer samples presents the best magnetic properties with high values for  $H_{\text{exc}}$  and low values of coercive field. The EXAFS analysis of films with different buffers points out that samples deposited on Ta and directly on silicon present a larger local disorder than samples deposited on Cu.

The magnetic measurements of the ionic irradiated films showed an increase of  $H_{\text{exc}}$  values for samples irradiated at room temperature with different He rates, compared with the same samples before irradiation. On the other hand, for Ne irradiated samples the exchange field decreased drastically. We observed irradiation no changes on the exchange field values from near field optical microscopy (SNOM) measurements at different areas of samples before and after ionic. These results point out that, even if we are characterizing very small areas of the samples, the exchange field represents the average behavior of the exchange interaction in these areas.

# Sumário

<b>Capítulo 1</b>	Introdução	pág 9
<b>Capítulo 2</b>	Revisão teórica	15
2.1	O fenômeno do <i>exchange bias</i>	15
2.2	Sistemas com <i>exchange bias</i>	19
2.2.1	Sistemas formados de óxidos antiferromagnéticos	19
2.2.2	Sistemas formados de antiferromagnetos metálicos	20
2.2.3	Sistemas formados por outros antiferromagnetos	22
2.3	Modelos teóricos	23
2.3.1	Modelos iniciais	24
2.3.2	Modelo de Néel	25
2.3.3	Modelo de paredes de domínio antiferromagnéticas	26
2.3.4	Modelo de redes magnéticas FM e AFM perpendiculares	26
2.3.5	Segundo modelo de campo aleatório	27
2.4	Irradiações iônicas	27
2.5	Síntese	28
<b>Capítulo 3</b>	Parte experimental	29
3.1	Técnicas experimentais	29
3.1.1	Técnica de <i>magnetron sputering</i>	30
3.1.2	Técnicas de caracterização estrutural	33
3.1.2.1	Retroespalhamento de Rutherford (RBS)	33

3.1.2.2	Difração de raios-X	36
3.1.2.3	Refletometria de raios-X	38
3.1.2.4	Absorção de raios-X	39
3.1.3	Técnicas de caracterização magnética	43
3.1.3.1	Magnetômetro de amostra vibrante	43
3.1.3.2	Medidas magneto ópticas	45
3.2	Procedimentos experimentais desenvolvidos	46
3.2.1	Estudo das propriedades magnéticas dos filmes em função da pressão de deposição por <i>magnetron sputtering</i>	47
3.2.2	Estudo das propriedades estruturais e magnéticas dos filmes em função dos <i>buffers</i> e substratos utilizados	47
3.2.3	Estudo do acoplamento de <i>exchange bias</i> em função da seqüência de deposição e espessura das camadas magnéticas	48
3.2.4	Estudo da dependência de $H_{exc}$ com a espessura do NiFe e FeMn depositados sobre Si(100) e Si(111) e <i>buffers</i> de Ta e Cu	50
3.2.5	Estudo do efeito das irradiações iônicas em <i>exchange bias</i> de NiFe/FeMn.	50
<b>Capítulo 4 Resultados experimentais e análise</b>		54
4.1	Espectroscopia por Retroespalhamento Rutherford	54
4.2	Estudo das propriedades estruturais e magnéticas dos filmes em função dos <i>buffers</i> e substratos utilizados	56
4.2.1	Difração de raios-x	57
4.2.2	Absorção de raios-x	61
4.2.3	Caracterização magnética	62
4.2.3.1	Caracterização magnética das amostras logo após a produção	62
4.2.3.2	Caracterização magnética das amostras depois de realizado o procedimento FC	67
4.3	Estudo do acoplamento de <i>exchange bias</i> em função da sequencia de deposição e espessura das camadas magnéticas	68
4.4	Caracterização magnética de amostras produzidas em conjunto	72

---

4.5	Caracterização magnética e estrutural das amostras irradiadas com íons de He e Ne	77
4.5.1	Caracterização magnética e estrutural das amostras irradiadas com He à $T_{amb}$ e $T_{LN}$	77
4.5.2	Caracterização magnética das amostras irradiadas com He a $T_{amb}$ e tratadas termicamente logo após as irradiações iônicas.	85
4.5.3	Caracterização magnética das amostras seis meses após serem irradiadas com He a $T_{amb}$ .	87
4.5.4	Caracterização magnética e estrutural das amostras tratadas termicamente após seis meses de serem irradiadas com He à $T_{amb}$ .	88
4.5.5	Caracterização magnética e estrutural das amostras irradiadas com Ne à $T_{amb}$ e à $T_{LN}$ .	90
4.5.6	Efeito da oxidação nas amostras irradiadas.	96
4.6	Medidas magneto ópticas em filmes de NiFe/FeMn	96
	<b>Capítulo 5</b> Análise geral e conclusões	99
	<b>Referências</b>	105

## Lista de figuras

2.1	Curva de histerese de uma amostra de um sistema com <i>exchange bias</i> .....	16
2.2	Ilustração do mecanismo da anisotropia unidirecional assumindo a interação de <i>exchange</i> em uma interface ideal FM/AFM.....	18
2.3	Diagrama esquemático de uma interface (a) não compensada e (b) compensada.....	24
3.1	Fotografia do sistema de <i>sputtering</i> utilizado na produção das amostras.....	31
3.2	Porta-substrato utilizado para a produção das amostras.....	32
3.3	Espectro de RBS de um filme de $Fe_{50}Mn_{50}$ de 30 nm de espessura depositado sobre um substrato de Si(100).....	34
3.4	Esquema simplificado do equipamento utilizado para as medidas de RBS.....	36
3.6	(a) Espectro de absorção de raios-X de um filmes de $Ni_{81}Fe_{19}/Fe_{50}Mn_{50}$ . (b) Oscilações de EXAFS extraídas de (a). (c) Transformada de Fourier das oscilações de EXAFS indicadas em (b).....	40
3.6	Fotografia das bobinas sensoras fabricadas para as medidas de M vs. H das amostras.....	44
3.7	Esquema da aplicação do campo de varredura nas medidas M vs. H. (a) Campo magnético aplicado na direção radial do porta-substrato ( $H_r$ ) e (b) com campo magnético aplicado perpendicular à direção anterior( $H_p$ ).....	45

3.8 Fotografia do MO-SNOM.....	47
3.9 Substratos de Si colados sobre a porta-substrato da câmara de <i>sputtering</i> .....	52
4.1 Gráfico da espessura vs. tempos de deposição de três filmes de (a) NiFe e (FeMn), depositados durante 20, 40 e 60 minutos.....	55
4.2 Espectros RBS dos filmes (a) Si/NiFe, (b) Si/FeMn, (c) Si/Ta e (d) Si/Cu e suas respectivas simulações.....	56
4.3 Difratogramas dos filmes (a) Si(100)/Cu/NiFe/FeMn, (b) Si(100)/Cu/NiFe e (c) Si(100)/Cu (A1), respectivamente.....	58
4.4 Difratogramas dos filmes (a) Si(100)/Ta/NiFe/FeMn, (b) Si(100)/Ta/NiFe e (c) Si(100)/Ta, respectivamente.....	60
4.5 Pico principal das transformadas de Fourier das oscilações de EXAFS dos espectros de absorção de raios-X na borda do Mn das amostras Si/Cu/NiFe/FeMn/Ta (A4), Si/Ta/NiFe/FeMn/Ta (A8), Si/NiFe/FeMn/Ta (A11) e Si/FeMn/NiFe/Ta (A12).....	62
4.6 Curvas de histerese da amostra de Si/Cu/NiFe/FeMn, medidas aplicando o campo de varredura (A) no eixo fácil e (B) no eixo duro do filme.....	63
4.7 Curvas de histerese das amostras produzidas com diferentes <i>buffer</i> e substrato de Si(100).....	64
4.8 Curvas de histerese das amostras produzidas com diferentes <i>buffer</i> e substrato de Si(111).....	65
4.9 Curvas de histerese dos filmes de Si/Cu(t)/NiFe(30nm)/FeMn(15nm)/Ta onde t (a)60nm, (b)40nm e (c)20nm.....	66
4.10 Curvas de histerese das amostras produzidas com diferentes <i>buffer</i> e substrato de Si(100) tratados termicamente até $T=235^{\circ}\text{C}$ e resfriados na presença de um campo magnético de 5kOe.....	67
4.11 Curvas de histerese de amostras de FeMn/NiFe com diferentes <i>buffer</i> .....	69
4.12 Curvas de histerese das mesmas amostras da figura anterior, após realizarmos o procedimento FC.....	70
4.13 Valores experimentais de $H_{\text{exc}}$ em função da espessura da camada	71

ferromagnética.....	
4.14 Valores experimentais de $H_{exc}$ em função da espessura da camada antiferro - magnética.....	72
4.15 Curvas de histerese das amostras colocadas nas posições externas do porta- substrato.....	74
4.16 Curvas de histerese de amostras situadas na região central do porta-substrato	74
4.17 Curvas de histerese da amostra 20, medidas antes e após o procedimento FC.	75
4.18 Esquema das linhas de campo magnético na região do porta-substrato.....	76
4.19 Curvas de histerese correspondentes à amostra 4, irradiada com He a $T_{amb}$ , utilizando-se uma dose de $8 \times 10^{13}$ íons/cm <sup>2</sup> .....	78
4.20 Variação de $H_{exc}$ em função da dose de irradiação das amostras irradiadas com He a $T_{amb}$ .....	78
4.21 Variação de $H_{exc}$ em função da dose de irradiação das amostras irradiadas com He a $T_{LN}$ .....	79
4.22 Difratogramas das amostras de Si/Cu(20nm)/NiFe(10nm)/FeMn(10nm)/Ta (a) irradiada com He a $T_{LN}$ , (b) não irradiada e (c) irradiada com He a $T_{amb}$ ...	80
4.23 Primeiro pico do módulo das transformadas de Fourier das oscilações de EXAFS das amostras de Si(100)/Cu(20nm)/NiFe(10nm)/FeMn(10nm)/Ta (a) irradiada com He a $T_{LN}$ , (b) não irradiada e (c) irradiada com He a $T_{amb}$ .	81
4.24 Espectros de refletometria de raios-X das amostras de amostras de Si(100)/ Cu(20nm)/NiFe(10nm)/FeMn(10nm)/Ta(3nm) (a) não irradiada, (b) irra - diada com He a $T_{LN}$ e (c) irradiada com He a $T_{amb}$ .....	83
4.25 Curvas de histerese das amostras após o procedimento FC.....	86
4.26 Valor de $H_{exc}$ das amostras tratadas termicamente, em função da dose de irradiação.....	87
4.27 Valores de $H_{exc}$ em função da dose de irradiação dos filmes irradiados com He a $T_{amb}$ , medidos no ano 2003 (A) e no ano 2004 (B).....	88
4.28 Valores de $H_{exc}$ em função da dose de irradiação.....	89
4.29 Curvas de histerese das amostras irradiadas com diferentes doses de Ne.....	91

4.30	Variação de $H_{exc}$ em função da dose de irradiação das amostras irradiadas com Ne a $T_{amb}$ .....	92
4.31	Variação de $H_c$ em função da dose de irradiação das amostras irradiadas com Ne a $T_{amb}$ .....	92
4.32	Curvas de histerese das amostras irradiadas com Ne a $T_{LN}$ .....	93
4.33	Variação de $H_{exc}$ em função da dose de irradiação das amostras irradiadas com Ne a $T_{LN}$ .....	94
4.34	Variação de $H_c$ em função da dose de irradiação das amostras irradiadas com Ne a $T_{LN}$ .....	94
4.35	Transformadas de Fourier das oscilações de EXAFS das medidas de absorção de raios-X na borda do Mn das amostras irradiadas com He e Ne (a $T_{amb}$ e $T_{LN}$ ) e de uma amostra sem irradiação iônica.....	95
4.36	Curva de histerese de uma amostra depositada no centro do poro-substrato medida no VSM .....	98
4.37	Seqüência de 4 curvas de histerese locais da amostra 20. As curvas foram obtidas ao longo de uma linha reta com uma distância de $1\mu m$ entre elas.....	98

## Lista de tabelas

	pág
3.1 Parâmetros experimentais utilizados nas medidas de absorção de raios-X dos filmes de NiFe/FeMn.....	42
3.2 Lote de amostras produzidas para estudar o efeito do substrato e do <i>buffer</i> sobre o crescimento das bicamadas magnéticas.....	49
3.2 Lote de amostras variando-se a espessura do <i>buffer</i> de Cu.....	49
3.3 Lote de amostras variando-se a disposição da camada AFM.....	50
3.4 Características das amostras irradiadas com íons de He e Ne a $T_{LN}$ .....	52
3.4 Características das amostras irradiadas com íons de He e Ne a $T_{amb}$ .....	53
4.1 Valores de $H_{exc}$ e $H_c$ dos filmes de NiFe(30nm)/FeMn(15nm)/Ta(3nm), depositados sobre Si(100), Si(111) e <i>buffers</i> de Cu e Ta.....	65
4.2 Valores de $H_{exc}$ e $H_c$ das amostras com diferentes <i>buffers</i> tratados termicamente até $T=235^{\circ}C$ e resfriados na presença de um campo magnético de 5 kOe.....	66

# Capítulo 1

## Introdução

No presente trabalho estudamos sistemas que apresentam anisotropia de *exchange* como resultado do acoplamento via troca entre a camada ferromagnética (FM) e antiferromagnética (AFM). Os sistemas em estudo são bicamadas ferro/antiferromagnéticas, sendo a camada ferromagnética o *permalloy*  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$  e a camada antiferromagnética ligas de  $\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$ .

A anisotropia de *exchange*, denominada também anisotropia unidirecional, foi observada pela primeira vez em 1956, em partículas de cobalto, imersas no óxido do mesmo material (CoO), que é antiferromagnético [1,2]. Uma manifestação da anisotropia unidirecional é o deslocamento da curva de histerese da origem, por um campo denominado de *exchange* ( $H_{\text{exc}}$ ), quando o material é produzido na presença de um campo magnético externo que alinha a camada FM [3,4,5,6,7,8], ou resfriado na presença de um campo magnético externo [9,10]. Outro efeito macroscópico importante é o aumento da coercividade do ferromagneto.

Desde a descoberta do fenômeno de *exchange bias*, ele tem sido observado em diferentes sistemas constituídos de interfaces FM/AFM, tais como em pequenas partículas [3,11,12,13,14], materiais homogêneos [3,15], monocristais AFM sobre filmes FM [11,16] e filmes finos [5,17,18,19,20]. Em particular, o estudo de sistemas com anisotropia unidirecional em filmes finos de bicamadas FM/AFM teve maior interesse devido a seu potencial de aplicação em dispositivos magneto-eletrônicos

[21,22,23,24,79]. No entanto, apesar destes sistemas serem utilizados na indústria, o fenômeno de *exchange bias* continua apresentando desafios científicos. Tanto os efeitos microestruturais como magnéticos destes sistemas demonstram uma riqueza e complexidade que os tornam interessantes como objetos de investigações científicas.

Muitos materiais antiferromagnéticos são utilizados para a obtenção de sistemas com *exchange bias*, como por exemplo: óxidos (como NiO ou CoO), ou compostos antiferromagnéticos de Mn, tais como FeMn, NiMn, IrMn.

Como dito antes, dependendo do sistema FM/AFM a *exchange bias* é alcançado através de um dos seguintes procedimentos: pela deposição das bicamadas magnéticas na presença de um campo magnético externo, ou através de um tratamento térmico após a deposição do filme até acima da temperatura de Néel do antiferromagneto e resfriamento na presença de um campo externo<sup>1</sup>. Segundo a literatura este último procedimento é o mais adequado para a obtenção de sistemas com *exchange bias* com altos valores de  $H_{exc}$  [25].

Na primeira etapa do presente trabalho o objetivo foi estudar as propriedades magnéticas de filmes de NiFe/FeMn, produzidos através da técnica de *magnetron sputtering*. O *permalloy* Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub> é um ferromagneto de alta permeabilidade magnética, requisito primordial em sistemas com *exchange bias* e o Fe<sub>50</sub>Mn<sub>50</sub> é uma liga antiferromagnética estável à temperatura ambiente, de modo que o acoplamento de *exchange* nos sistemas Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>/Fe<sub>50</sub>Mn<sub>50</sub> é garantido sem precisar de processos externos complicados, como, por exemplo, tratamentos térmicos prolongados. Portanto, este sistema se mostrou adequado para o nosso estudo. Inicialmente produzimos e estudamos amostras de NiFe(30nm)/FeMn(15nm), depositados sobre substratos de Si(100) e Si(111) e *buffers*<sup>2</sup> de Cu e Ta.

Desta maneira, verificamos a influencia do *buffer* e/ou substrato sobre as propriedades magnéticas e estruturais deste sistema. A partir da caracterização magnética deste primeiro grupo de amostras de NiFe/FeMn, verificamos que todas elas apresentam

---

<sup>1</sup> Neste trabalho, o procedimento de tratar termicamente o filme até acima da temperatura de Néel do antiferromagneto e resfriá-lo na presença de um campo externo será denominado procedimento FC (*field cooling*).

anisotropia unidirecional, logo após a sua obtenção. Descobrimos que isto é possível devido à presença de um campo magnético de 15 Oe no porta-substrato, proveniente dos canhões do sistema de *sputtering* utilizado. No entanto, como dito anteriormente, segundo a literatura, o procedimento considerado mais adequado para a obtenção de *exchange bias* com altos valores de  $H_{exc}$  é o procedimento FC [25]. Neste contexto, realizamos este procedimento em todas as amostras estudadas inicialmente.

Posteriormente, estudamos a dependência das propriedades magnéticas das bicamadas em função da espessura e seqüência de deposição de cada camada magnética. Para isso, fabricamos amostras de NiFe/FeMn, variando a espessura tanto da camada ferromagnética como da camada antiferromagnética e amostras de FeMn(15nm)/NiFe(30nm), depositadas sobre *buffer* de Cu e Ta.

Nesta etapa do trabalho, estabelecemos o melhor procedimento para a obtenção de amostras com alto valor de  $H_{exc}$ , utilizando o sistema de *sputtering* do Laboratório de Materiais Magnéticos (LMM). Inclusive estabelecemos o substrato/*buffer* mais adequado para a obtenção de amostras com propriedades magnéticas e estruturais otimizadas e reproduzíveis.

Continuando, visando o melhor entendimento do acoplamento de *exchange*, estudamos o efeito das irradiações iônicas com íons de He e Ne sobre as propriedades magnéticas e estruturais de bicamadas de NiFe/FeMn. Como é bem sabido, a técnica das irradiações iônicas produz alterações microestruturais em filmes finos, trazendo como consequência mudanças nas propriedades elétricas e/ou magnéticas dos mesmos [26,27,28,29,30]. Em sistemas com *exchange bias*, as irradiações iônicas modificam o acoplamento de *exchange*, refletido no valor de  $H_{exc}$  [31,32,33,34,35]. Estas mudanças podem ser atribuídas a diferentes fatores, tanto de ordem magnética, como por exemplo, alteração do ordenamento magnético na interface, modificação das condições do *pinning* na interface, ou de ordem estrutural, tais como rugosidade, interdifusão e cristalinidade. Neste sentido, abordamos vários destes fatores através de diferentes técnicas de caracterização. Os filmes utilizados para este estudo foram amostras de Si(100)/Cu(20nm)/NiFe(10nm)/FeMn(10nm)/Ta(5nm), produzidas (simultaneamente) nas mesmas condições de deposição. As irradiações iônicas foram feitas utilizando-se

---

<sup>2</sup> Camada depositada entre o substrato e as bicamadas magnéticas (FM/AF)

íons de He e Ne com diferentes doses de irradiação, à temperatura ambiente ( $T_{amb}$ ) e à temperatura do nitrogênio líquido ( $T_{LN}$ ). Elas foram realizadas no Laboratório de Implantação Iônica da Universidade Federal do Rio Grande do Sul (UFRGS) com a colaboração do Professor Lívio Amaral.

Previamente às irradiações iônicas, várias das amostras produzidas em conjunto foram caracterizadas magneticamente. Observamos que  $H_{exc}$  e  $H_c$  de todas elas são aproximadamente 75 e 15 Oe, respectivamente. Porém, observamos diferenças nas curvas de histerese das amostras dependendo da sua localização no porta-substrato. Neste sentido, para entender melhor estes resultados, estudamos as propriedades de várias amostras produzidas em conjunto, depositadas em diferentes posições do porta-substrato.

A partir do estudo das suas propriedades magnéticas das amostras irradiadas ionicamente com He observamos que o valor de  $H_{exc}$  das amostras irradiadas com He à  $T_{amb}$  é maior em relação aos valores obtidos nas amostras irradiadas com He à  $T_{LN}$  e nas amostras não irradiadas<sup>3</sup>. Por outro lado, a partir do estudo estrutural destas amostras observamos que elas não apresentam mudanças estruturais de longo alcance. No entanto, encontramos diferentes comportamentos na sua estrutura fina. Observamos que as amostras irradiadas com He à  $T_{amb}$  apresentam maior desordem na sua estrutura fina comparado com as amostras irradiadas com He a  $T_{LN}$  e amostras não irradiadas. Levantamos como hipótese que devido ao próprio aquecimento da amostra as irradiações iônicas provocaram efeitos estruturais distintos. No caso das amostras irradiadas com He a  $T_{LN}$  foram criados defeitos pontuais bem localizados na rede cristalina. Este processo trouxe como consequência a acomodação dos átomos na rede cristalina, melhorando assim o ordenamento atômico da amostra como um todo. No caso das amostras irradiadas com He à  $T_{amb}$ , a temperatura permitiu a maior mobilidade dos átomos (difusão local) e a proximidade entre os átomos de ambas camadas magnéticas menor ordenamento estrutural local. Este comportamento ocasionou menor ordenamento estrutural local, mas, melhor ordenamento magnético.

Como era de se esperar, devido à grande quantidade de amostras em estudo e à disponibilidade dos equipamentos de medida, tanto a caracterização estrutural como a magnética de todos os filmes irradiados nos tomou um tempo considerável. Por esta

---

<sup>3</sup> O valor de  $H_{exc}$  de todos os filmes antes de serem irradiados é de aproximadamente 75 Oe.

razão, o procedimento de FC nas amostras de He foi feito em momentos diferentes. Logo após as irradiações iônicas, tratamos termicamente quatro das amostras irradiadas com diferentes doses de He a  $T_{amb}$ . Passados seis meses após as irradiações<sup>4</sup>, este procedimento foi feito no restante das amostras. No último caso, antes do tratamento térmico, caracterizamos magneticamente cada amostra. Para nossa surpresa, após esta caracterização, obtivemos um resultado inesperado. Observamos que o valor de  $H_{exc}$  aumentou em relação ao valor do campo de *exchange* das mesmas amostras caracterizadas logo após as irradiações iônicas. Como dito anteriormente, nos filmes irradiados a  $T_{amb}$  o efeito da temperatura permitiu a maior mobilidade dos átomos. As alterações nas distâncias interatômicas trouxeram como consequência um melhor ordenamento magnético. Assim, com o passar do tempo, a reorientação de spins continuou a minimizar a energia.

No caso das amostras irradiadas com Ne, observamos uma diminuição gradativa de  $H_{exc}$  e  $H_c$  à medida que aumentamos a dose de irradiação.

Em seguida são apresentados os tópicos abordados no presente trabalho:

No segundo capítulo é apresentada uma breve revisão teórica, incluindo a descrição do fenômeno de *exchange bias*, de alguns dos sistemas com *exchange bias* mais estudados e sua contribuição ao entendimento dos aspectos fundamentais do fenômeno, dos modelos teóricos mais relevantes e, sobretudo, considerando as contribuições mais recentes.

No capítulo 3 é apresentada a descrição das técnicas utilizadas para a produção e caracterização dos filmes em estudo, bem como a relação de filmes finos produzidos para o estudo do acoplamento de *exchange bias* e relatamos os procedimentos experimentais de cada estudo feito e suas respectivas motivações.

No capítulo 4 são apresentados os resultados de cada estudo realizado, citados a seguir:

- Estudo das propriedades estruturais e magnéticas dos filmes produzidos utilizando diferentes *buffer* e substratos.

---

<sup>4</sup> Seis meses foi o tempo empregado na caracterização magnética e estrutural de todas as amostras irradiadas com He à temperatura ambiente.

- Estudo do acoplamento de *exchange* em função da seqüência de deposição e espessura das camadas magnéticas.

Finalmente, no capítulo 5, apresentaremos a análise geral e as conclusões do presente trabalho.

## Capítulo 2

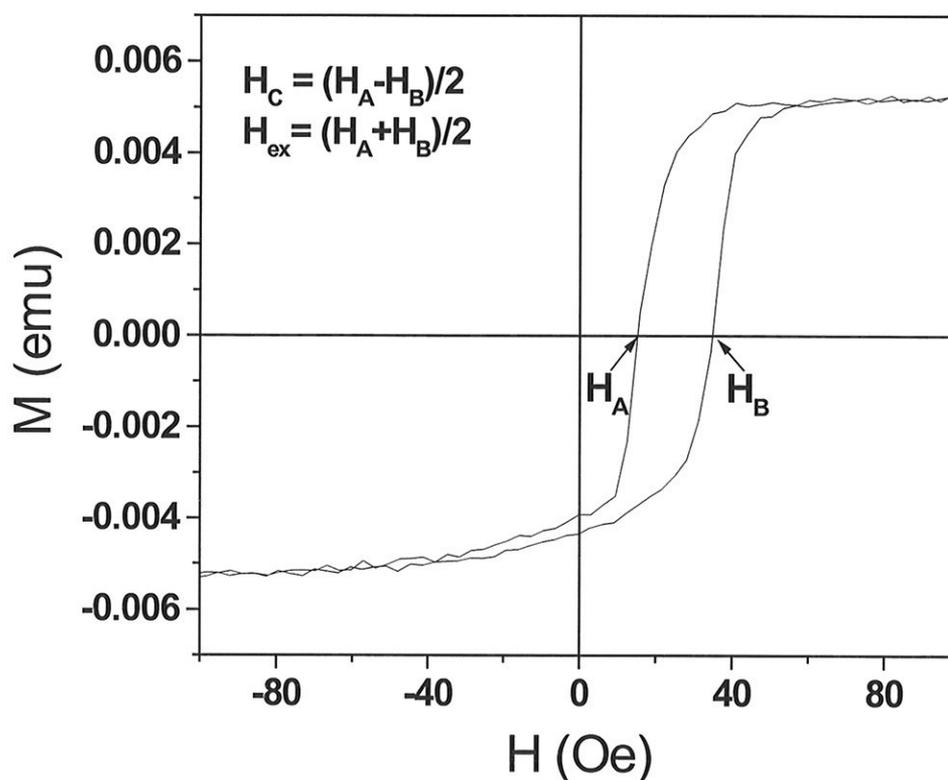
### Revisão teórica

#### 2.1 O fenômeno do *exchange bias*

O fenômeno do *exchange bias* consiste no acoplamento via troca de um material ferromagnético com outro antiferromagnético. O resultado deste acoplamento é uma curva de histerese deslocada da origem por um campo denominado campo de *exchange* ( $H_{exc}$ ) (vide figura 2.1). Este fenômeno foi descoberto em 1956 por Meiklejohn e Bean [1]. Estes autores explicaram a origem do fenômeno em termos de uma anisotropia forte no antiferromagneto e um acoplamento mais fraco de troca através da interface ferro/antiferromagnética (FM/AF). Por outro lado, fatores que influenciam no acoplamento tais como: a configuração magnética de spin na interface FM/AFM e a desordem interfacial originada por fatores como rugosidade, variação de cristalinidade (textura e parâmetro de rede) ou tamanho de grão são mais complexas do que originalmente imaginadas. Além disso, cálculos mostram que o valor do campo de deslocamento é quase duas ordens de grandeza maior do que os valores encontrados experimentalmente [1,2], sendo esta discrepância justificada em termos de rugosidade interfacial [7,17,36,37,67,68,69,70] ou pela formação de domínios [71,72]. Contudo, ambas as justificativas não foram totalmente esclarecidas até o momento.

Desde sua descoberta a compreensão do fenômeno do *exchange bias* apresenta inúmeros desafios científicos. Além disso, desde a descoberta do dispositivo denominado *spin valve* [73], este fenômeno passou a ser de interesse tecnológico. O *spin valve* é um

dispositivo constituído de várias camadas, utilizado como sensor de campos magnéticos nos cabeçotes de gravação magnética, sendo que duas destas camadas correspondem ao um sistema FM/AFM com *exchange bias*. Portanto, o progresso enorme verificado na última década em aumentar a densidade de informações em discos rígidos resultou principalmente do desenvolvimento de cabeças de leitura empregando *spin valves* [10]. Por conseguinte, o interesse de sistemas com *exchange bias* aumentou, tanto como objeto de investigação científica, como na busca da melhora das propriedades magnéticas destes sistemas. Neste sentido, se procura sistemas com *exchange bias* que possuam os principais fatores que determinam a qualidade de um *spin valve*: alto valor do campo de *exchange bias*, resistência à corrosão e, sobretudo, uma boa estabilidade térmica.



*Figura 2.1 : Curva de histerese de uma amostra de um sistema com exchange bias.*

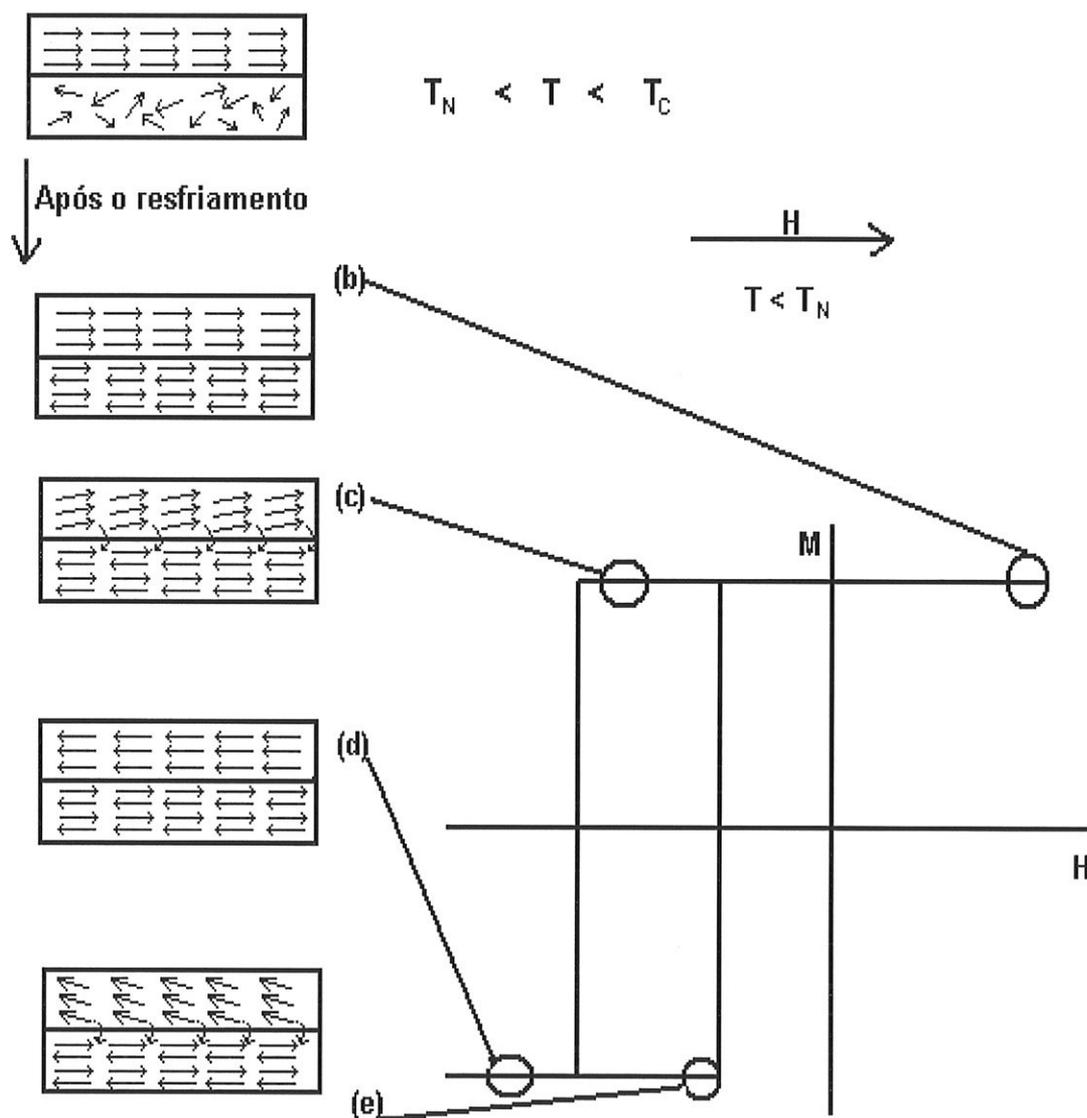
### Descrição da interação de *exchange*

Na maioria de sistemas FM/AFM, o acoplamento interfacial devido à anisotropia de *exchange* é observada resfriando as bicamadas magnéticas FM/AFM na presença de um campo magnético estático desde uma temperatura acima da temperatura de Néel do antiferromagneto ( $T_N$ ) e abaixo da temperatura de Curie do ferromagneto ( $T_c$ ). A curva de histerese do sistema após este procedimento é deslocada geralmente na direção contrária ao campo de resfriamento. Para o melhor entendimento do caráter unidirecional da anisotropia de *exchange* estudaram-se curvas de torque e da energia de rotação de um disco de partículas de cobalto imersas no óxido do mesmo elemento [1,2]. Foi observado que o torque é proporcional ao  $\sin\theta$  e não ao  $\sin 2\theta$ , como é visto em materiais que apresentam anisotropia uniaxial [1]. Além disso, foi observado que a energia em função do ângulo de rotação ( $\theta$ ) apresenta somente um mínimo absoluto e não dois mínimos separados de  $180^\circ$ , também característica da anisotropia uniaxial [1]. Portanto, foi mostrado que a anisotropia de *exchange* é um novo tipo de anisotropia magnética denominada anisotropia unidirecional [1,2]. Em seguida, será ilustrado o mecanismo da anisotropia unidirecional assumindo a interação de *exchange* em uma interface ideal FM/AFM com rotação coerente de magnetização, onde se considera que  $K_{AFM}$  (anisotropia da camada AFM) cresce indefinidamente,  $K_{FM}$  (anisotropia da camada FM) tende a zero e  $J_{int}$  (constante de troca interfacial) maior que zero.

Quando o material é aquecido até uma temperatura  $T$ ,  $T_N < T < T_c$ , na presença de um campo magnético externo ( $H_r$ ), os spin do material ferromagnético são alinhados na direção do campo externo, enquanto que a camada antiferromagnética passará a ser paramagnética, como é mostrado na figura 2.2a. Se resfriarmos o sistema, ainda na presença do campo externo  $H_r$ , até uma temperatura  $T < T_b$  e  $T \ll T_N$ , onde  $T_b$  [1,2] é a temperatura crítica chamada temperatura de bloqueio, acima da qual o  $H_{exc}$  é zero, e realizarmos uma medida de  $M$ . vs  $H$ , se observará que:

i) Na saturação, novamente teremos a camada antiferromagnética e a camada ferromagnética alinhada na direção do campo de medida ( $H > M_s$  do ferromagneto). Estas duas camadas estarão acopladas via troca, de modo que os spins da camada antiferromagnética na interface estarão alinhados ferromagneticamente ou antiferromagneticamente, como é ilustrado na figura 2.2b.

ii) Ao inverter-se o campo de medida ( $H$ ), os spins da camada ferromagnética começarão a inverter, enquanto que, os spins da camada antiferromagnética permanecerão inalterados. Nesta condição, devido ao acoplamento de troca na interface FM/AFM, os spins da camada AFM exercerão um torque sobre os spins da camada FM, retardando a rotação deles da sua posição original, como é visto na figura 2.2c, e trazendo como consequência o deslocamento da curva de histerese com relação à origem. Assim, para que ocorra a inversão completa dos spins da camada FM será necessário um campo de inversão maior que o torque exercido pela interação interfacial (vide figura 2.2d).



**Figura 2.2 :** Ilustração do mecanismo da anisotropia unidirecional assumindo a interação de exchange em uma interface ideal FM/AFM.

Por outro lado, uma vez invertida a camada FM, um pequeno campo em sentido contrário fará com que os spins da camada FM se alinhem novamente na direção dos spins da interface da camada AFM devido à interação via troca entre as camadas FM/AFM, como é visto na figura 2.2e.

Esta descrição da interação de *exchange* nos proporciona uma idéia do que aconteceria em uma interface FM/AFM “ideal” acoplada. No entanto, sabe-se que a região interfacial do acoplamento de *exchange* em filmes finos é muito complexa e envolve uma série de fatores que dificultam o seu entendimento.

## 2.2 Sistemas com *exchange bias*

O fenômeno de *exchange bias* foi observado pela primeira vez em um sistema de pequenas partículas. Este sistema consiste em nanopartículas de cobalto imersas no seu próprio óxido, o qual é antiferromagnético. Posteriormente, o fenômeno de *exchange bias* foi observado em vários outros sistemas produzidos através de diferentes técnicas. Nesta seção, serão descritos alguns dos sistemas com *exchange bias* mais estudados e sua contribuição no entendimento dos aspectos fundamentais do fenômeno. Estes sistemas serão divididos segundo o antiferromagneto utilizado em: óxidos antiferromagnéticos, antiferromagnetos metálicos e outros antiferromagnetos.

### 2.2.1 Sistemas formados de óxidos antiferromagnéticos

Como mencionado anteriormente, nanopartículas de cobalto imersas no seu próprio óxido CoO (antiferromagnético), apresentam anisotropia unidirecional. Este sistema de pequenas partículas tem sido estudado extensamente, sendo produzido através de diferentes técnicas de fabricação como eletrodeposição e *mechanicall alloying*. Posteriormente foram estudados sistemas similares a este, tais como Ni-NiO [39], Fe-FeO [40], Fe-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> [41], etc.

De maneira geral, os sistemas de pequenas partículas acoplados por *exchange* apresentam um incremento considerável no valor da coercividade do ferromagneto e baixos valores de  $H_{exc}$ , com exceção dos sistemas de Co-CoO. Além disso, existem várias dificuldades em estudar aspectos fundamentais do mecanismo de *exchange* nestes

sistemas, sendo uma das maiores dificuldades a localização da região interfacial FM/AFM. Portanto, não é possível determinar parâmetros que influenciam no acoplamento como: distribuição do tamanho e formato das partículas, estado de aglomeração das partículas, estequiometria e cristalinidade do AFM.

Como já dito anteriormente, os sistemas de pequenas partículas de Co/CoO apresentam altos valores de  $H_{exc}$ , inclusive em forma de filmes finos, contudo eles apresentam baixa estabilidade térmica ( $T_N < T_{amb}$ ).

Grupos de pesquisa também vêm estudando sistemas com *exchange bias* denominados monocristais antiferromagnéticos cobertos. Estes sistemas são obtidos a partir de monocristais antiferromagnéticos polidos ao longo de uma direção cristalográfica específica e cobertos por um material ferromagnético. Os monocristais antiferromagnéticos estudados foram CoO e NiO cobertos com diferentes materiais ferromagnéticos [12,42,43,44]. Acreditava-se que, devido ao melhor ordenamento estrutural do material, através deste método, estes materiais apresentariam maior valor de  $H_{exc}$ . No entanto, contrariamente ao esperado, foi observado que no caso de sistemas monocristalinos de CoO-FM o valor de  $H_{exc}$  é muito menor comparado com o valor de campo de *exchange* de sistemas de pequenas partículas com a mesma composição. Além disso, foi visto que em vários sistemas monocristalinos o valor de  $H_{exc}$  aumenta naqueles que apresentam maior rugosidade interfacial. Várias explicações foram dadas para este resultado, sendo uma delas que a rugosidade tornaria a superfície do AFM compensado em não compensado [62].

Outro resultado observado em alguns sistemas monocristalinos cobertos foi que os momentos da camada ferromagnética se orientam perpendicularmente à direção da anisotropia da camada antiferromagnética. Neste caso, este resultado sugeriu a fraca dependência do valor de  $H_{exc}$  com a configuração de spins da camada AFM [45,46].

### 2.2.2 Sistemas formados de antiferromagnetos metálicos

Materiais apresentando *exchange bias* em forma de filmes finos, constituídos de um antiferromagneto metálico acoplado via troca a uma camada ferromagnética são os sistemas mais estudados, devido à riqueza de informação que eles proporcionam e a sua utilização tecnológica.

Em 1964, foi anunciada a descoberta do primeiro sistema FM/AFM completamente metálico com anisotropia unidirecional [47]. Este sistema era uma bicamada de  $\text{Fe}_{20}\text{Ni}_{80}/\text{Mn}$ , a qual tinha que ser tratada termicamente para formar o antiferromagneto  $\text{Fe}_x\text{Ni}_y\text{Mn}_{1-x-y}$ . Este filme possuía alto valor de  $H_{\text{exc}}$  e, sobretudo, uma alta temperatura de bloqueio (de  $25^\circ\text{C}$ ), fator importante nas aplicações tecnológicas. Mais importante, este filme deu origem à descoberta de um dos antiferromagnetos mais utilizados em sistemas com *exchange bias*, o AFM  $\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$  [20]. Esta liga antiferromagnética possui uma temperatura de Néel ( $\sim 230^\circ\text{C}$ ) e uma temperatura de bloqueio ( $150^\circ\text{C}$ ). Em seguida, o antiferromagneto  $\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$  se tornou base de dispositivos GMR *spin valve* até hoje.

Um grande número de pesquisadores têm estudado as propriedades físicas do AFM  $\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$ , bem como o processo de fabricação de sistemas FM/ $\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$ , a fim de maximizar as qualidades dos mesmos. Isto porque, apesar da viabilidade comercial destes sistemas, o  $\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$  possui baixa resistência à corrosão. Além disso, estes sistemas são utilizados como objeto de estudo de aspectos básicos do fenômeno de *exchange bias*. O composto  $\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$  é uma liga antiferromagnética estável, de modo que o acoplamento de *exchange* nos sistemas FM/ $\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$  é garantido sem precisar de processos externos complicados, como, por exemplo, tratamentos térmicos prolongados.

Posteriormente, outros antiferromagnetos metálicos, baseados em ligas que contém Mn, foram fabricados, tais como: IrMn, PdMn, PtMn e NiMn. Atualmente, o estudo do sistema  $\text{Ni}_{50}\text{Mn}_{50}$  tem um interesse especial, pois as bicamadas FM/ $\text{Ni}_{50}\text{Mn}_{50}$  apresentam  $H_{\text{exc}}$  de aproximadamente 650 Oe, o maior valor já observado neste tipo de sistema. Além disso, apresentam uma temperatura de bloqueio de  $410^\circ\text{C}$ , um valor que confere uma grande estabilidade térmica a dispositivos empregados em *spin valve* de unidades de disco rígido.

Como mencionado acima, do ponto de vista tecnológico, os filmes finos metálicos apresentam os mais altos valores de  $H_{\text{exc}}$ , sendo utilizados em sensores de campo magnético e memórias magnetoresistivas. Contudo, sistemas que vêm sendo utilizados na indústria (como FM/ $\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$ ) apresentam baixa resistência à corrosão e a liga promissora  $\text{Ni}_{50}\text{Mn}_{50}$  precisa de um tratamento térmico prolongado para estabilizar na fase antiferromagnética desejada. Neste sentido, o estudo do acoplamento de *exchange*

em filmes finos possibilita a otimização das suas propriedades magnéticas através do controle e/ou manipulação dos parâmetros de produção e métodos alternativos como as irradiações iônicas. Possibilita também a busca de novos antiferromagnetos metálicos com altos valores de  $T_N$  e boa resistência à corrosão. As expectativas estão sendo colocadas em liga de  $Cr_xMn_yM_{1-x-y}$  ( $M=Pt, Rh, Cu, Pd, Ir, Ni, Co, Ti$ ) [20,47,48,49,50,51,52,53] e  $Pd_xPt_yMn_{1-x-y}$  [54,55].

Do ponto de vista da pesquisa básica, os filmes finos metálicos possuem uma característica que os tornam o sistema mais apropriado para o estudo do fenômeno de *exchange*. Eles apresentam uma região interfacial FM/AFM bem definida. Esta característica facilita o estudo das suas propriedades magnéticas e estruturais a fim de extrair informações relevantes sobre o acoplamento de *exchange*.

### 2.2.3 Sistemas formados por outros antiferromagnetos

Outros sistemas com *exchange bias* são formados por ferrimagnetos acoplados a um material ferromagnético. Neste tipo de sistemas, devido à estrutura magnética do ferrimagneto, ele pode apresentar configuração AFM ou FM. Os sistemas FM-ferrimagnetos mais estudados são:  $Fe_{20}Ni_{80}-TbCo$  [56],  $Fe_{20}Ni_{80}-DyCo$  [57],  $Fe_{20}Ni_{80}-TbFe$  [58],  $Fe-Fe_3O_4$  [59],  $NiO-Fe_3O_4$  [60] e  $CoO-Fe_3O_4$  [61].

Entre os sistemas formados por monocristais antiferromagnéticos cobertos, dois AFM têm sido amplamente estudados:  $FeF_2$  [62] e  $MnFe_2$  [63]. Estes materiais apresentam uma estrutura de spin não muito complexa que facilita o estudo do mecanismo do acoplamento.

Entre os sistemas de pequenas partículas com *exchange bias* podemos citar combinações de materiais como nitretos  $Fe-Fe_2N$  [64] e  $Co-CoN$  [65] e sulfatos  $Fe-FeS$  [66,67]. Estes sistemas apresentam o fenômeno de *exchange* no intervalo de temperatura de 4 a 10K.

Também existe um grupo de materiais que apresentam interfaces acopladas via troca de forma completamente aleatória. Estes sistemas são denominados sistemas não homogêneos. Neste grupo podemos citar spin glasses com *exchange bias* [68,69].

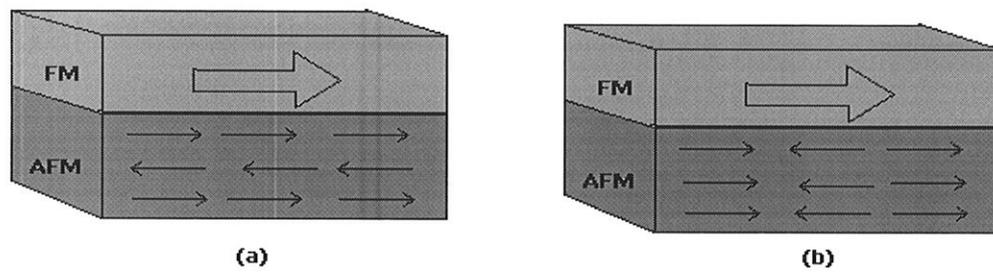
## 2.3 Modelos teóricos

O entendimento teórico do fenômeno de *exchange bias* vem sendo um desafio para um grande número de pesquisadores. Como mencionado anteriormente, principalmente na última década, o interesse na compreensão do fenômeno tem sido acentuado devido a sua importância nas aplicações tecnológicas. Neste contexto, a finalidade dos modelos teóricos tem sido descrever: o mecanismo de *exchange bias*, razões da anisotropia unidirecional, a relação entre o valor de  $H_{exc}$  e  $H_c$  em função da temperatura e do campo de resfriamento, a compreensão do  $H_{exc}$  devido à configuração de spins na interface, o efeito da rugosidade no valor de  $H_{exc}$ , a origem da assimetria da curva de histerese e explicar os efeitos de memória relacionados à temperatura de bloqueio. Nesta seção, devido ao grande número de modelos existentes, somente serão apresentados os modelos teóricos mais relevantes sobre o fenômeno de *exchange bias*, sobretudo considerando as contribuições mais recentes.

Por outro lado, como é sabido, todo modelo teórico estabelece determinadas condições de ordem estrutural e magnética. No caso dos modelos de *exchange bias* não é diferente e inclusive foram adotadas novas terminologias referentes à configuração de spins da camada antiferromagnética. Portanto, primeiramente definiremos algumas terminologias mais utilizadas nos modelos teóricos, que também serão utilizadas nos próximos textos.

**Interface não compensada:** Este termo refere-se ao arranjo magnético dos spins da camada antiferromagnética, onde se assume que o antiferromagneto é composto por planos atômicos de spins, onde a primeira camada AFM apresenta alinhamento paralelo, orientado ferromagneticamente com a camada FM, como é mostrado na figura 2.3a.

**Interface compensada:** Em uma interface compensada assume-se que a camada antiferromagnética apresenta spins com sub-redes orientadas em direções opostas, como é mostrado na figura 2.3b.



**Figura 2.3 :** Diagrama esquemático de uma interface (a) não compensada e (b) compensada.

### 2.3.1 Modelos iniciais

O primeiro modelo com o intuito de explicar a origem do acoplamento de *exchange bias* foi apresentado por Meiklejohn e Bean no ano de 1956 [1,2]. Este modelo assume o acoplamento através de uma interface ideal. Ambas as camadas, ferromagnética (FM) e antiferromagnética (AFM), são monocristalinas e epitaxiais na interface. Neste modelo, se assume que a camada antiferromagnética é completamente não. Também assume-se que durante a inversão da magnetização do FM, os spins do FM rotacionam coerentemente, enquanto que os spins da camada AFM permanecem fixos. A energia por unidade de área de um sistema com *exchange bias* é dada pela seguinte expressão:

$$E = -HM_{FM}t_{FM} \cos(\theta - \beta) + K_{FM}t_{FM} \sin^2(\beta) + K_{AFM}t_{AFM} \sin^2(\alpha) - J_{FM/AFM} \cos(\beta - \alpha), \quad (2.1)$$

onde  $E$  é a energia do sistema por unidade de área,  $H$  é o campo magnético aplicado,  $M_{FM}$ ,  $t_{FM}$  e  $K_{FM}$  são a magnetização de saturação, espessura e anisotropia da camada ferromagnética respectivamente,  $t_{AFM}$  e  $K_{AFM}$  são a espessura e anisotropia da camada antiferromagnética,  $J_{FM/AFM}$  é a constante de troca interfacial,  $\beta$  é o ângulo entre  $M_{FM}$  e o eixo de anisotropia da camada ferromagnética,  $\theta$  é o ângulo entre  $H$  e o eixo de anisotropia da camada ferromagnética e  $\alpha$  é o ângulo entre  $M_{AFM}$  e o eixo de anisotropia da camada antiferromagnética.

O primeiro termo da equação (2.1) é a energia de Zeeman, o segundo e terceiro termo são a energia de anisotropia da camada FM e AFM respectivamente, e o quarto termo corresponde à energia de troca devido à interação FM/AFM.

Desprezando a anisotropia da camada ferromagnética, que neste caso é considerada muito menor que  $K_{AFM}$  e minimizando a energia com relação a  $\alpha$  e  $\beta$  a fórmula fenomenológica do campo de *exchange* obtida por Meiklejohn e Bean é:

$$H_{exc} = J_{FM/AFM} / a M_{FM} t_{FM}, \quad (2.2)$$

onde  $a$  é o parâmetro de rede do sistema. Portanto, a ordem de magnitude de  $H_{exc}$  depende do parâmetro  $J_{FM/AFM}$ .

Assumindo parâmetros experimentais de  $M_{FM}$  e  $t_{FM}$ , o valor de  $H_{exc}$ , calculado no caso de filmes AFM monocristalinos e policristalinos de todos os tipos, é quase duas ordens de grandeza maior do que valores encontrados experimentalmente, sendo esta estimativa do valor de  $H_{exc}$  a mesma em todos os modelos teóricos iniciais apresentados.

### 2.3.2 Modelo de Néel

Um ano após a descoberta do fenômeno do *exchange bias*, Néel apresentou um novo modelo teórico [70]. No seu modelo, Néel assume uma interface onde a camada AFM não compensada está fracamente acoplada à camada ferromagnética devido a rugosidade interfacial. Esta rugosidade interfacial causaria a compensação parcial de alguns momentos antiferromagnéticos, os quais deixariam de contribuir para o acoplamento de *exchange*, reduzindo assim o valor de  $H_{exc}$ . Considerando a magnetização ( $m_i$ ) de uma camada AFM uniforme e paralela à interface e o parâmetro de rede “a” igual a 1, minimizando a energia com relação a  $m_i$ , Néel chegou à seguinte expressão:

$$J_{FM/AFM} S^2 [1/2 \text{sen}(\theta_{i+1} - \theta_i) + 1/2 \text{sen}(\theta_{i-1} - \theta_i)] - 2K_{AFM} \text{sen}(\theta_i) = 0, \quad (2.3)$$

onde  $\theta_i$  é o ângulo entre  $m_i$  e o eixo de fácil magnetização e  $J_{FM/AFM}$  e  $K_{AFM}$  os parâmetros definidos na equação (2.1). Resolvendo a equação (2.3) para valores específicos de  $J_{FM/AFM}$  e  $K_{AFM}$ , assumindo anisotropia uniaxial, Néel descreveu o perfil da magnetização. Por outro lado, este modelo somente é válido assumindo condições específicas como: camadas FM e AFM muito finas e rugosidade em ambas as camadas magnéticas.

### 2.3.3 Modelo de paredes de domínio antiferromagnéticos

Vinte anos após a publicação de Néel, Malozemoff propôs outro modelo para a explicação do valor experimental de  $H_{exc}$  [71,72]. Neste modelo assume-se a presença de domínios AFM perpendiculares na interface FM/AFM, onde a camada AFM pode ser compensada ou não compensada. O autor justifica a formação dos domínios devido a defeitos interfaciais como, por exemplo, a rugosidade interfacial.

Segundo Malozemoff, os domínios dão origem a um campo magnético denominado campo aleatório que interfere no acoplamento diminuindo a energia interfacial e, portanto, o campo de acoplamento. O argumento do campo aleatório, utilizado por Malozemoff, é análogo ao problema do campo aleatório de Imry-Ma [80]. A expressão de  $H_{exc}$  dada neste modelo é:

$$H_{exc} = \frac{(2\sqrt{(J_{AFM} K_{AFM})/a})}{M_{FM} t_{FM}}. \quad (2.4)$$

Apesar do sucesso na estimativa do valor de  $H_{exc}$  através deste modelo, ele depende de uma grande concentração de defeitos interfaciais que não são consistentes com os resultados experimentais obtidos. No entanto, este modelo serviu de base para outros modelos teóricos e mais recentemente ele foi reformulado por Schulthess e Butler, que obtiveram resultados interessantes que serão apresentados mais adiante.

Após o modelo de Malozemoff, foi anunciado um novo modelo teórico assumindo a formação de uma parede de domínio antiferromagnética na interface FM/AFM [73]. Segundo este modelo, durante a aplicação de um campo externo, os momentos de uma fina camada AFM interfacial se deslocariam acompanhando os spins da camada ferromagnética. Esta fina camada AFM seria da ordem de uma parede de domínio, cuja energia reduziria a energia interfacial e, portanto, o valor de  $H_{exc}$ . Segundo este modelo o valor do campo de *exchange* obtido é similar à expressão (2.4).

### 2.3.4 Modelo de redes magnéticas FM e AFM perpendiculares

Em 1997, Koon apresentou uma explicação macroscópica para o fenômeno de *exchange* em filmes finos com interfaces compensadas, através de cálculos micromagnéticos [74]. Segundo Koon, estes cálculos mostraram que o acoplamento de

*exchange* interfacial é relativamente forte em interfaces que apresentam momentos FM orientados perpendicularmente ao eixo de fácil magnetização do AFM, de maneira similar ao estado clássico “spin-flop” dos *bulk* antiferromagnéticos.

Em resumo, segundo este modelo, interfaces compensadas são favoráveis para que ocorra o acoplamento via troca sendo o papel da rugosidade interfacial de reduzir as frustrações presentes na interface, reduzindo assim o valor de  $H_{exc}$ . Este modelo estabeleceu estruturas magnéticas interfaciais mais próximas de um sistema real. Além disso, foi capaz de modelar curvas de magnetização irreversíveis.

### 2.3.5 Segundo modelo de campo aleatório

Como descrito acima, Malozemoff, através do seu modelo, conseguiu estimar com sucesso o valor de  $H_{exc}$ . Koon modelou curvas de magnetização irreversíveis, típicas de sistemas com anisotropia unidirecional. Schulthess e Butler [75] anunciaram um novo modelo combinando as considerações levantadas por Malozemoff e por Koon. Estes autores estudaram interfaces compensadas que apresentam domínios AFM nas mesmas condições assumidas no modelo proposto por Malozemoff. Neste modelo, Schulthess e Butler consideraram um termo adicional na equação da energia interfacial, a interação dipolar.

Os resultados obtidos foram valores de  $H_{exc}$  e  $H_c$  comparáveis aos valores observados experimentalmente em sistemas CoO/FM (FM: Co e  $Ni_{19}Fe_{81}$ )[81]. Neste modelo, os resultados quantitativos de  $H_{exc}$  também dependem da natureza e concentração de defeitos na interface.

## 2.4 Irradiações iônicas

A técnica das irradiações iônicas é uma ferramenta utilizada para modificar propriedades estruturais em uma variedade de materiais. Dependendo da massa do íon utilizado nas irradiações, da energia e da dosagem de irradiação, as irradiações iônicas produzem modificações permanentes na estrutura do material, induzindo mudança nas propriedades elétricas e magnéticas dos mesmos. Por exemplo, foi observado que o valor da coercividade [82,83] e a direção da anisotropia [84] de filmes de *permalloy* são alterados devido às irradiações iônicas. Também foi mostrado que as irradiações iônicas

com diferentes espécimes modificam a anisotropia perpendicular interfacial de filmes constituídos de multicamadas de Co/Pt [27]. Neste sistema, as irradiações iônicas produzem alterações estruturais, de modo que a anisotropia perpendicular interfacial é reduzida e a inversão da magnetização é governada pela anisotropia de forma, mudando a direção de fácil magnetização de perpendicular para planar.

No caso de sistemas com *exchange bias*, o efeito das irradiações iônicas, utilizando diferentes íons e condições de deposição, resultou na modificação, em magnitude e sentido, do valor de  $H_{exc}$  [31,32, 85, 86, 87, 88]. Inclusive, em sistemas irradiados com He foi possível controlar o valor de  $H_{exc}$  ajustando parâmetros de irradiação como a dose e voltagem de aceleração [31,32].

Neste contexto, o uso da técnica das irradiações iônicas em sistemas com *exchange bias* constitui uma alternativa para o estudo do acoplamento magnético FM/AFM e para a manipulação do campo de *exchange*.

## 2.5 Síntese

Como pudemos observar, todos os modelos teóricos apresentados até o momento partem de sistemas simples, considerando condições ideais tais como bicamadas FM/AFM crescidas epitaxialmente e bem ordenadas atômica e magneticamente. Em quase todos os casos, assume-se spins AFM paralelos a uma interface plana. Todos eles consideram estruturas magnéticas e cristalográficas bem conhecidas na interface AF/AFM e na sua vizinhança.

Contudo, já foi estabelecido experimentalmente que vários antiferromagnetos, quando acoplados a um material FM, apresentam uma estrutura de spins completamente diferente do *bulk* AFM [89]. Além disso, foi relatado que a desordem interfacial origina comportamentos inesperados tanto na coercividade como no valor de  $H_{exc}$ . Assim, por exemplo, em sistemas Fe/FeF<sub>2</sub> [62] a rugosidade aumenta o valor de  $H_{exc}$  e em sistemas Fe/MnFe<sub>2</sub> [63] ocorre o contrário.

Neste contexto, é pertinente ressaltar que a região interfacial onde ocorre o acoplamento de *exchange bias* é muito complexa experimentalmente e está longe de ser entendida teoricamente.

## Capítulo 3

### Parte experimental

Neste capítulo apresentamos as técnicas experimentais utilizadas para a produção e caracterização magnética e estrutural dos filmes finos estudados. Além disso, apresentamos os procedimentos experimentais desenvolvidos neste trabalho. Descrevemos detalhadamente a técnica de produção por *magnetron sputtering*, utilizada na fabricação das amostras. Apresentamos a descrição das técnicas de difração, refletometria e absorção de raios-x, utilizadas para a caracterização estrutural dos filmes, e da técnica de magnetometria MAV e do SNOM, utilizadas na caracterização magnética das mesmas. Também será descrito o método das irradiações iônicas, ferramenta utilizada para estudar as modificações estruturais e magnéticas provocadas no acoplamento de *exchange bias*.

#### 3.1 Técnicas experimentais

Diversas são as técnicas utilizadas na produção de filmes magnéticos, entre elas podemos citar: evaporação resistiva, eletrodeposição, evaporação por feixe de elétrons (EB), epitaxia de feixe molecular (MBE) e *sputtering*. Cada uma delas tem interesse específico e produz filmes com características consideravelmente diferentes umas das outras.

No presente trabalho, as amostras foram produzidas através da técnica de *magnetron sputtering*, utilizando o sistema de *sputtering* do laboratório de materiais magnéticos, como descrito na próxima seção.

### 3.1.1 Técnica de *magnetron sputtering*

Na técnica de *sputtering*, os filmes são formados quando átomos são removidos de um alvo e depositados sobre um substrato. O processo de *sputtering* inicia-se com a introdução de um gás em uma câmara de vácuo, que contém o substrato e o alvo que será depositado. O gás introduzido é ionizado e o alvo mantido em um potencial negativo. Desta maneira, os íons do gás são atraídos para o alvo, colidindo com este com energia suficiente para remover átomos do material do alvo, os quais saem em todas as direções.

Dependendo da montagem experimental do sistema de *sputtering* utilizado, a técnica de *sputtering* recebe as seguintes nomenclaturas: diodo *sputtering* DC, diodo *sputtering* RF ou *magnetron sputtering*. As fontes *magnetron sputtering* possuem um arranjo experimental constituído por ímãs distribuídos no cátodo. Este arranjo experimental permite a utilização de alvos de materiais magnéticos e isolantes.

No caso das nossas amostras, todas elas foram produzidas através da técnica de *magnetron sputtering*. Esta técnica permite um controle adequado dos parâmetros de deposição que influem diretamente nas propriedades físicas dos filmes. Por esta razão, através desta técnica é possível a obtenção de filmes homogêneos, reprodutíveis e com bom controle de espessura.

No laboratório de materiais magnéticos, o equipamento de *sputtering* é de modelo ATC-2000 fabricado por AJA International Inc. Ele é constituído por quatro fontes *magnetron sputtering* (canhões) que permitem a utilização de dois tipos de fontes: DC (corrente contínua) e RF (radio frequência). A fonte DC é normalmente utilizada para a deposição de materiais metálicos e a fonte RF é utilizada para a deposição de materiais isolantes. No presente trabalho, a produção das amostras foi feita utilizando-se a fonte de corrente contínua (DC).

O equipamento de *sputtering* utilizado é ilustrado na figura 3.1. Ele é composto por uma câmara principal, uma ante-câmara, dois sistemas de vácuo, sistemas de injeção de gases, um painel de controle elétrico e pneumático e fontes de alimentação. A câmara

principal é um cilindro de 17” de altura e 20” de diâmetro interno, com uma capacidade de aproximadamente 90 litros.



*Figura 3.1 :Fotografia do sistema de sputtering utilizado na produção das amostras.*

No interior da câmara principal encontram-se quatro canhões *magnetron sputtering*, onde são montados os alvos e os obturadores que protegem os alvos que não são utilizados durante a deposição. Dois destes canhões apresentam uma configuração de ímãs que permite a utilização de alvos magnéticos. Próximo a cada um dos canhões encontra-se a entrada do gás utilizado no processo de plasma. A injeção do gás é feita diretamente sobre o alvo através de um controlador automático de fluxo (fluxômetro). Em nosso caso, no processo de plasma o gás injetado foi o argônio (com pureza de N60), controlado por um fluxômetro de massa modelo 1179<sup>a</sup> MKS.

Na tampa da câmara principal é montado um cabeçote removível, onde é fixado o porta-substrato. O nosso sistema de *sputtering* possui dois cabeçotes. Um deles possui um sistema de resfriamento para manter o porta-substrato à temperatura do nitrogênio

líquido. O outro cabeçote possui duas lâmpadas capazes de aquecer o porta-substrato até uma temperatura de aproximadamente 870 K. O porta-substrato consta de duas peças metálicas, sendo a primeira peça um disco metálico, liso em um dos seus lados. A segunda peça é outro disco que possui seis alvéolos, onde são posicionados os substratos, e três janelas presas ao eixo do disco. Estas janelas servem para cobrir os substratos que não são utilizados durante a deposição. Durante o processo de *sputtering*, o cabeçote onde é fixo o porta-substrato gira com uma velocidade de aproximadamente 20 rpm, com a finalidade de evitar a deposição de material em regiões preferenciais do substrato. Uma fotografia das duas peças que formam o porta-substrato é mostrada na figura 3.2.



**Figura 3.2** : Porta-substrato utilizado para a produção das amostras.

A ante-câmara possui 4" de diâmetro externo. Ela é conectada à câmara principal através de uma válvula manual. O papel da ante-câmara é de permitir a troca de substratos sem ter necessidade de abrir a câmara principal e alterar o vácuo do sistema.

O sistema de vácuo é composto de duas bombas mecânicas acopladas a duas bombas turbo-moleculares. Uma das bombas turbo-moleculares é conectada à câmara principal e a outra à ante-câmara. Este sistema de vácuo permite atingir pressões de base de  $\sim 10^{-7}$  mTorr em ambas as câmaras. A pressão de deposição é controlada regulando a válvula da bomba turbo-molecular.

Através do painel de controle elétrico é possível monitorar parâmetros de deposição tais como: o vácuo da câmara, a pressão de deposição, a potência da fonte

utilizada e o fluxo do gás injetado. No caso da produção das amostras em estudo utilizamos os seguintes parâmetros de deposição:

A pressão de base da câmara principal foi mantida em  $3 \times 10^{-7}$  mTorr.

Fluxo : 20 sccm

Pressão de deposição : 5 mTorr

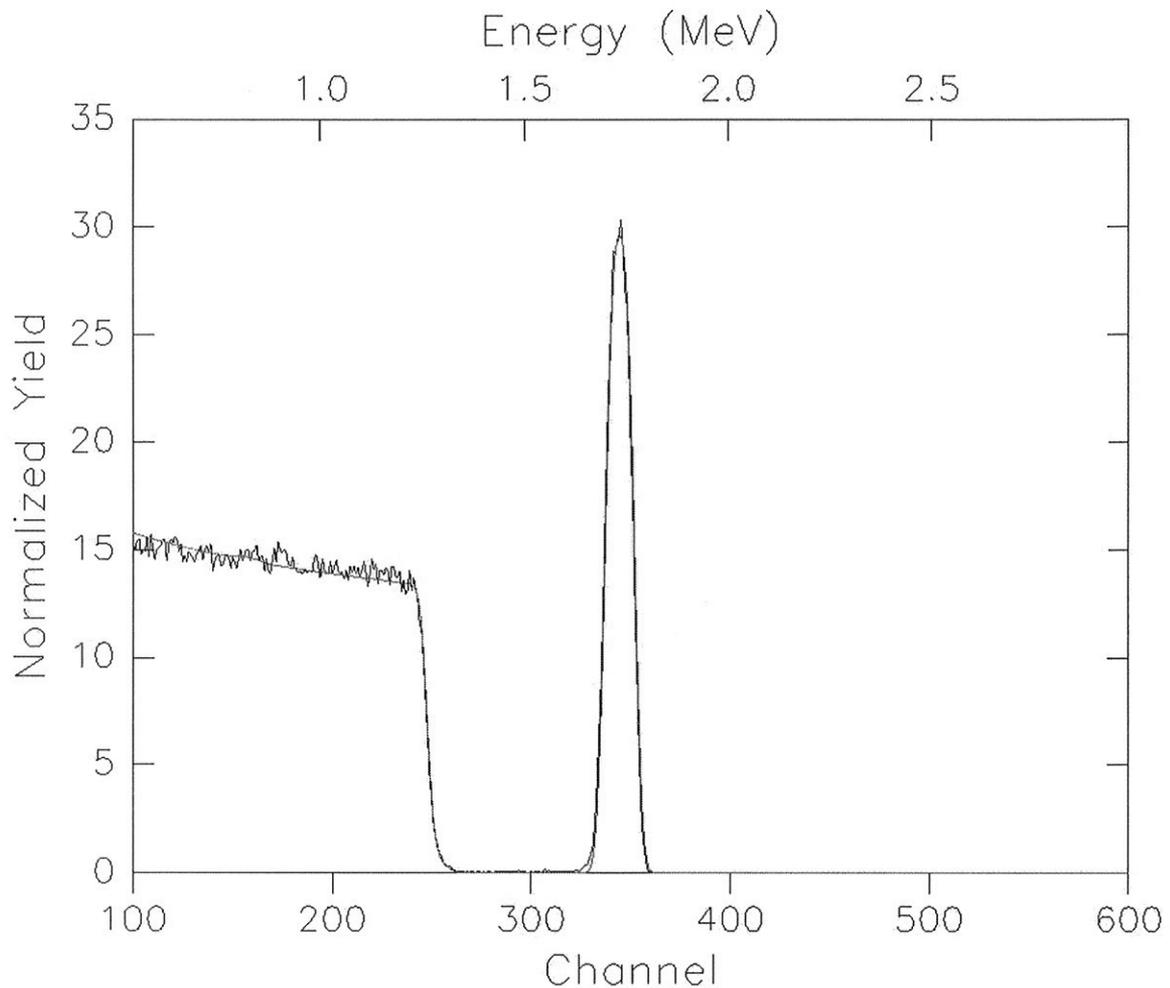
Potência : 50 W para a deposição do Ta e 100 W para a deposição das ligas magnéticas e do Cu.

### 3.1.2 Técnicas de caracterização estrutural

#### 3.1.2.1 Retroespalhamento de Rutherford (RBS)

A técnica de análise por retroespalhamento de Rutherford (RBS) é capaz de quantificar a concentração dos elementos químicos presentes em uma amostra assim como também o perfil de distribuição das espécies em função da profundidade [96]. Através desta técnica mede-se a energia das partículas de um feixe monoenergético que sofreram colisões com os átomos do alvo analisado e foram retroespalhadas. Um detector coleta essas partículas emitindo um sinal elétrico proporcional à energia do íon espalhado. Desta maneira é possível gerar um espectro de contagens das partículas espalhadas detectadas em função de uma faixa de energia.

Para a análise destes espectros são utilizados programas computacionais que simulam espectros RBS para uma dada composição/espessura. Assim através da comparação entre os espectros experimentais e simulados é possível determinar a composição e espessura da amostra analisada. Um espectro de RBS de um filme de FeMn e espessura 30 nm depositado sobre um substrato de Si(100) é mostrado na figura 3.3.



**Figura 3.3 :** Espectro de RBS de um filme de  $Fe_{50}Mn_{50}$  de 30 nm de espessura depositado sobre um substrato de  $Si(100)$ .

A seguir serão apresentados os principais conceitos físicos envolvidos na técnica RBS:

- Fator cinemático de espalhamento ( $K$ )

Quando um íon com energia  $E_0$  é lançado sobre um material ou alvo, ele é retroespalhado devido à colisão com o alvo. A energia de retroespalhamento do íon é  $E_1 = KE_0$ , onde  $K$  é conhecido como fator cinemático de espalhamento e representa a razão entre a energia da partícula espalhada ( $E_1$ ) e sua energia inicial ( $E_0$ ):

$$K = E_1 / E_0, \quad (3.1)$$

Pelas leis de conservação de energia e momento,  $K$  é expresso da seguinte maneira:

$$K = \frac{\left(1 - (M_1/M_2)^2 \sin^2 \alpha\right)^{1/2} - (M_1/M_2) \cos \alpha}{\left[1 + (M_1/M_2)\right]}, \quad (3.2)$$

onde  $M_1$  é a massa da partícula incidente,  $M_2$  é a massa do átomo espalhador e  $\alpha$  é o ângulo de espalhamento. A partir das equações (3.1) e (3.2) podemos obter informação da massa  $M_2$  do átomo do alvo.

- Seção de choque de espalhamento ( $\Gamma$ )

A seção de choque de espalhamento é a probabilidade do íon incidente colidir com um átomo do alvo, ser retroespalhado e atingir o detector. Considerando que o detector apenas capta os íons retroespalhados em um ângulo sólido ( $\Omega$ ) o valor utilizado é a seção de choque diferencial definida como:

$$\left(\frac{d\Gamma}{d\Omega}\right) = (1/\sigma) \left[\left(\frac{dQ}{d\Omega}\right)/Q\right] \quad (3.3)$$

Onde  $\sigma$  é o número de átomos por unidade de área na amostra,  $Q$  é o número total de partículas incidentes e  $\Omega$  é o ângulo sólido do detector.

Por outro lado, o número de partículas detectadas ( $A$ ) se relaciona com a seção de choque diferencial através da seguinte equação :

$$A = \left(\frac{d\Gamma}{d\Omega}\right) Q \sigma \quad (3.4)$$

A partir desta equação é possível determinar a densidade atômica superficial do alvo.

- Perda de energia e poder de freamento

Quando um íon com alta energia é lançado sobre um material ou alvo, ele perde energia em seu caminho devido às colisões com o meio. Na faixa de energias utilizadas em RBS, acima de 2MeV para  $\text{He}^+$ , os íons perdem energia principalmente devido a colisões inelásticas eletrônicas [96]. A perda de energia por profundidade é conhecida como poder de freamento e é representada por:

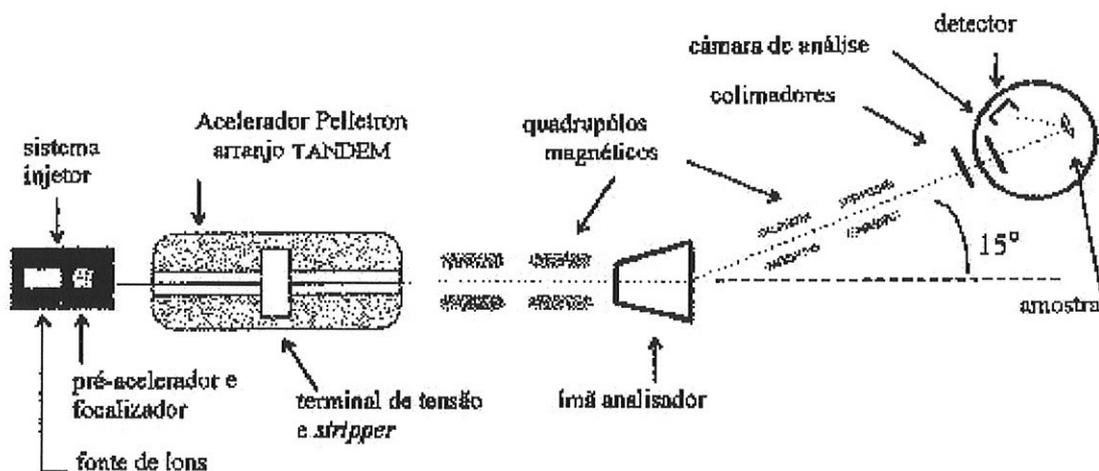
$$\varepsilon = -(1/N) (dE/dx) \quad (3.5)$$

Onde  $dE/dx$  é a energia perdida pelo feixe depois de percorrer uma distância  $x$  dentro do alvo e  $N$  é o número de átomos de uma determinada espécie no alvo.

No presente trabalho, as medidas de RBS foram realizadas no Laboratório de Análise de Materiais por Feixe Iônico (LAMFI). O equipamento utilizado é constituído

basicamente de uma fonte de íons acoplada a um acelerador e um detector. No acelerador a composição e energia do feixe são selecionadas. Na seqüência, o feixe é colimado até uma câmara onde se encontram as amostras e o detector. A amostra é introduzida no sistema através de uma haste que possui um porta-amostras em um dos seus extremos, como ilustrado na figura 3.4. Uma parte do feixe incidente é retroespalhado com diversos valores de energia, chegando ao detector uma fração ainda menor. O detector recebe as partículas retroespalhadas em forma de pulsos elétricos. Estes pulsos são enviados a um analisador multicanal, onde são armazenados em função da energia e posteriormente descarregados em um PC para sua análise. Assim obtemos espectros com picos cuja posição nos indica cada elemento presente no alvo definido pelo fator cinemático. A área relativa desses picos (definida pela seção de choque de espalhamento) nos fornece a composição do filme e a largura de cada pico nos indica sua espessura.

A comparação dos espectros experimentais de RBS foi feita com espectros simulados obtidos utilizando o programa Rump [97].



*Figura 3.4 : Esquema simplificado do equipamento utilizado para as medidas de RBS*

### 3.1.2.2 Difração de raios-X

Um feixe de raios-X que incide em um cristal interage com os átomos presentes, originando o fenômeno de difração. A difração de raios-X ocorre segundo a Lei de Bragg, a qual estabelece a relação entre o ângulo de difração e a distância entre os planos que a originaram, característicos para cada fase cristalina:

$$n\lambda = 2d\sin\theta, \quad (3.6)$$

onde

$\lambda$  é comprimento de onda dos raios-X incidentes,

$\theta$  é o ângulo de difração,

$d$  é a distância interplanar e  $n$  é um número inteiro.

A difração de raios-X é uma das principais ferramentas para a caracterização estrutural de materiais policristalinos. No estudo de filmes finos sua utilização tem sido de fundamental importância para identificar a estrutura do material e identificar as fases presentes no mesmo. A identificação das fases presentes em um material é realizada através da comparação dos difratogramas de raios-X com padrões de difração. Estes padrões de difração se encontram arquivados em banco de dados que contêm arquivos de diferentes tipos de materiais.

No nosso caso, realizamos medidas de difração de raios-X para identificar as fases presentes nos filmes produzidos. O equipamento utilizado para estas medidas é um difratômetro Rigaku modelo D/MAX-2000/PC, constituído de uma fonte de raios-x, um monocromador, um detector e um goniômetro, onde é posicionada a amostra. A configuração do equipamento utilizado para estas medidas foi a configuração denominada  $\theta / 2\theta$  onde a amostra é posicionada fazendo um ângulo  $\theta$  com o feixe incidente, enquanto que o detector faz um ângulo de  $2\theta$  com o feixe difratado.

Estas medidas foram feitas com a colaboração da Prof<sup>a</sup>. Dra. Márcia C. A. Fantini no Laboratório de Cristalografia do Departamento de Física Aplicada do IFUSP. Os parâmetros experimentais utilizados nestas medidas foram:

Radiação = CuK  $\alpha$  ( $\lambda = 1,5418 \text{ \AA}$ )

Tensão = 40 KV

Corrente = 30 mA

Intervalo de varredura  $2\theta = 20^\circ - 68,5^\circ$  e  $69,5^\circ - 90^\circ$

Passo =  $0,05^\circ$

Tempo de medida por ângulo = 40 segundos.

A partir dos difratogramas de raios-X também foram utilizados para a determinação do tamanho de grão dos *buffers* presentes nas amostras. Esta determinação foi possível utilizando-se a fórmula de Scherrer [98], dada abaixo:

$$D_{hkl} = \frac{0,9\lambda}{\beta_{hkl} \cos \theta_{hkl}}, \quad (3.7)$$

onde

$\lambda$  é o comprimento de onda da radiação incidente;

$\theta_{hkl}$  é o ângulo do plano de difração de índice hkl.

$\beta_{hkl}$  corresponde ao alargamento efetivo do tamanho de grão do material. Ele é calculado através da seguinte equação:

$$\beta_{hkl} = \sqrt{(B^2 - b^2)}, \quad (3.8)$$

Onde B representa a largura meia altura do pico de difração da amostra e b representa a largura meia altura do pico de difração de uma amostra padrão.

No caso das nossas amostras, o b utilizado corresponde a uma amostra padrão de silício ( $b_{Si}$ ). O valor de b achado para a reflexão (111) foi de  $0,17^\circ$  e para a reflexão (200) de  $0,18^\circ$ .

Os valores de posição ( $2\theta_{hkl}$ ) e largura (B) dos picos dos difratogramas de raios-X foram obtidos ajustando-se uma curva gaussiana em cada pico. Os valores do espaçamento interplanar ( $d_{hkl}$ ) dos picos de difração de cada material analisado, obtidos através da equação (3.7), foram comparados com as fichas do sistema JCPDS para determinar o tipo de estrutura cristalina da amostra e seus planos difratantes.

### 3.1.2.3 Refletometria de raios-X

A refletometria de raios-X em amostras sólidas com superfícies lisas e planas foi realizada pela primeira vez por Compton em 1923. Desde então, rapidamente a refletometria de raios-X se converteu em uma técnica experimental capaz de fornecer informações importantes sobre sólidos. Hoje em dia, a refletometria de raios-X é uma

ferramenta poderosa de análise de superfícies e interfaces de filmes finos. A partir destas medidas podemos obter informação sobre a espessura, densidade e a rugosidade de um filme.

Podemos analisar uma curva de refletometria destacando duas regiões. Na primeira região, no intervalo  $0^\circ < \theta < \theta_c$ , onde  $\theta_c$  é denominado de ângulo crítico, ocorre a reflexão total. A partir do ângulo crítico podemos determinar a densidade do material da superfície da amostra. Na segunda região, acima de  $\theta_c$ , o feixe de raios-X penetra na amostra, ocorrendo sua dispersão, e parte do feixe incidente é refletido. Estas reflexões vêm das diferentes interfaces e interferem produzindo franjas representadas pelas oscilações observadas nas curvas experimentais. O período das franjas está relacionado à espessura do filme e o decaimento da intensidade das mesmas à rugosidade das camadas que constituem o filme. A reflexão pode ser analisada usando a teoria clássica (equação de Fresnel).

No presente trabalho, o objetivo da técnica de refletometria é obter informação sobre o efeito das irradiações iônicas na rugosidade dos filmes irradiados com diferentes doses, uma vez que o valor do campo de *exchange* é fortemente dependente da rugosidade interfacial FM/AFM. Estas medidas foram feitas utilizando-se o equipamento de raios-X descrito acima assim como também a linha XRD2 do Laboratório Nacional de Luz Síncrotron (LNLS). Os parâmetros experimentais utilizados nestas medidas foram:

Ângulo raçante

Configuração  $\theta / 2\theta$

Passo =  $(5 \times 10^{-4})^\circ$

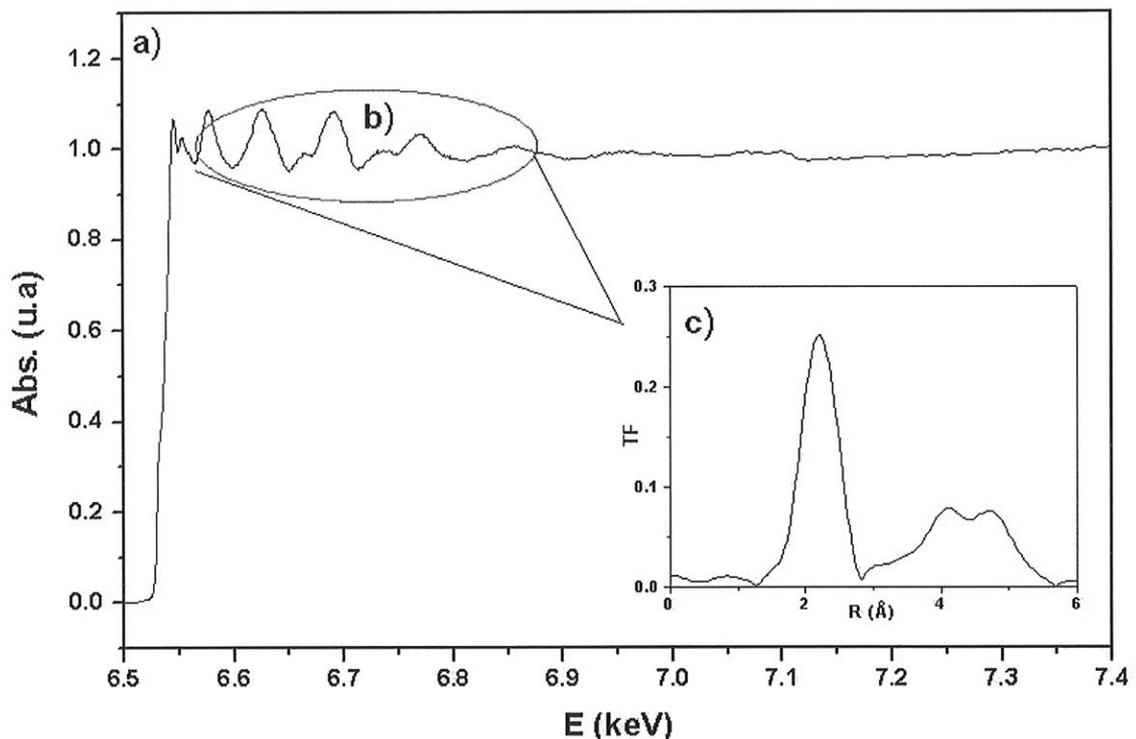
Intervalo de varredura  $2\theta = 0$  a  $4^\circ$ .

#### 3.1.2.4 Absorção de raios-X

A técnica de absorção de raios-X consiste na excitação de elétrons localizados nos níveis eletrônicos internos de um átomo pela incidência de raios-X, obtendo-se informação a partir das transições eletrônicas ocorridas.

O espectro de absorção, ilustrado na figura 3.5, é dividido em duas regiões: região em torno da borda de absorção e transições para estados do contínuo. A região da borda de absorção é caracterizada pelo aumento abrupto da absorção em um valor específico de

energia, o que significa que foi absorvida a energia necessária para retirar elétrons do átomo absorvedor. A região das transições para o estado do contínuo refere-se a transições eletrônicas com absorção de energia maior que a energia de ligação. Esta região é subdividida em duas regiões: região de XANES (x-ray absorption near edge structure) e região de EXAFS (Extended x-ray absorption fine structure), as quais envolvem princípios físicos e tratamentos matemáticos distintos, além de fornecerem diferentes informações.



**Figura 3.6:** (a) Espectro de absorção de raios-X de um filme de  $Ni_{81}Fe_{19}/Fe_{50}Mn_{50}$ . (b) Oscilações de EXAFS extraídas de (a). (c) Transformada de Fourier das oscilações de EXAFS indicadas em (b).

Particularmente, a região de EXAFS (indicada na figura 3.5b) compreende a análise da absorção de energia na faixa de 50 a 1000 eV acima da borda de absorção. O espectro de EXAFS envolve oscilações da interferência entre a onda referente ao

fotoelétron emitido pelo átomo e a onda retroespalhada pelo átomo vizinho. A análise espectral destas oscilações permite obter informação a respeito das distâncias e átomo observador-vizinhos. Desta maneira, podemos determinar a estrutura média local dos diferentes elementos que compõem o sólido.

O coeficiente de absorção de raios-X acima da borda de absorção pode ser escrito como:

$$\mu(k) = \mu_o(k)[1 + \chi(k)], \quad (3.9)$$

onde  $\mu_o(k)$  representa a absorção de raios-X pelo átomo e  $\chi(k)$  as oscilações de EXAFS produzidas pela interação do fotoelétron com a matéria. Considerando somente o retroespalhamento dos fotoelétrons pelos átomos vizinhos situados a uma mesma distância ( $r_i$ ) do átomo absorvedor (denominado espalhamento simples),  $\chi(k)$  pode ser expresso por:

$$\chi(k) \approx \sum_i (\hat{\varepsilon} \cdot \hat{r}_i)^2 \frac{N_i S_o^2 F_i}{k r_i^2} e^{-2k_i^2 \sigma_i^2} e^{-2r_i / \lambda(k)} \sin(2kr_i + \phi(k, r_i)), \quad (3.10)$$

onde

$k$  = módulo do vetor de onda do fotoelétron

$i$  = índice de referência de cada esfera de coordenação

$\hat{\varepsilon}$  = vetor de polarização linear do fóton

$N_i$  = número de átomos do tipo  $i$

$S_o$  = fator de redução de amplitude devido a efeitos de correlação eletrônica

$F_i$  = amplitude de retroespalhamento do fotoelétron pelos átomos vizinhos

$\sigma_i$  = fator de Debye-Waller

$\lambda(k)$  = livre caminho médio dos fotoelétrons

$2kr_i$  = fase do fotoelétron após percorrer o caminho desde o átomo central até o átomo espalhador e retornar.

$\phi(k, r_i)$  = termo acrescentado à fase do fotoelétron levando em consideração os espalhamentos dos fotoelétrons devido aos potenciais atômicos.

Para nosso propósito, é conveniente escrever a equação (3.10) em função dos termos que determinam a amplitude de EXAFS e sua fase, da seguinte maneira:

$$\chi(k) \approx \sum_i A(k, r_i) \sin(2kr_i + \phi(k, r_i)), \quad (3.11)$$

onde

$$A(k, r_i) = \sum_i (\hat{\varepsilon} \cdot \hat{r}_i)^2 \frac{N_i S_o F_i}{kr_i^2} e^{-2k_i^2 \sigma} e^{-2r_i / \lambda(k)} \quad (3.12)$$

Podemos dizer que a estrutura da equação (3.11) é uma soma de funções seno amortecidas que representa a forma de uma série de Fourier. Assim, se realizamos a transformada de Fourier de  $\chi(k)$  é possível obter uma distribuição radial das contribuições atômicas. Deste modo, a partir do módulo da transformada de Fourier das oscilações de EXAFS (vide figura 3.5c) podemos obter informação da contribuição de uma determinada esfera de vizinhos atômicos ( $r_i$ ), onde a largura da função é dada por  $\sigma_i^2$  e a amplitude por  $N_i$ . Quantitativamente, estes parâmetros estruturais ( $r_i$ ,  $\sigma_i^2$  e  $N_i$ ) podem ser determinados através da comparação das transformadas dos espectros experimentais das oscilações de EXAFS com as transformadas de espectros simulados.

As medidas de absorção de raios-X foram realizadas na borda de absorção K do manganês (6539 eV), na linha de luz D04B-XAS do Laboratório Nacional de Luz Sincrotron (LNLS) à temperatura ambiente e à temperatura do nitrogênio líquido. Esta linha de luz opera na faixa de raios-X de 2,5 a 12,4 KeV. O feixe incidente foi monocromatizado por um monocromador de cristal sulcado de Si(111) e calibrado pela posição da borda de absorção de uma amostra de Mn. Os dados foram coletados utilizando-se o modo de detecção de rendimento total de elétrons (*total electrons yield*). Nessas medidas o ângulo entre a direção do feixe e a normal à amostra foi de 36°. Os parâmetros experimentais utilizados são descritos na tabela 3.1.

Intervalo	Passo	Tempo
(6450 – 6520) eV	5,0 eV	1 s
(6520 – 6580) eV	0,7 eV	2 s
(6580 – 6800) eV	1,0 eV	2 s
(6800 – 7000) eV	2,0 eV	3 s
(7000 – 7400) eV	4,0 eV	4 s

Tabela 3.1 : Parâmetros experimentais utilizados nas medidas de absorção de raios-X dos filmes de NiFe/FeMn.

No presente trabalho, utilizamos a técnica de XAS para analisar comparativamente o pico principal do módulo das transformadas de Fourier dos espectros experimentais de EXAFS. O cálculo das transformadas de Fourier da região de EXAFS das amostras analisadas foi feito utilizando-se o programa WINXAS, seguindo sugestões da Profa. Márcia Fantini. Através deste programa primeiramente obtivemos espectros de absorção em função do vetor de onda e realizamos uma aproximação linear para a região anterior à borda de absorção e um polinômio de quinto grau para a simulação da absorção na faixa de 2,2 a 12,2 Å<sup>-1</sup>. Posteriormente, para o cálculo da transformada de Fourier do sinal de EXAFS o sinal de absorção foi normalizado pelo método de Bessel e multiplicado por um peso  $k^3$ . As transformadas de Fourier de todas as amostras analisadas foram calculadas seguindo o mesmo procedimento e o mesmo intervalo entre 2,8 e 12,15 Å<sup>-1</sup>.

As amostras analisadas foram bicamadas de NiFe/FeMn depositadas sobre diferentes *buffers* e amostras irradiadas ionicamente com diferentes íons e dosagens.

A comparação destes espectros nos permitiu analisar o grau de desordem na estrutura fina das amostras, além de evidenciar a sua correlação com as propriedades magnéticas das mesmas.

### 3.1.3 Técnicas de caracterização magnética.

#### 3.1.3.1 Magnetômetro de amostra vibrante

As medidas de magnetização em função do campo aplicado foram feitas utilizando-se um magnetômetro de amostra vibrante VSM, o qual foi modificado a fim de medirmos amostras com momentos pequenos e de baixos campos, como é o caso dos nossos filmes. As modificações feitas no conjunto VSM-eleroímã foram: a fabricação de um *pick up*, com menor área para melhorar a razão sinal-ruído da medida, a implementação de uma nova fonte de alimentação capaz de gerar campos magnéticos pequenos, de até 1kOe, que possibilitou melhorar a resolução da varredura e, finalmente, foi modificado o *software* utilizado no armazenamento de dados para incrementar a velocidade de medida. O funcionamento do MAV está baseado na detecção da variação do fluxo magnético em bobinas sensoras, localizadas entre as peças polares de um

eletroímã, enquanto a amostra vibra próxima a elas. Em nosso caso, duas bobinas sensoras em forma de oito foram coladas nas laterais de uma peça de PVC tubular. Uma fotografia das bobinas é mostrada na figura 3.6.



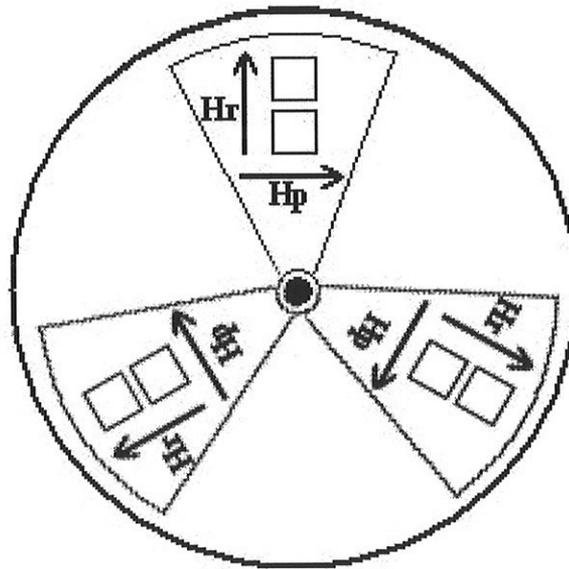
**Figura 3.6** : Fotografia das bobinas sensoras fabricadas para as medidas de  $M$  vs.  $H$  das amostras.

Vale a pena ressaltar que este *pick up* foi fabricado nessa geometria para medir especificamente valores de  $H_{exc}$  e  $H_c$  com maior precisão.

O eletroímã é constituído de duas peças polares acopladas a dois núcleos ferromagnéticos, que podem gerar um campo magnético de até 2T. O campo aplicado à amostra é controlado por duas pastilhas de efeito Hall localizadas nas peças polares e conectadas a dois gaussímetros, um dos quais está incorporado ao controlador do magnetômetro. A leitura da magnetização e do campo aplicado é feita pelo controlador do VSM e, paralelamente, registrada em um computador através de uma placa de interface GPIB.

A amostra a ser medida é colocada em um porta-amostra preso em uma haste conectada a um vibrador eletromecânico, que induz uma vibração longitudinal. A haste se localiza entre as peças polares do eletroímã. Todas as medidas de  $M$  vs.  $H$  foram feitas no plano do filme e para cada filme foram medidas duas curvas de histerese: uma delas aplicando-se o campo de varredura ( $H_r$ ) na direção radial para fora do porta-substrato

onde utilizado para a deposição das amostras e a outra medida foi feita aplicado-se o campo de medida ( $H_p$ ) perpendicular à direção anterior, como ilustrado na figura 3.7.



**Figura 3.7 :** Esquema da aplicação do campo de varredura nas medidas  $M$  vs.  $H$ . (a) campo magnético aplicado na direção radial do porta-substrato ( $H_r$ ) e (b) com campo magnético aplicado perpendicular à direção anterior ( $H_p$ ).

As curvas de histerese de cada filme foram medidas durante 5 minutos com tempo de amostragem de 0,1 segundos. O valor de campo magnético máximo aplicado foi de 500Oe.

### 3.1.3.2 Medidas magneto ópticas

Com a finalidade de obter informação local do comportamento magnético dos filmes, foram feitas medidas magneto ópticas utilizando-se um microscópio óptico de varredura em campo próximo sensível a efeitos magneto ópticos (SNOM-MO), existente no LMM. O funcionamento do SNOM-MO para a obtenção de medidas magneto ópticas está baseado na detecção da reflexão da luz proveniente da interação da luminosidade da ponta da fibra óptica com a amostra magnetizada. A luz refletida é filtrada por um analisador de polarização e detectada pelo fotodiodo de avalanche. A configuração resultante é semelhante a um magnetômetro de efeito Kerr transversal onde o MOKE (Magneto-Optical Kerr Effect) é sensível à magnetização paralela à superfície de reflexão e perpendicular ao plano de incidência da luz. Por outro lado, as

imagens topográficas da superfície da amostra são obtidas através da detecção da variação da frequência de vibração da ponta da fibra óptica, quando esta última interage com os obstáculos da amostra durante o processo de varredura.

O SNOM-MO possui dois amplificadores Lock-in (um modelo 7265 e outro modelo 5210 ambos da EG&G Instruments), dois geradores de sinal (ambos modelo 33120A da Hewlet Packard), uma unidade de controle digital (Nanotec) um diodo laser ( $\lambda = 670$  nm, modelo MVP da Coherent), um fotodiodo avalanche (P/N 197-70-73-641 da Advanced Photonix) e um eletroímã confeccionado no LMM, sendo que todos os equipamentos estão conectados a um microcomputador que controla todos os processos por meio do programa WSxM da Nanotec [99]. Uma fotografia do sistema é mostrada na figura 3.8.

A sonda de varredura do SNOM-MO é uma fibra óptica afinada por meio de uma ataque químico. O feixe luminoso de um diodo laser é injetado na extremidade oposta da fibra óptica. Devido ao ataque químico, a ponta é submicrométrica tanto do ponto de vista mecânico como óptico. Para a obtenção do perfil topográfico, o SNOM-MO funciona como um microscópio de força atômica (AFM) no modo de contato, onde a distância da ponta à amostra é tipicamente da ordem de 10 nm. O contraste óptico é obtido através da coleta do sinal luminoso em campo distante como resultado da interação em campo próximo entre a superfície da amostra e a luz emitida pela ponta. O contraste magnetoóptico é extraído através da análise das condições de polarização da luz incidente e espalhada pela amostra. Estima-se que a resolução do SNOM-MO esteja entre 100 e 200 nm.

Utilizando um sistema de coordenadas cartesiano, convencionamos que a superfície analisada corresponde ao plano xy e o relevo é o contraste em z. Um sistema de motores elétricos associado a um microposicionador X-Y de amostras (Optron Micromecânica Ótica LTDA) regula o posicionamento da amostra em xyz na escala de milímetros com precisão micrométrica. Durante a varredura, quando a precisão de nm é requerida, esse controle é feito por um sistema piezoelétrico tubular de quatro quadrantes. No plano xy, a varredura possui um limite máximo de  $16 \times 16 \mu\text{m}^2$ . Em z, a varredura máxima é de  $2.3 \mu\text{m}$  [99].

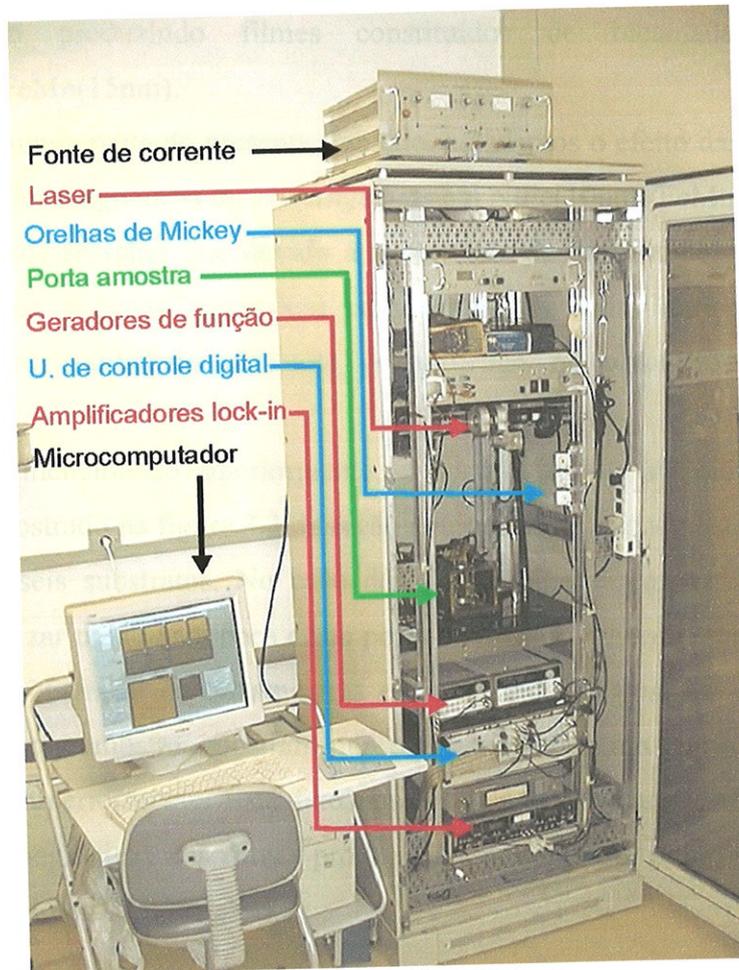


Figura 3.8: Fotografia do MO-SNOM [99].

### 3.2 Procedimentos experimentais desenvolvidos

Nesta seção, apresentamos a relação de filmes finos produzidos para o estudo do acoplamento de *exchange bias*. Além disso, relatamos os procedimentos experimentais de cada estudo feito e suas respectivas motivações.

Como é bem sabido, o acoplamento de *exchange bias* depende tanto de fatores estruturais como magnéticos, sendo que todos estes fatores se encontram interrelacionados. Neste sentido, os objetivos da primeira parte do presente trabalho foram: i) produzir sistemas com *exchange bias* utilizando-se o sistema de *sputtering* do LMM, ii) estudar o maior número de fatores estruturais e magnéticos através de diferentes técnicas de caracterização e iii) correlacionar todas as informações obtidas a fim de extrair informações relevantes sobre o acoplamento de *exchange*. Neste contexto, iniciamos

nosso estudo produzindo filmes constituídos de bicamadas magnéticas de NiFe(30nm)/FeMn(15nm).

Na segunda parte do presente trabalho, estudamos o efeito das irradiações iônicas nas propriedades magnéticas do *exchange bias* em NiFe(10nm)/FeMn(10nm).

Devemos ressaltar que devido à necessidade de um grande número de amostras (produzidas nas mesmas condições) para serem irradiadas ionicamente, foi preciso utilizar um porta-substrato diferente do utilizado na obtenção dos outros filmes estudados.

Como mencionado anteriormente, o porta-substrato utilizado na produção dos filmes foi o mostrado na figura 3.2 da seção anterior. Este porta-substrato tem capacidade de alojar até seis substratos. No caso dos filmes para serem irradiados ionicamente, decidimos utilizar uma única peça deste porta-substrato: o disco metálico. Desta maneira foi possível a obtenção de 38 amostras em uma única deposição. Porém, as medidas magnéticas destas amostras mostram que elas apresentam um comportamento diferente do observado anteriormente. Este fato nos levou a realizar um estudo sistemático das propriedades magnéticas dos filmes produzidos em conjunto, o que será apresentado na segunda seção do próximo capítulo.

### 3.2.1 Estudo das propriedades estruturais e magnéticas dos filmes em função dos *buffers* e substratos utilizados

Como mencionado anteriormente, a desordem interfacial ferro/antiferromagnética tem efeitos complexos no *exchange bias*. A desordem pode ser originada por fatores como rugosidade, tamanho de grão ou variação da cristalinidade ao longo do crescimento do filme, como por exemplo, mudanças na textura dos mesmos. Portanto, o substrato e os *buffers* utilizados no crescimento das bicamadas magnéticas cumprem uma função importante na estrutura de sistemas com *exchange bias* e conseqüentemente no acoplamento de *exchange* [76,77,78]. Neste contexto, uma vez estabelecidas as melhores condições de deposição por *sputtering* das bicamadas magnéticas, decidimos estudar a influência dos *buffers* de Cu e Ta e substratos de Si(100) e Si(111) nas propriedades magnéticas das nossas amostras.

Assim, produzimos e analisamos filmes de Cu(20nm) e Ta(20nm) depositados sobre substratos de Si(100) e Si(111), respectivamente. Na seqüência, fabricamos filmes de Si/NiFe, Si/*buffer*/NiFe, Si/*buffer*/NiFe/FeMn e finalmente Si/NiFe/FeMn, como mostrado na tabela 3.2.

Série A	Substrato de Si(100)	Série B	Substrato de Si(111)
A1	Si/Cu(20nm)	B1	Si/Cu(20nm)
A2	Si/Cu(20nm)/NiFe(30nm)	B2	Si/Cu(20nm)/NiFe(30nm)
A3	Si/Cu/NiFe(30nm)/FeMn(15nm)	B3	Si/Cu/NiFe(30nm)/FeMn(15nm)
A4	Si/Cu/NiFe(30nm)/FeMn(15nm)/Ta	B3	Si/Cu/NiFe(30nm)/FeMn(15nm)/Ta
A5	Si/Ta(20nm)	B5	Si/Ta(20nm)
A6	Si/Ta(20nm)/NiFe(30nm)	B6	Si/Ta(20nm)/NiFe(30nm)
A7	Si/Ta/ NiFe(30nm)/FeMn(15nm)	B7	Si/Ta/ NiFe(30nm)/FeMn(15nm)
A8	Si/Ta/ NiFe(30nm)/FeMn(15nm)/Ta	B8	Si/Ta/ NiFe(30nm)/FeMn(15nm)/Ta
A9	Si/NiFe(30nm)	B9	Si/NiFe(30nm)
A10	Si/NiFe(30nm)/FeMn(15nm)	B10	Si/NiFe(30nm)/FeMn(15nm)
A11	Si/NiFe(30nm)/FeMn(15nm)/Ta	B11	Si/NiFe(30nm)/FeMn(15nm)/Ta
A12	Si/Cu/FeMn(15nm)/NiFe(30nm)	B12	Si/Cu/FeMn(15nm)/NiFe(30nm)

Tabela 3.2 : Lote de amostras produzidas para estudar o efeito do substrato e do *buffer* sobre o crescimento das bicamadas magnéticas.

Uma vez estabelecido que o *buffer* de Cu otimiza as propriedades magnéticas dos *exchange bias* de NiFe/FeMn, decidimos estudar a influência da espessura do Cu no crescimento e no valor de  $H_{exc}$  dos filmes. Na tabela 3.3 são mostrados os filmes fabricados.

Si/Cu(t nm)/NiFe(30 nm)/FeMn(15 nm)/Ta(5 nm)		
Série C	Amostra	T
C1	Si/Cu/NiFe/FeMn/Ta	20
C2	Si/Cu/NiFe/FeMn/Ta	40
C3	Si/Cu/NiFe/FeMn/Ta	60

Tabela 3.3 : Lote de amostras variando-se a espessura do *buffer* de Cu.

### 3.2.2 Estudo do acoplamento de *exchange bias* em função da seqüência de deposição e espessura das camadas magnéticas

Segundo a literatura, existem duas maneiras de obtermos filmes a base de FM/AFM acoplados via troca. Uma delas é depositando as camadas magnéticas na presença de um campo magnético externo [5,6,7,8]. A função do campo aplicado durante a deposição do material é de saturar a camada ferromagnética que por sua vez orientará a

camada antiferromagnética otimizando assim o acoplamento FM/AFM. Outra maneira de obtermos sistemas acoplados via troca é, após a obtenção dos filmes, realizar um tratamento térmico acima da temperatura de Néel do antiferromagneto e resfriamento na presença de um campo magnético externo [9,10]. O tratamento térmico acima da temperatura de Néel do AFM permite que a camada AFM tenha comportamento paramagnético e o resfriamento com campo aplicado garante que os spins da camada AFM se orientem paralelamente aos spins da camada FM, impedindo a formação de domínios no AFM. Também segundo a literatura, a obtenção de *exchange bias* seguindo o segundo procedimento descrito independe da seqüência de deposição das bicamadas magnéticas, sejam filmes AFM/FM ou FM/AFM [90].

No caso das nossas amostras, a caracterização magnética de todos os filmes à base de NiFe/FeMn logo após a sua obtenção mostra que as curvas de histerese apresentam deslocamento com relação à origem, indicando que as bicamadas magnéticas estão acoplados via troca. O acoplamento das bicamadas magnéticas logo após a sua obtenção foi possível devido ao nosso sistema de *sputtering* fornecer um campo externo capaz de alinhar a camada ferromagnética<sup>5</sup>. Neste sentido, decidimos estudar as propriedades magnéticas dos nossos filmes em função da inversão da seqüência das camadas magnéticas. Os filmes fabricados para este estudo são mostrados na tabela 3.4.

Substrato/Cu(20nm)/FeMn(15nm)/ NiFe(30nm)/Ta(5 nm)	
Série E	Amostra
E1	Si(100)/Cu/FeMn/NiFe/Ta
E2	Si(111)/Cu/FeMn/NiFe/Ta
E3	Si(100)/Ta/FeMn/NiFe/Ta
E4	Si(111)/Ta/FeMn/NiFe/Ta

Tabela 3.4: Lote de amostras variando-se a disposição da camada antiferromagnética.

### 3.2.3 Estudo da dependência de $H_{exc}$ com a espessura do NiFe e FeMn depositados sobre Si(100) e Si(111) e *buffers* de Ta e Cu.

A dependência de  $H_{exc}$  com a espessura da camada ferromagnética e antiferromagnética foi estudada em detalhe em diferentes sistemas [9,21,22,90,91,92,93,94,95]. Observou-se que o valor do campo de *exchange* é

inversamente proporcional à espessura da camada ferromagnética ( $t_{FM}$ ) [1], como mostrado na equação (2.1).

No entanto, o comportamento de  $H_{exc}$  varia em função da técnica de deposição e das condições utilizadas na obtenção do filme. Assim, decidimos realizar o estudo da dependência das propriedades magnéticas dos filmes à base de  $Ni_{81}Fe_{19}/Fe_{50}Mn_{50}$  em função da espessura da camada ferromagnética depositada sobre Si(100) e Si(111) e *buffers* de Ta e Cu, no nosso sistema de *sputtering*.

Portanto, fabricamos filmes mantendo fixa a espessura da camada antiferromagnética em 10nm e variando a espessura da camada ferromagnética depositada sobre substratos de Si(111) e Si(100) e *buffers* de Cu e Ta com 20nm de espessura.

### 3.2.4 Estudo do efeito das irradiações iônicas em *exchange bias* de NiFe/FeMn

O fenômeno de *exchange bias* apresenta inúmeros desafios ainda hoje. Tanto a configuração magnética de spins na interface como a desordem na interface gerada por fatores como rugosidade, variação de cristalinidade (textura e parâmetro de rede) ou tamanho de grão são mais complexas do que originalmente imaginado. Além disso, sabe-se que teoricamente, o valor do campo de deslocamento é quase duas ordens de grandeza maior do que os valores encontrados experimentalmente [1], sendo esta discrepância justificada em termos de rugosidade interfacial [7,17,36,37,67,68,69,70] ou pela formação de domínios [71,72]. No entanto, ambas as justificativas não foram esclarecidas até o momento.

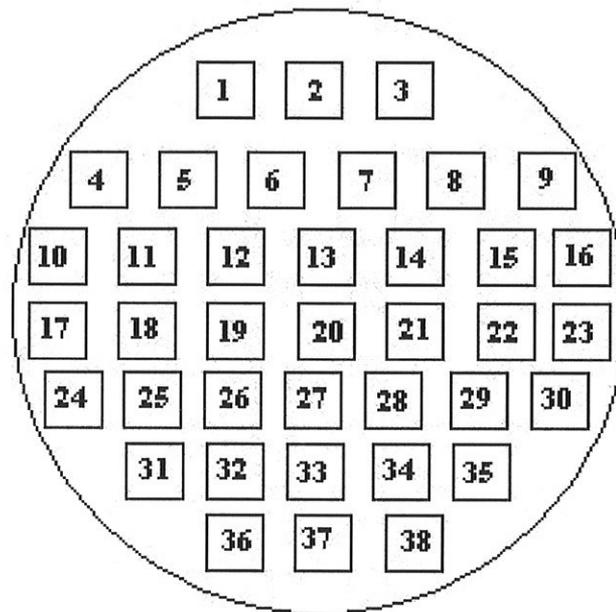
Neste contexto, busca-se maneiras alternativas de estudar o fenômeno de *exchange bias* em diferentes sistemas, sendo uma delas o método das irradiações iônicas [29,30,31,32,33,34,35]. Assim, decidimos fabricar um conjunto de filmes para serem irradiados ionicamente. Este conjunto de filmes consta de 38 filmes constituídos de Si(100)/Cu(20nm)/NiFe(10nm)/FeMn(10nm)/Ta(3nm). Antes da deposição, os substratos foram enumerados, para conhecermos sua posição no porta-substrato, e colados como mostrado na figura 3.9.

---

<sup>5</sup> A origem do campo magnético durante a deposição será explicada detalhadamente no próximo capítulo.

As irradiações iônicas foram realizadas no laboratório de Implantação Iônica da UFRGS, com a colaboração do Prof. Lívio Amaral. O estudo do efeito das irradiações iônicas nos filmes esteve baseado em medidas de  $M$  vs.  $H$  e medidas estruturais tais como: difração, refletometria e absorção de raios-x.

Na tabela 3.5 e 3.6 são apresentados os parâmetros utilizados para a irradiação iônica das amostras à  $T_{amb}$  e à  $T_{LN}$ , respectivamente.



**Figura 3.9 :** Substratos de silício colados sobre o porta-substrato da câmara de sputtering.

Amostra	Íons de irradiação	Energia (keV)	Dose (íons/cm <sup>2</sup> )
16	He	14	$8 \times 10^{13}$
21	He	14	$2 \times 10^{14}$
27	He	14	$4 \times 10^{14}$
36	He	14	$10^{15}$
12	Ne	25	$5 \times 10^{13}$
19	Ne	25	$10^{14}$
33	Ne	25	$6 \times 10^{14}$
35	Ne	25	$10^{15}$

**Tabela 3.5 :** Características das amostras irradiadas com íons de He e Ne à  $T_{LN}$ .

Amostra	Íons de irradiação	Energia (keV)	Dose (íons/cm <sup>2</sup> )
1	He	14	$4 \times 10^{13}$
4	He	14	$8 \times 10^{13}$
5	He	14	$10^{14}$
7	He	14	$2 \times 10^{14}$
8	He	14	$4 \times 10^{14}$
9	He	14	$6 \times 10^{14}$
11	He	14	$10^{15}$
15	He	14	$2 \times 10^{15}$
17	He	14	$3 \times 10^{15}$
18	He	17	$10^{15}$
24	He	20	$10^{15}$
28	Ne	25	$5 \times 10^{13}$
29	Ne	25	$10^{14}$
30	Ne	25	$3 \times 10^{14}$
31	Ne	25	$6 \times 10^{14}$
32	Ne	25	$8 \times 10^{14}$
38	Ne	25	$10^{15}$
NiFe	He	14	$6 \times 10^{14}$
NiFe	Ne	25	$6 \times 10^{14}$

Tabela 3.6 : Características das amostras irradiadas com íons de He e Ne à  $T_{amb}$

## Capítulo 4

### Resultados experimentais e análise

Neste capítulo, nós apresentamos os resultados experimentais do estudo sistemático dos filmes finos produzidos a partir de alvos das ligas de  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$  e  $\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$ . Este estudo foi baseado na análise de medidas magnéticas e estruturais, utilizando-se as diferentes técnicas de caracterização, descritas no capítulo anterior. Além disso, analisamos e descrevemos os resultados do efeito das irradiações iônicas nas propriedades magnéticas dos filmes.

#### 4.1 Espectroscopia por Retrospalhamento Rutherford (RBS)

Previamente à produção dos filmes estudados, determinamos a taxa de deposição dos *buffers* e do material magnético utilizado. Para isso, fabricamos e analisamos espectros de RBS, de três filmes de  $\text{Si}(100)/\text{Cu}$ ,  $\text{Si}(100)/\text{Ta}$ ,  $\text{Si}(100)/\text{NiFe}$  e  $\text{Si}(100)/\text{FeMn}$ , depositados durante 20, 40 e 60 minutos, respectivamente, utilizando uma pressão de 5mTorr e uma potência 100W. A espessura de cada filme foi estimada pela comparação entre os espectros experimentais e suas respectivas simulações, obtidas através do programa RUMP [96]. Desta maneira, obtivemos um gráfico que representa a espessura em função do tempo de deposição, como mostrado na figura 4.1.

Na figura 4.2, são mostrados os espectros RBS correspondentes a filmes com 20nm de espessura de cada material do alvo, usando os tempos de deposição obtidos através dos gráficos 4.1. Observamos que os espectros simulados reproduzem de maneira

correta os espectros experimentais, mostrando que o tempo de deposição estimado corresponde à espessura desejada.

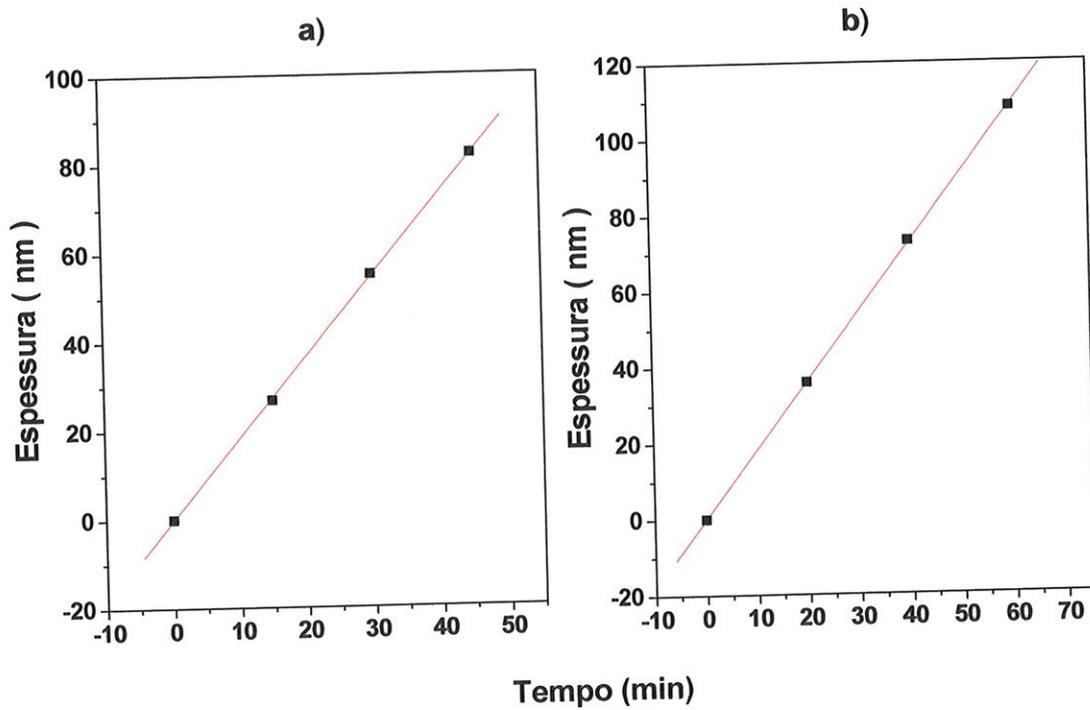
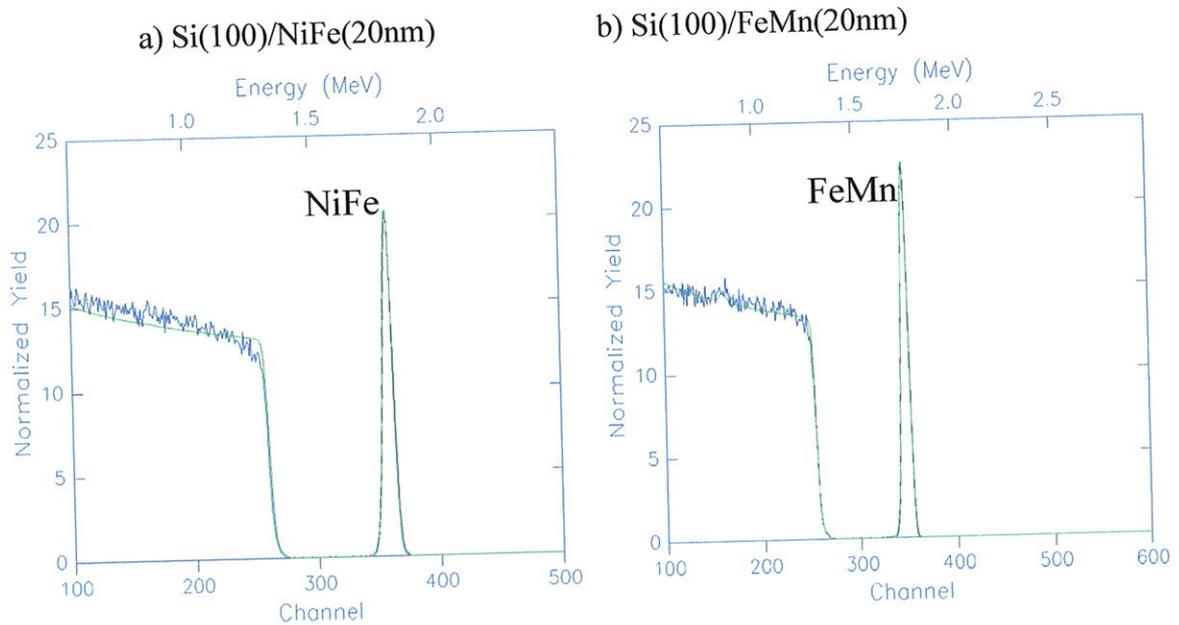
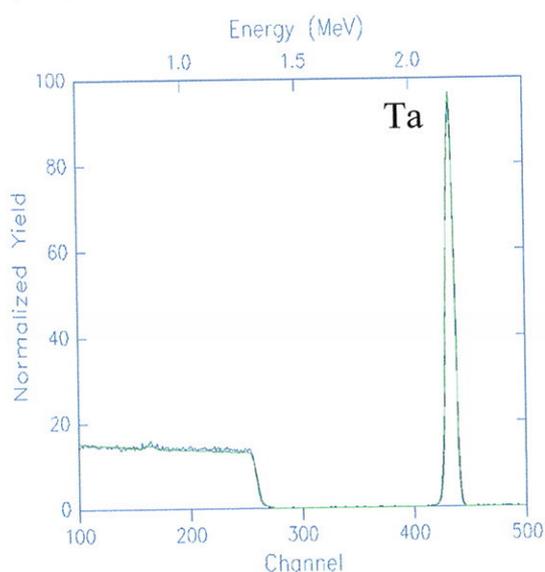


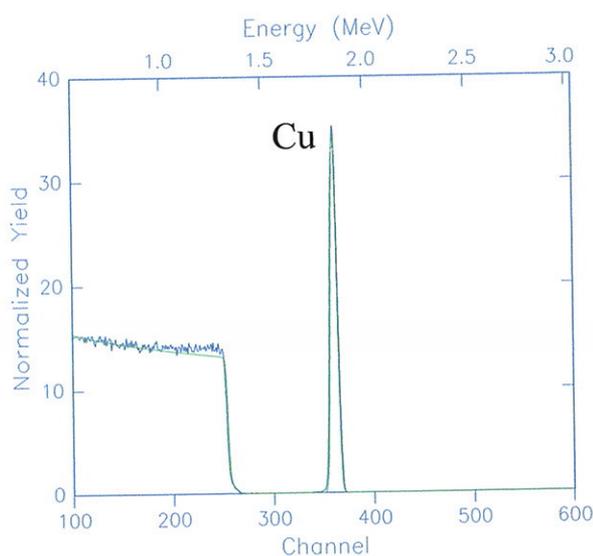
Figura 4.1: Gráfico da espessura vs. tempos de deposição de três filmes de (a) NiFe e (FeMn), depositados durante 20, 40 e 60 minutos.



c) Si(100)/Ta(20nm)



d) Si(100)/Cu(20nm)



**Figura 4.2:** Espectros RBS dos filmes (a)Si/NiFe, (b)Si/FeMn, (c)Si/Ta e (d)Si/Cu e suas respectivas simulações.

## 4.2 Estudo magnético e estrutural dos filmes produzidos com *buffers* e substratos utilizados

O  $\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$  é uma das ligas antiferromagnéticas mais utilizadas para o estudo das propriedades magnéticas de sistemas com *exchange bias* por várias razões, como por exemplo: sistemas FM/ $\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$  apresentam boas propriedades magnéticas, alto valor de  $H_{\text{exc}}$  e baixa coercividade, a liga antiferromagnética de  $\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$  apresenta alto valor de  $T_N$  e, principalmente, porque a liga  $\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$  não precisa de tempos longos de tratamento térmico para que se estabilize na fase antiferromagnética do FeMn (denominada fase  $\gamma$ ). Neste sentido, utilizamos alvos de  $\text{Ni}_{19}\text{Fe}_{81}$  (permalloy) e  $\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$  para produzir e estudar as propriedades magnéticas de amostras de NiFe(30nm)/FeMn(15nm).

Por outro lado, sabe-se que as propriedades magnéticas de sistemas com *exchange bias* dependem das características estruturais das bicamadas magnéticas. Assim por exemplo, foi relatado que os sítios dos átomos de Ni, Fe e Mn na célula unitária da sua estrutura cristalina muda com a textura cristalográfica de crescimento, que é induzida pelo *permalloy*, *buffer* e/ou substrato utilizados [5]. Também foi relatado que os filmes de NiFe/FeMn crescidos com uma forte textura cristalográfica na direção (111) apresentam melhores propriedades magnéticas [94].

Neste contexto, realizamos o estudo das propriedades magnéticas e estruturais das nossas amostras em função dos *buffers* e substratos utilizados.

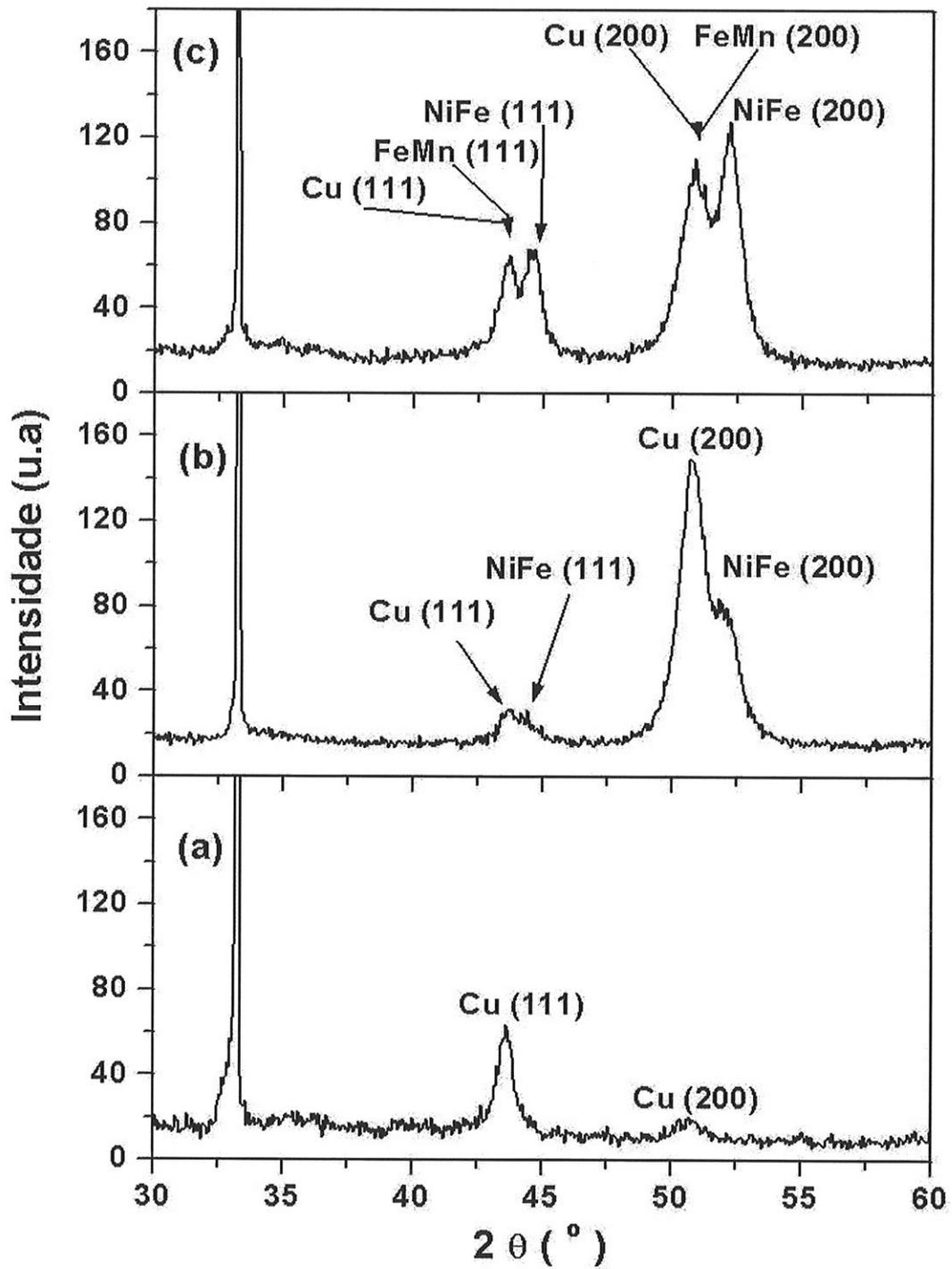
#### **4.2.1 Difração de raios-X**

Segundo a literatura, sistemas de NiFe/FeMn depositados sobre Ta e Cu apresentam uma única textura de crescimento, a textura (111) [5,91,92,94,95]. Além disso, segundo a literatura, o valor de campo de *exchange* depende do grau de texturização nesta direção cristalográfica [94,95]. Neste contexto, decidimos realizar medidas de difração de raios-X em filmes de Si(100)/*buffer*, Si(100)/*buffer*/NiFe e Si(100)/*buffer*/NiFe/FeMn, utilizando-se *buffers* de Cu e Ta. As figuras 4.3 e 4.4 ilustram os padrões de difração obtidos a partir destas medidas.

No difratograma 4.3a, correspondente ao filme de Si/Cu(20nm), observamos dois picos de difração do Cu. Um primeiro pico em  $43,6^\circ$  e outro pico muito pequeno em  $50,5^\circ$ . Estes picos de difração são indexados como sendo picos correspondentes à estrutura cristalina do Cu FCC com orientações cristalográficas nas direções (111) e (200), respectivamente. Vemos que a orientação preferencial de crescimento neste filme é a direção (111). O tamanho de grão ( $D_{hkl}$ ) é de 133 Å para a reflexão (111) de 84 Å para a reflexão (200).

Na seqüência, no difratograma correspondente ao filme Si/Cu/NiFe, observamos que houve a superposição dos picos de difração correspondente a cristalitos de NiFe sobre os picos do Cu. A camada de NiFe também apresenta uma estrutura cristalina FCC com direções cristalográficas (111) e (200). Podemos dizer que o *permalloy* cresceu nas mesmas direções cristalográficas imposta pelo Cu, contudo com orientação preferencial de crescimento na direção (200). O tamanho de grão da camada de NiFe é de 106 Å para a reflexão (111) de 100 Å para a reflexão (200). Por outro lado, o valor do tamanho de grão da camada de cobre tanto na direção cristalográfica (111) como (200) é o mesmo valor encontrado no filme de Si/Cu.

Continuando, na figura 4.3c, é mostrado o difratograma do filme Si/Cu/NiFe/FeMn. Observamos que a camada de Fe<sub>50</sub>Mn<sub>50</sub> depositada sobre NiFe se estabilizou na fase antiferromagnética do FeMn (fase  $\gamma$ ) de estrutura FCC.



**Figura 4.3** : Difractogramas dos filmes (a) Si(100)/Cu (A1), (b) Si(100)/Cu/NiFe (A2) e (c) Si(100)/Cu/NiFe/FeMn (A3), respectivamente.

Do mesmo modo que no filme de Si/Cu/NiFe, a camada de FeMn cresceu nas direções cristalográficas impostas pelas camadas anteriores. O tamanho de grão do FeMn é de 55 Å para a reflexão (111) de 111 Å para a reflexão (200).

Posteriormente, na figura 4.4a, 4.4b e 4.4c são apresentados os difratogramas dos filmes de Si(100)/Ta, Si(100)/Ta/NiFe e Si(100)/Ta/NiFe/FeMn, respectivamente. No difratograma 4.4a, observamos que a camada de tântalo apresenta estrutura tetragonal, com três picos de difração que correspondem às orientações (002), (410) e (202). Em seguida, no difratograma correspondente ao filme Si/Ta/NiFe (figura 4.4b), além dos picos do tântalo, observamos um pico em  $44,5^\circ$ . Este pico corresponde a camada de NiFe, a qual apresenta uma estrutura FCC, com uma única direção preferencial de crescimento, a direção (111). O tamanho de grão para esta reflexão é de 139 Å. Finalmente, no difratograma da figura 4.4c, observamos picos de difração superpostos correspondentes a camada de Cu, NiFe e FeMn. O tamanho de grão desta última camada é de 79 Å.

Baseados nestes resultados vemos que o Ta é o *buffer* adequado para que ambas camadas magnéticas cresçam na direção cristalográfica (111). No entanto, como veremos na próxima seção nos resultados da caracterização magnética, no caso das nossas amostras, os filmes depositados sobre o *buffer* de Cu apresentam melhores propriedades magnéticas quando comparados com filmes depositados sobre Ta. Portanto, podemos dizer que não há uma correlação clara entre a direção cristalográfica e/ou tamanho de grão dos filmes com o campo de *exchange*.

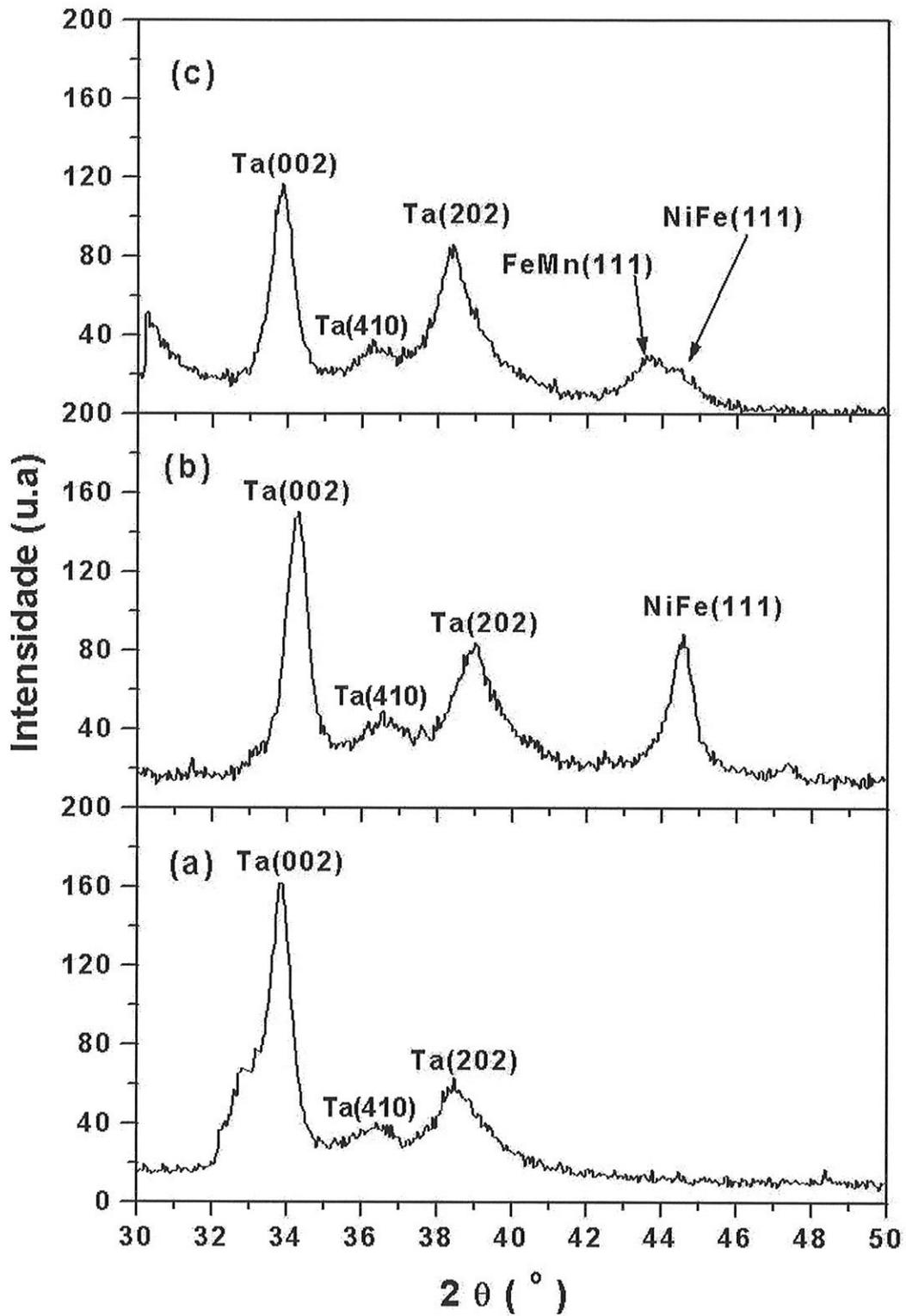


Figura 4.4 : Difrátogramas dos filmes (a) Si(100)/Ta, (b) Si(100)/Ta/NiFe e (c) Si(100)/Ta/NiFe/FeMn, respectivamente

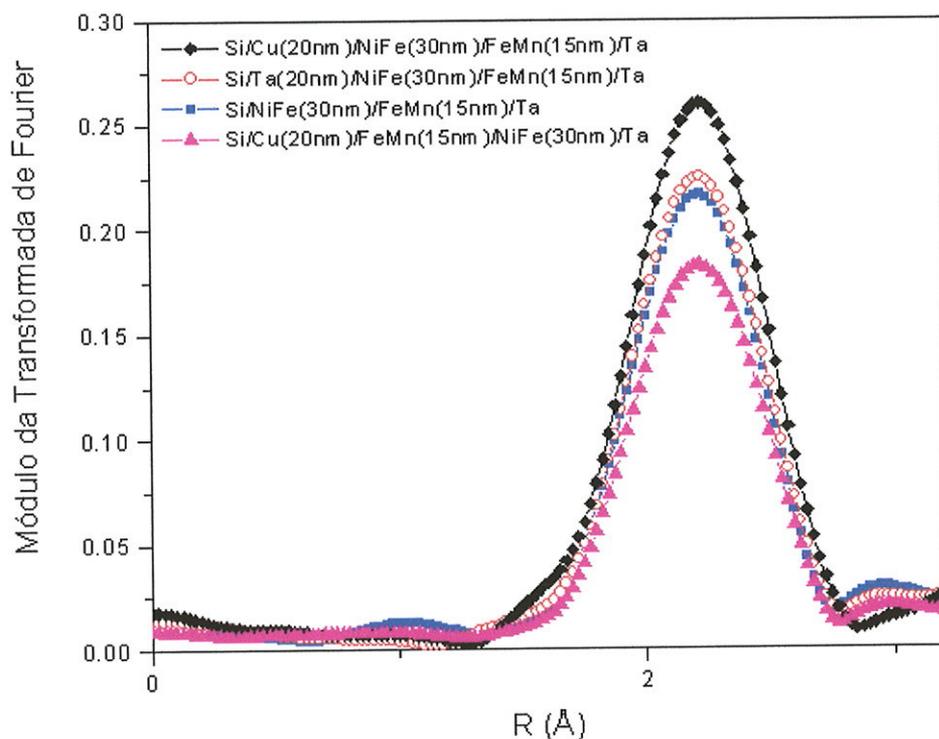
#### **4.2.2 Absorção de raios-x**

Os filmes produzidos, utilizando-se diferentes *buffers*, também foram analisados através da técnica de absorção de raios-x. Este estudo teve por finalidade identificar possíveis mudanças estruturais locais e correlacioná-las com as propriedades magnéticas das amostras. Os filmes analisados foram bicamadas magnéticas de NiFe(30nm)/FeMn(15nm) depositadas sobre Si(100), Si(100)/Cu e Si(100)/Ta.

Como explicado no capítulo anterior, através da técnica de EXAFS foi possível extrair informação da desordem estrutural local dos filmes. Analisamos comparativamente o pico principal do módulo das transformadas de Fourier dos espectros experimentais de EXAFS correspondente aos primeiros vizinhos de coordenação, mostrados na figura 4.5. Primeiramente observamos que este pico está localizado na mesma posição do espectro de EXAFS de todas as amostras analisadas (entre 1,3 e 2,8Å). Este resultado nos indica que a distância interatômica entre o átomo central (átomo de Mn) e os átomos da primeira esfera de coordenação não varia. Por outro lado, observamos que dependendo da amostra analisada este pico apresenta diferentes áreas, indicando diferentes graus de desordem na estrutura local dos filmes.

Analisando com mais detalhe estes resultados, vemos que a amostra onde as bicamadas de NiFe/FeMn foram depositadas sobre o *buffer* de Cu apresenta menor desordem comparado com os filmes utilizando o *buffer* de Ta e Si(100). Por outro lado, segundo os resultados da caracterização magnética destes filmes, que serão apresentados posteriormente, o valor de  $H_{exc}$  é maior no filme com *buffer* de Cu.

Na figura 4.5, também é mostrada a transformada de Fourier das oscilações de EXAFS do espectro de absorção na borda do Mn do filme Si/Cu/FeMn/NiFe/Ta, onde a deposição da seqüência das camadas magnéticas foi invertida. Esta amostra foi obtida através do procedimento FC. Observamos que a desordem estrutural local dela é ainda maior que nos outros filmes. Este resultado está em concordância com o resultado da caracterização magnética dos filmes, apresentados a seguir.



**Figura 4.5** : Pico principal das transformadas de Fourier das oscilações de EXAFS dos espectros de absorção de raios-X na borda do Mn para as amostras Si/Cu/NiFe/FeMn/Ta (A4), Si/Ta/NiFe/FeMn/Ta (A8), Si/NiFe/FeMn/Ta (A11) e Si/FeMn/NiFe/Ta (A12).

### 4.2.3 Caracterização magnética

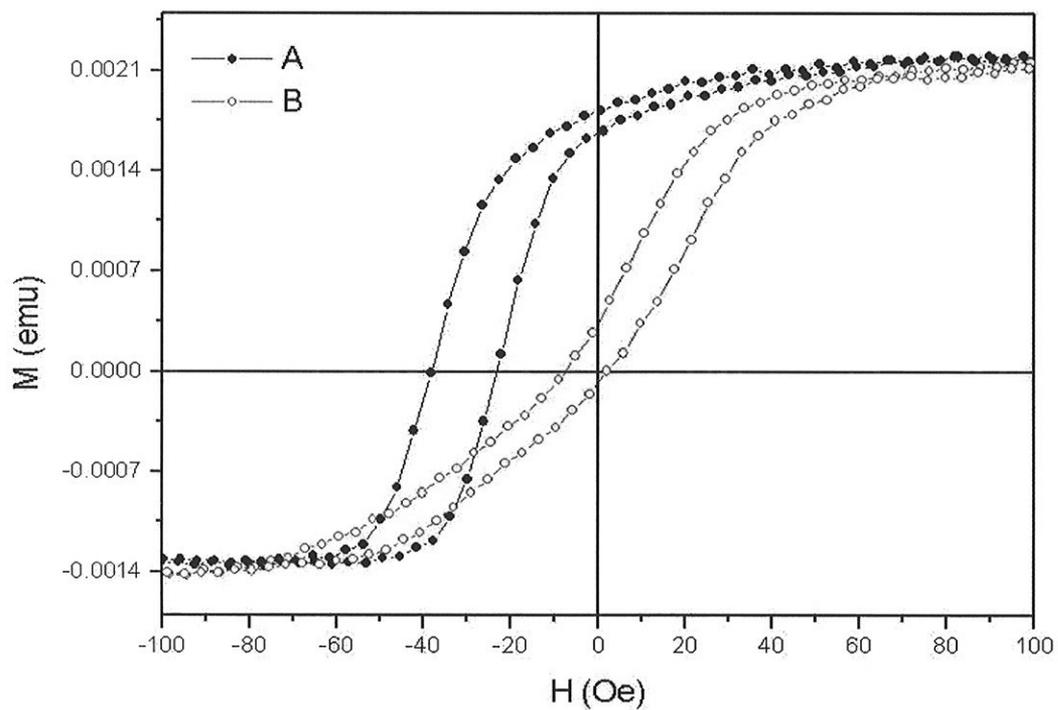
#### 4.2.3.1 Caracterização magnética das amostras logo após a produção

Como mencionado no capítulo anterior, a análise das propriedades magnéticas de todos os filmes foi baseada em medidas de  $M$  vs.  $H$  realizadas no VSM. Estas medidas foram feitas, logo após a obtenção das amostras, sempre no plano do filme, nas duas direções descritas na seção 3.1.3.1 e esquematizadas na figura 3.7.

Observamos que todas as amostras de Si/*buffer*/NiFe/FeMn apresentam curvas de histerese, como as ilustradas na figura 4.6. Quando o campo de varredura ( $H_r$ ) é aplicado na direção radial para fora do porta-substrato vemos curvas deslocadas com relação à origem, com valores diferentes de campo de *exchange*, que dependem do *buffer* utilizado,

sendo o sentido do deslocamento negativo. Aplicado-se o campo de medida ( $H_p$ ) perpendicular à direção radial do porta-substrato observamos curvas de histerese que passam pela origem. Estes resultados indicam que todas estas amostras apresentam anisotropia unidirecional, logo após a sua obtenção por *sputtering*.

Segundo a literatura, sistemas FM/AFM apresentam acoplamento de *exchange* logo após sua obtenção quando as bicamadas magnéticas são depositadas aplicando-se um campo magnético externo [2]. O campo externo tem por objetivo orientar o FM. Desta maneira, a camada ferromagnética aprisiona os spins interfaciais da camada AFM, minimizando a formação de domínios na camada antiferromagnética. Amostras obtidas através deste procedimento apresentam uma curva de histerese deslocada no sentido oposto ao campo de deposição [1,2,3].



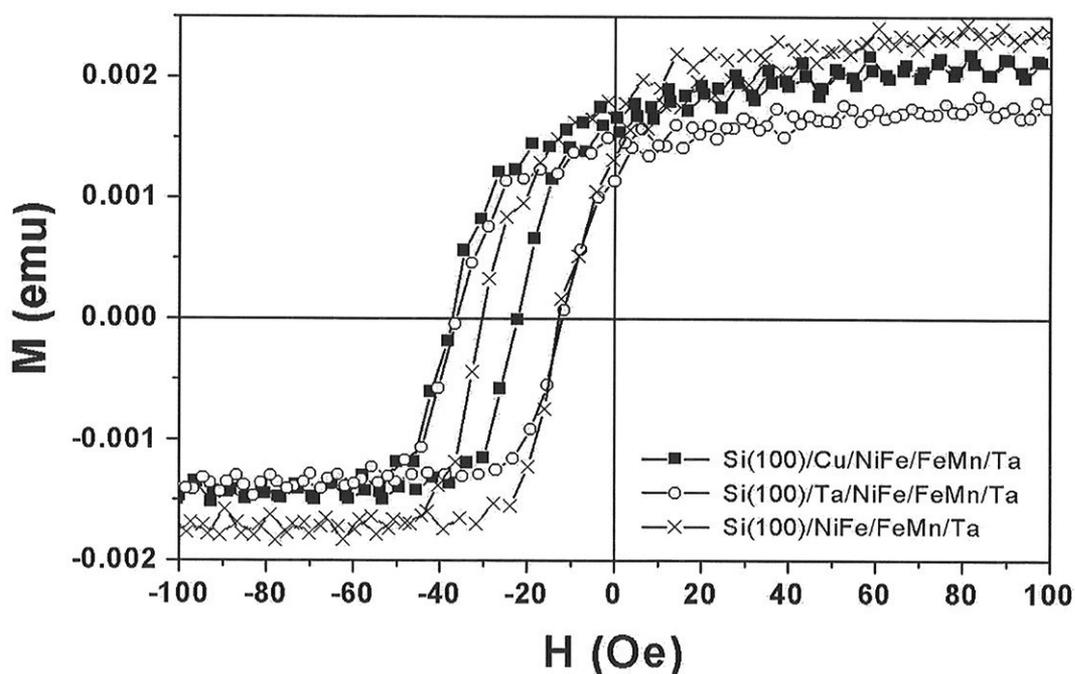
**Figura 4.6** : Curvas de histerese da amostra de Si/Cu/NiFe/FeMn, medidas aplicando o campo de varredura (A) no eixo fácil e (B) no eixo duro do filme.

No caso das nossas amostras, descobrimos que os ímãs que formam parte do sistema de *magnetron sputtering* utilizado na produção dos filmes induzem um campo

magnético de aproximadamente 15 Oe no porta-substrato. Sendo a coercividade do *permalloy* de aproximadamente 4 Oe, concluímos que esse campo magnético é suficiente para saturar a camada ferromagnética e obter bicamadas FM/AFM bem acopladas.

O sentido negativo do deslocamento das curvas de histerese de todas as amostras nos indica que o campo magnético gerado pelos canhões de deposição sobre o porta-substrato é radial e dirigido para dentro.

Em seguida, são apresentados os resultados da caracterização magnética das amostras produzidas com diferentes substratos e *buffers*. As curvas de histerese destas amostras são mostradas na figura 4.7 e 4.8. Como dito anteriormente, todas as amostras apresentam anisotropia unidirecional. Podemos ver que quando as bicamadas magnéticas são depositadas sobre algum *buffer* é indiferente utilizar substrato de Si(100) ou Si(111). No entanto, obtemos diferentes valores de  $H_{exc}$  de acordo ao *buffer* utilizado, como mostrado na tabela 4.1. Podemos dizer que as propriedades magnéticas são influenciadas diretamente pelo *buffer* utilizado. As amostras depositadas sobre Cu apresentam as melhores propriedades magnéticas, alto valor de  $H_{exc}$  e baixa coercividade.



*Figura 4.7: Curvas de histerese das amostras produzidas com diferentes buffers e substrato de Si(100).*

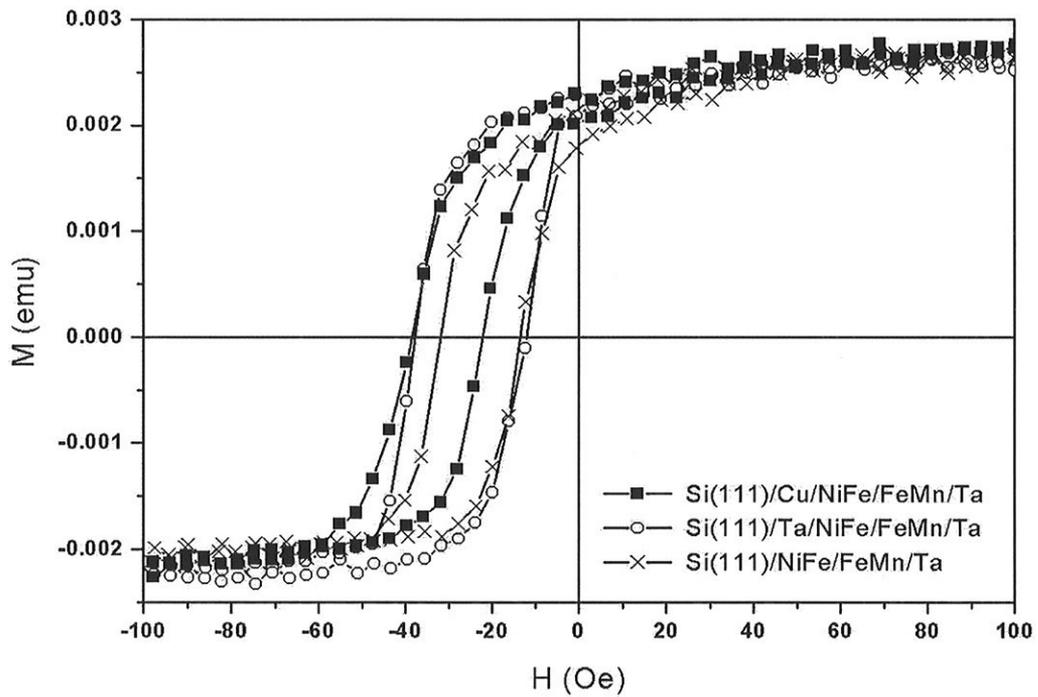


Figura 4.8: Curvas de histerese das amostras produzidas com diferentes buffers e substrato de Si(111).

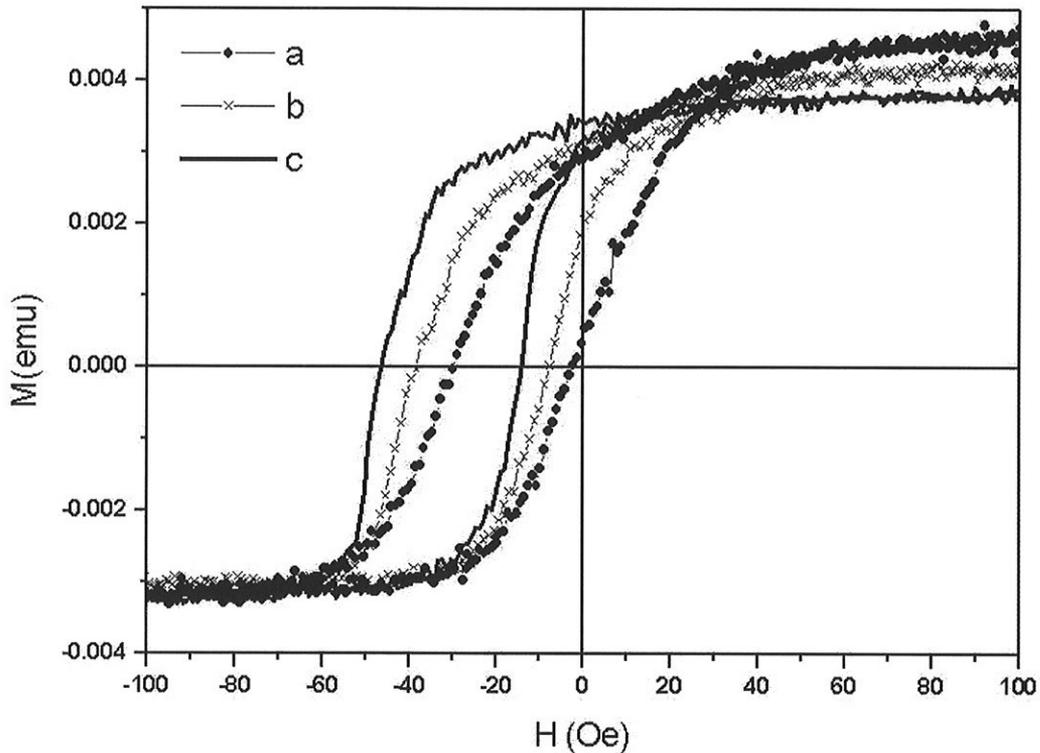
Amostras	Si(100)		Si(111)	
	$H_{exc}$	$H_c$	$H_{exc}$	$H_c$
Cu(20nm)/NiFe(30nm)/FeMn(15nm)/Ta	30	8	30	9
Ta(20nm)/NiFe(30nm)/FeMn(15nm)/Ta	24	12	26	13
NiFe(30nm)/FeMn(15nm)/Ta	22	9	22	9

Tabela 4.1: Valores de  $H_{exc}$  e  $H_c$  dos filmes de NiFe(30nm)/FeMn(15nm)/Ta(3nm), depositados sobre Si(100), Si(111) e buffers de Cu e Ta.

Baseados nestes resultados, concluímos que o *buffer* de Cu favorece ao acoplamento de *exchange* e, portanto a obtenção de amostras com boas propriedades magnéticas.

Também estudamos a influência da espessura do cobre no crescimento da camada de NiFe e em consequência no acoplamento de *exchange*. Assim, fabricamos filmes de

Si(100)/Cu(tnm)/NiFe(30nm)/FeMn(15nm)//Ta(3nm), com  $t = 20, 40$  e  $60$  nm. As curvas de histerese destas amostras são apresentadas na figura 4.9.



**Figura 4.9** : Curvas de histerese dos filmes de Si(100)/Cu(t)/NiFe(30nm)/FeMn(15nm)//Ta(3nm), onde  $t$  (a)60nm, (b)40nm e (c)20nm

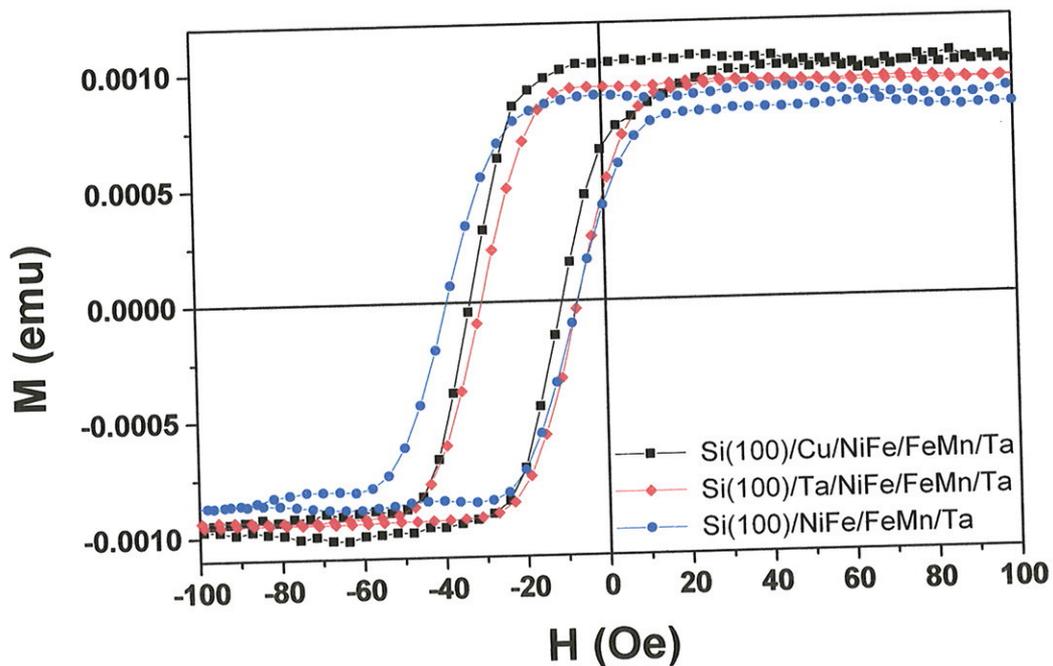
Vemos que à medida que aumenta a espessura de Cu, elas ficam menos retangulares e mais inclinadas.

No caso da amostra com  $t = 60$  nm, as curvas de histerese medidas aplicando o campo de varredura na direção radial e transversal do porta-substrato se encontram deslocadas da origem. Este resultado nos sugere que com o aumento da espessura do Cu alguns parâmetros estruturais mudaram induzindo uma anisotropia diferente nas bicamadas magnéticas. Também observamos que a amostra com 20nm apresenta o menor valor de  $H_{exc}$  encontrado em amostras produzidas anteriormente (30Oe), o que significa que as propriedades magnéticas dos filmes fabricados por *sputtering* são reprodutíveis. O valor de  $H_{exc}$  desta amostra também é comparável ao valor encontrado na literatura [93].

Após esta análise, os filmes fabricados para os estudos seguintes foram feitos utilizando-se 20 nm de espessura para a camada de Cu.

#### 4.2.3.2 Caracterização magnética das amostras depois de realizado o procedimento FC.

Como dito anteriormente, outra maneira de obter sistemas com *exchange bias* bem acoplados é realizando o procedimento FC. De um ponto de vista magnético, através deste procedimento os momentos da camada AFM são bloqueados pelo FM, estabilizando assim o acoplamento de *exchange*. Neste contexto, nós decidimos verificar o valor de  $H_{exc}$  das nossas amostras após este procedimento. Em nosso caso a temperatura de tratamento utilizada foi de 235°C e o resfriamento foi feito na presença de um campo magnético de 5kOe. Na figura 4.10, são apresentadas as curvas de histerese das amostras produzidas sobre Si(100) com diferentes *buffers* e submetidas ao procedimento FC e na tabela 4.2 são apresentados os valores de  $H_{exc}$  e  $H_c$  das mesmas.



**Figura 4.10** : Curvas de histerese das amostras produzidas com diferentes *buffers* e substrato de Si(100), tratados termicamente até  $T=235^{\circ}\text{C}$  e resfriados na presença de um campo magnético de 5kOe.

Amostras	$H_{exc}$	$H_c$
Si/Cu/NiFe(30nm)/FeMn(15nm)/Ta	23	12
Si/Ta/ NiFe(30nm)/FeMn(15nm)/Ta	23	16
Si/NiFe(30nm)/FeMn(15nm)/Ta	22	12

Tabela 4.2: Valores de  $H_{exc}$  e  $H_c$  das amostras com diferentes buffers tratados termicamente até  $T=235^\circ C$  e resfriados na presença de um campo magnético de 5kOe.

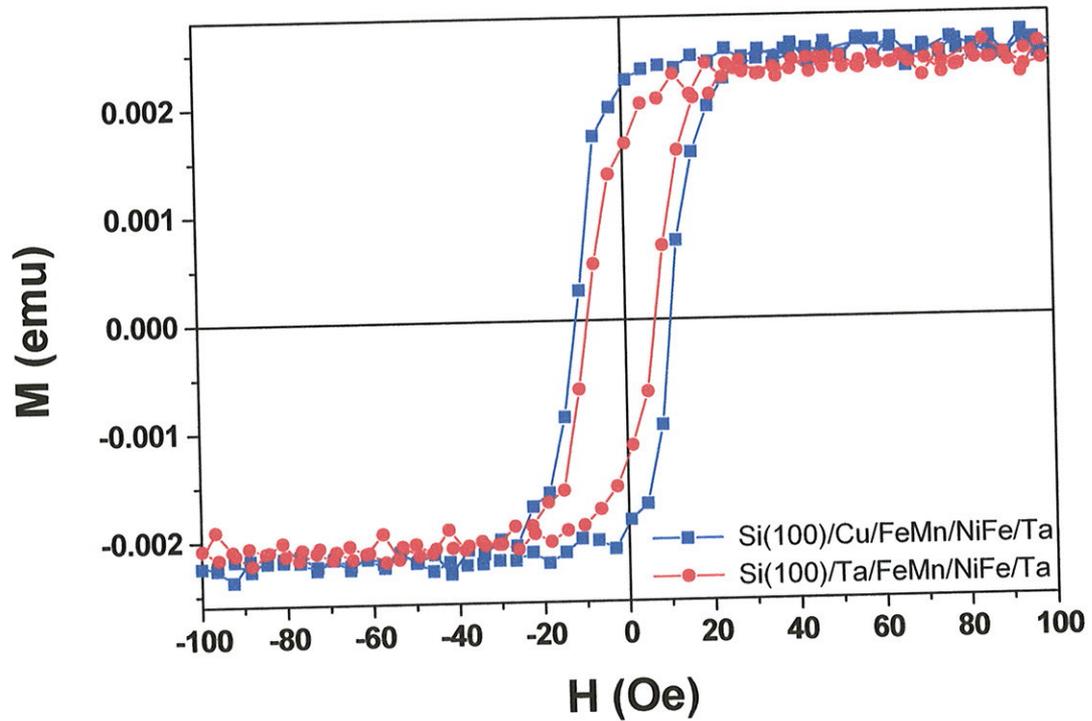
Observamos que as curvas de histerese são mais retangulares em relação às curvas de histerese das mesmas amostras não tratadas e que o valor de  $H_{exc}$  de todas elas é de aproximadamente 23 Oe. Contudo, este valor é menor comparado com o campo de *exchange* dos filmes com Cu sem tratamento térmico.

Como apresentado na seção 3.1.3.1 do capítulo anterior, as medidas magnéticas das nossas amostras foram feitas utilizando o novo arranjo experimental do VSM, que nos permite medir valores de  $H_{exc}$  e  $H_c$  com maior precisão. Neste contexto, com o objetivo de medir a incerteza destas medidas, realizamos vinte medidas de  $M$  vs.  $H$  de uma amostra de Si(100)/Cu(20nm)/NiFe(30nm)/FeMn(15nm)/Ta(3nm) e calculamos o desvio padrão do valor de  $H_{exc}$ . Portanto, a incerteza associada às medidas de  $M$  vs.  $H$  é de  $\pm 2Oe$ .

### 4.3 Estudo do acoplamento de *exchange bias* em função da seqüência de deposição e espessura das camadas magnéticas

Uma vez estabelecido o melhor procedimento para obtenção de filmes de NiFe/FeMn com boas propriedades magnéticas e o *buffer* que favorece ao acoplamento de *exchange* das nossas amostras, produzimos e estudamos as propriedades magnéticas das amostras em função da seqüência de deposição e espessura das camadas magnéticas.

Como visto na seção anterior, nós obtivemos filmes de NiFe/FeMn bem acoplados logo após sua produção. No entanto, como mostrado na figura 4.11, as curvas de histerese dos filmes de FeMn/NiFe apresentam  $H_{exc} = 0$  e campo coercivo de 7 Oe, valor próximo ao  $H_c$  do *permalloy*. Este resultado nos sugere que grande parte da configuração antiferromagnética na interface poderia ser uma interface compensada e, em conseqüência não existiria acoplamento de *exchange*.



*Figura 4.11: Curvas de histerese de amostras de FeMn/NiFe com diferentes buffer.*

Neste sentido, decidimos induzir a anisotropia unidirecional através do procedimento FC. Na figura 4.12, são apresentadas as curvas de histerese destas amostras. Observamos que somente a curva de histerese do filme com Cu apresenta deslocamento, sendo o valor de  $H_{\text{exc}}$  de 27 Oe. Neste caso, podemos dizer que o procedimento FC alterou a estrutura de domínios da camada antiferromagnética.

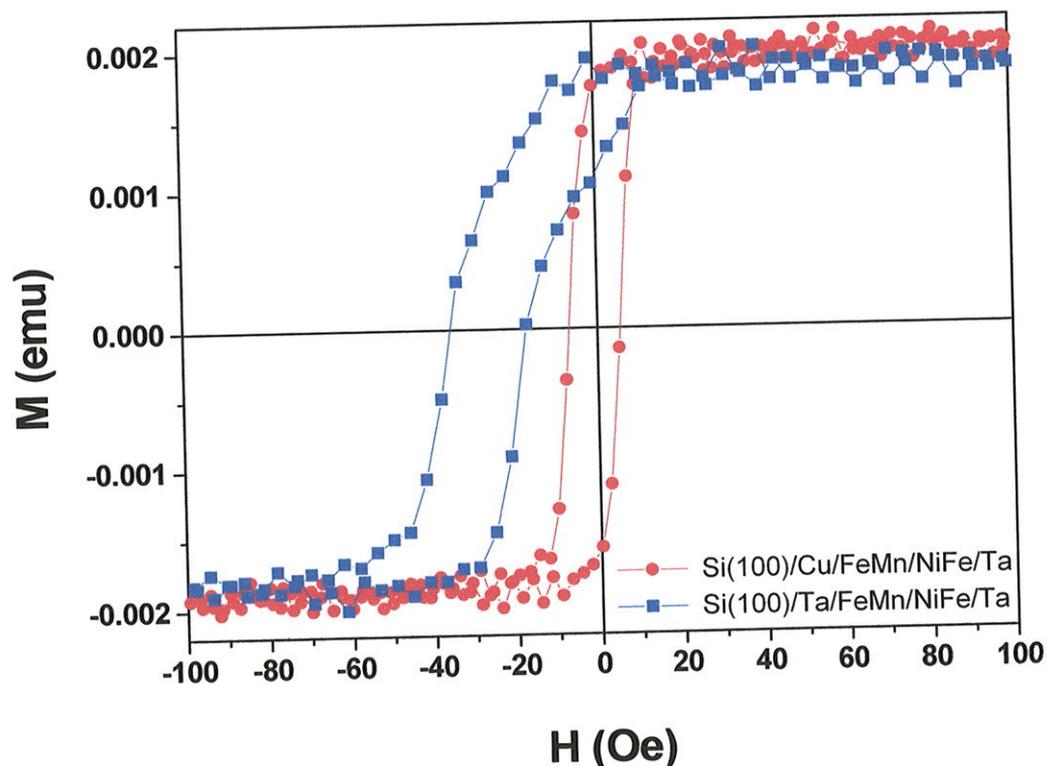
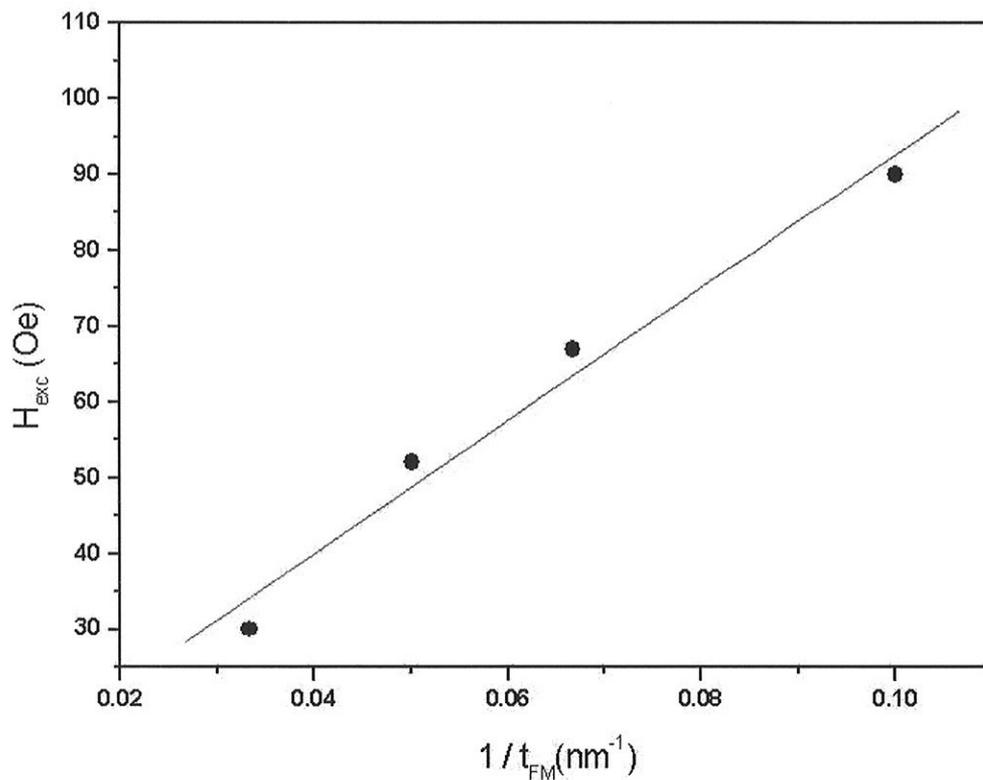


Figura 4.12: Curvas de histerese das mesmas amostras da figura anterior, após realizarmos o procedimento FC.

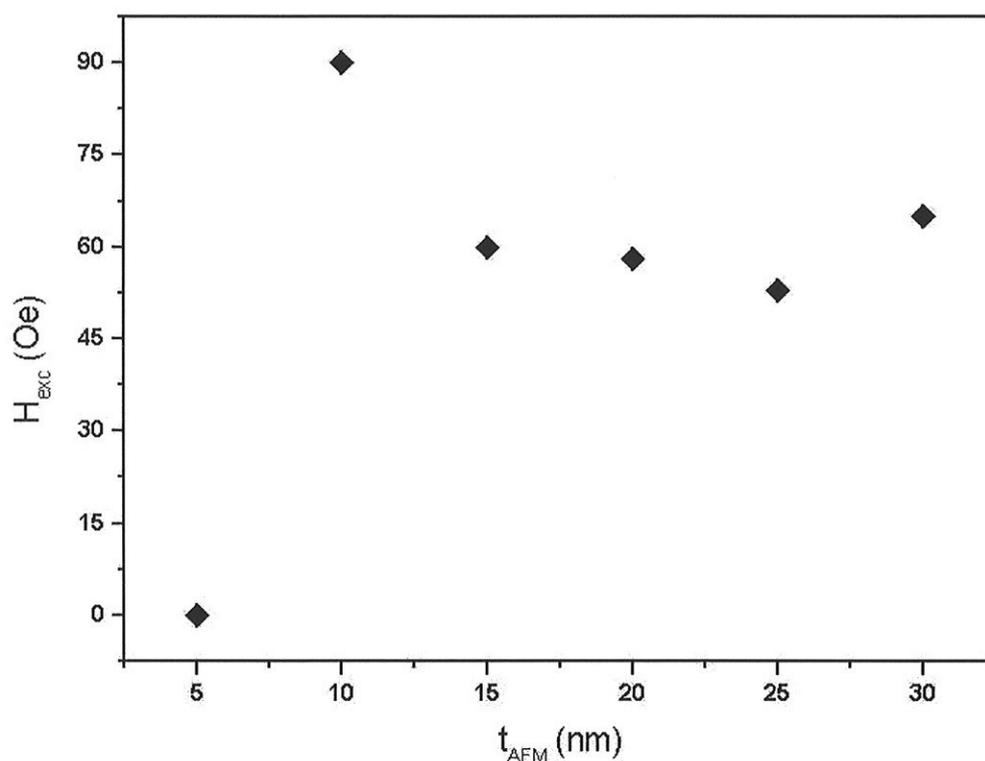
Em seguida, estudamos o acoplamento de *exchange* em função da espessura das camadas magnéticas. As amostras produzidas foram filmes de Si(100)/Cu(20nm)/NiFe/FeMn/Ta, onde variou-se a espessura da camada ferromagnética entre 5 e 30 nm e manteve-se fixa a camada antiferromagnética em 10nm de espessura. Posteriormente variou-se a espessura da camada antiferromagnética entre 5 e 30 nm e manteve-se fixa a camada ferromagnética em 10nm de espessura.

Na figura 4.13 é mostrada a dependência de  $H_{exc}$  em função da espessura da camada ferromagnética ( $t_{FM}$ ). Segundo estes resultados, podemos observar que o campo de *exchange bias* decresce monotonicamente com o incremento da espessura de NiFe. Ele segue a relação  $H_{exc} \propto 1/t_{FM}$ , sugerido no modelo inicial de *exchange bias* [1].



*Figura 4.13 : Valores experimentais de  $H_{exc}$  em função da espessura da camada ferromagnética.*

Na figura 4.14, é mostrada a dependência de  $H_{exc}$  em função da espessura da camada antiferromagnética ( $t_{AFM}$ ). Observamos que o filme com 10nm de  $t_{AFM}$  sistematicamente apresenta o maior valor de  $H_{exc}$ . Para  $t_{AFM}$  menor que 10nm não há acoplamento de *exchange* FM/AFM. Acima de 10 nm o valor do campo de *exchange* diminui, permanecendo quase constante nos filmes com espessuras entre  $15\text{nm} < t_{AFM} < 30\text{nm}$ . Podemos deduzir que para  $t_{AFM}$  menores que 10nm o filme antiferromagnético não é contínuo. Ele se encontraria formado de ilhas com domínios instáveis que rotacionam juntamente com a camada ferromagnética durante a aplicação do campo de varredura. Este resultado está em concordância com os obtidos na literatura [90,93].



**Figura 4.14** : Valores experimentais de  $H_{exc}$  em função da espessura da camada antiferromagnética.

#### 4.4 Caracterização magnética de amostras produzidas em conjunto

Como mencionado no capítulo anterior, 38 filmes constituídos de Si(100)/Cu(20nm)/NiFe(10nm)/FeMn(10nm)/Ta(3nm) foram produzidos em conjunto para estudar o efeito das irradiações sobre as propriedades magnéticas dos mesmos. Na figura 3.10 é mostrado o esquema da posição destes filmes no porta-substrato. Previamente às irradiações iônicas todas estas amostras foram caracterizadas magneticamente.

Segundo estas medidas observamos que todas as amostras apresentam anisotropia unidirecional. Em parte, estes resultados eram esperados, uma vez que, como visto nos filmes produzidos para outros estudos, o nosso sistema de *sputtering* é adequado para a produção de sistemas com *exchange bias* ordenados e bem acoplados. Todavia, observamos diferenças nas curvas de histerese de amostras localizadas em diferentes

posições do porta-substrato. Assim, para entender melhor estes resultados apresentaremos curvas de histerese das amostras produzidas em conjunto divididas em dois grupos: amostras localizadas nas posições externas do porta-substrato e amostras localizadas no centro do porta-substrato.

Na figura 4.15, apresentamos curvas de histerese, obtidas no VSM, de quatro amostras localizadas nas posições 10, 23, 2 e 37 do porta-substrato. Estas medidas foram feitas aplicado-se  $H$  no sentido radial do porta-substrato<sup>6</sup>. O valor de  $H_{exc}$  e  $H_c$  destas amostras é de aproximadamente 75 e 15 Oe, respectivamente. As curvas de histerese são razoavelmente retangulares, mostrando que as camadas ferro/antiferromagnéticas foram ordenadas durante a deposição. A partir destes resultados verificamos uma vez mais que o campo magnético gerado pelos canhões de deposição sobre o porta-substrato é suficiente para a obtenção de sistemas bem acoplados. Verificamos também que o sentido do deslocamento do campo de *exchange* está relacionado com a orientação da camada ferromagnética, induzida pelo campo magnético no sistema de *sputtering*. De modo que, se aplicarmos o campo de saturação no sentido contrário à orientação da campo de deposição,  $H_{exc}$  terá sinal negativo. Portanto, concluímos que o campo magnético de deposição é radial e dirigido para dentro. Todavia, observamos que o valor de  $H_{exc}$  destas amostras é inferior ao valor de  $H_{exc}$  de amostras com a mesma espessura, produzidas anteriormente. (vide figuras 4.13 e 4.14).

As curvas de histerese das amostras localizadas no centro do porta-substrato são mostradas na figura 4.16. Observamos que elas apresentam duas histereses, no primeiro e terceiro quadrante do gráfico  $M$  vs.  $H$ .

---

<sup>6</sup>O sentido radial do porta-substrato ao qual nos referimos corresponde à direção radial e o sentido dirigido para fora.

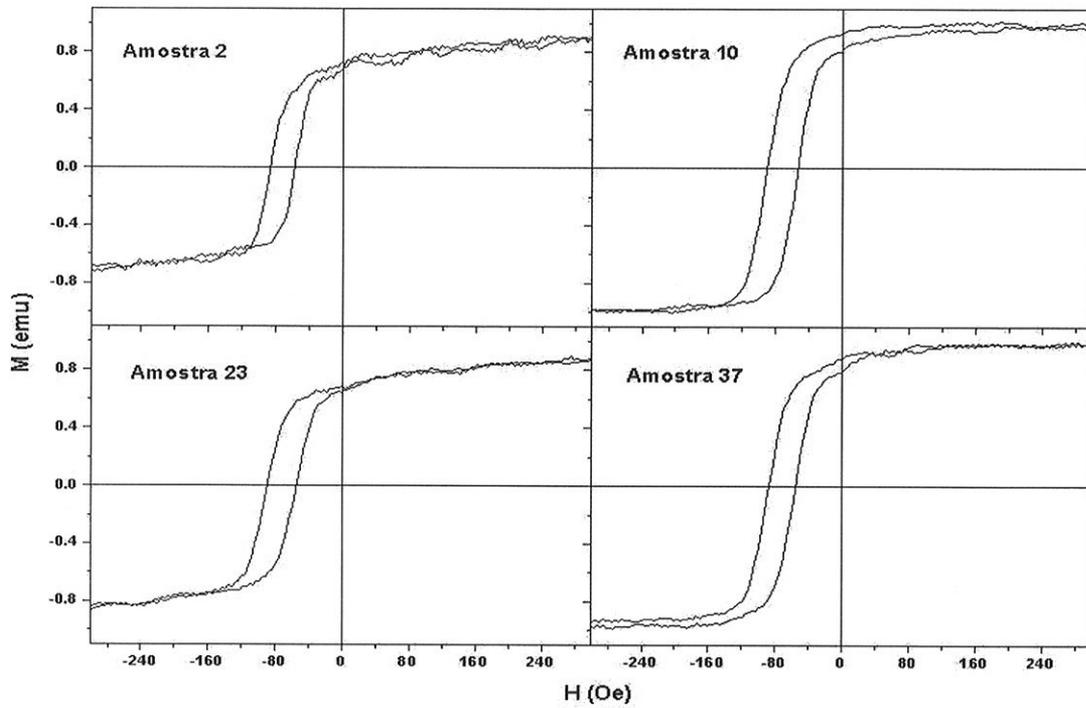


Figura 4.15 : Curvas de histerese das amostras colocadas nas posições externas do porta-substrato.

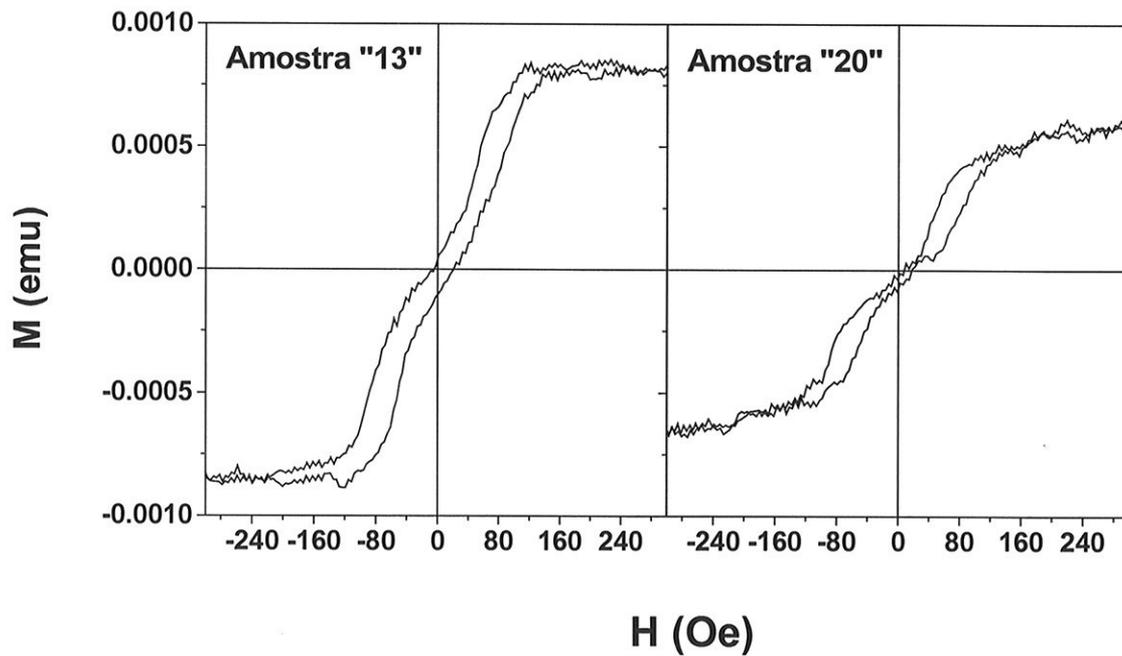
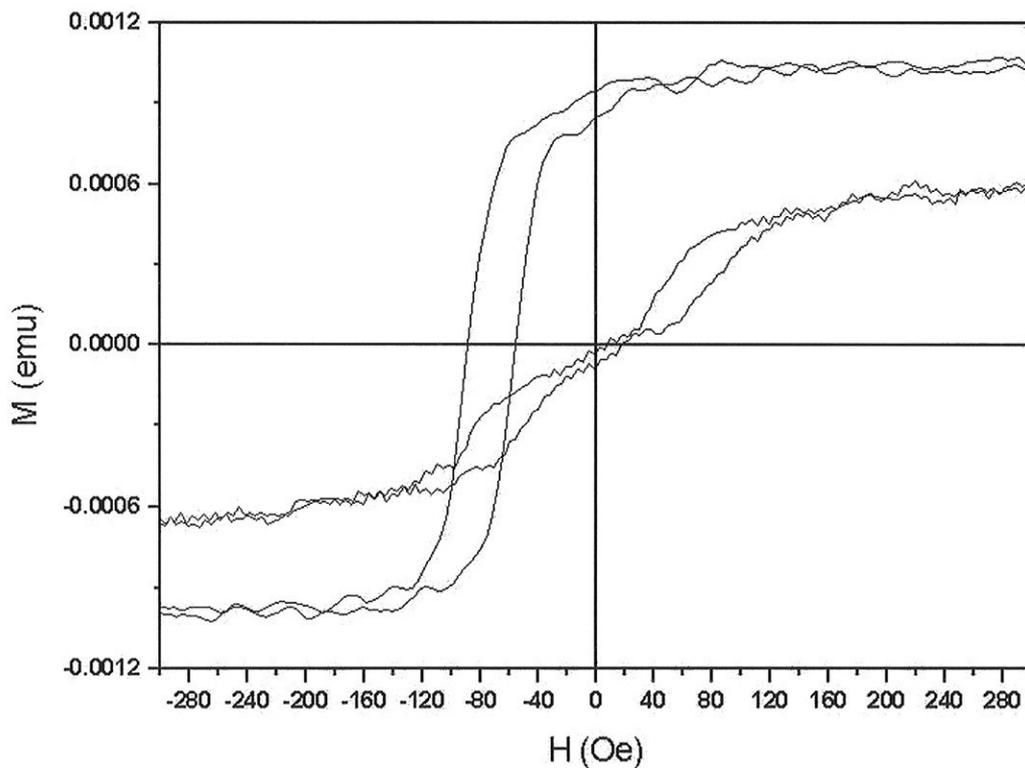


Figura 4.16 : Curvas de histerese de amostras situadas na região central do porta-substrato

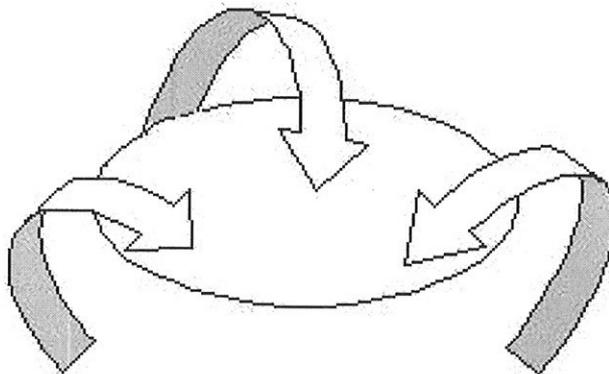
Este comportamento nos sugere que durante a deposição a camada ferromagnética foi dividida em domínios que apresentam componentes de magnetização orientadas em direções contrárias e, portanto, as amostras apresentam regiões com anisotropias unidirecionais opostas. Uma hipótese para este resultado seria que o campo de deposição nas amostras seria inferior ao campo de saturação da camada FM. Esta hipótese foi confirmada após estas amostras serem tratadas termicamente até  $T > T_N$ , e resfriadas na presença de um campo magnético externo. Através deste procedimento, a camada ferromagnética foi reorientada pelo campo magnético externo, para acoplar-se à camada antiferromagnética. O valor de  $H_{exc}$  e  $H_c$  das amostras tratadas é de aproximadamente 75 e 15 Oe, respectivamente. Estes valores são os mesmos obtidos nas amostras depositadas nas posições externas do porta-substrato. Na figura 4.17, mostramos as curvas de histerese correspondentes à amostra 13, medidas antes e após o tratamento térmico.



*Figura 4.17: Curvas de histerese da amostra 20, medidas antes e após o procedimento FC.*

Portanto, concluímos que a anisotropia unidirecional das nossas amostras depende do sentido das linhas de campo que chegam até o porta-substrato, provenientes dos canhões do sistema de *sputtering* utilizado. Este campo magnético é suficiente para ordenar a camada ferromagnética e obtermos amostras bem acopladas, com propriedades magnéticas otimizadas. Isto é possível uma vez que a coercividade do *permalloy* é muito baixa (aproximadamente 4 Oe) de modo que um campo magnético acima deste valor já é suficiente para ordená-lo. Pela geometria do sistema de *sputtering*, deduzimos que as linhas de campo chegam até o porta-substrato com componentes na direção radial do mesmo, como esquematizado na figura 4.18. Assim, no centro do porta-substrato as amostras ficam submetidas a campos magnéticos, cuja componente planar é relativamente baixa, gerando uma estrutura de domínios na camada ferromagnética.

A partir deste resultado, adotamos como sentido negativo para os campos magnéticos de medida a direção radial e o sentido para dentro no porta-substrato.



**Figura 4.18** : Esquema das linhas de campo magnético na região do porta-substrato.

## 4.5 Caracterização magnética e estrutural das amostras irradiadas com íons de He e Ne

Uma vez feita a caracterização das amostras produzidas em conjunto, algumas delas foram irradiadas ionicamente com He e outro grupo com Ne, tanto a  $T_{amb}$  como a  $T_{LN}$ . Em ambos os casos as irradiações foram feitas variando-se a dose de irradiação. A seguir, apresentamos os resultados detalhados da caracterização magnética e estrutural destas amostras.

### 4.5.1 Caracterização magnética e estrutural das amostras irradiadas com He a $T_{amb}$ e $T_{LN}$

A caracterização das propriedades magnéticas das amostras irradiadas foi feita utilizando-se o conjunto eletroímã-VSM. Estas medidas foram realizadas aplicando-se o campo de varredura no plano do filme e nas direções especificadas na figura 3.8.

Como ilustração, na figura 4.19 são mostrados os ciclos de histerese de uma das amostras produzidas em conjunto, antes e após ser irradiada com He a  $T_{amb}$ , com uma dose de  $8 \times 10^{13}$  íons/cm<sup>2</sup>. Continuando, na figuras 4.20 são apresentados os valores de  $H_{exc}$  em função da dose de irradiação de todas as amostras irradiadas com He a  $T_{amb}$ .

Observando a figura 4.20, podemos ver que o valor do campo de *exchange* de quase todas as amostras irradiadas com He a  $T_{amb}$  aumentou comparado com o  $H_{exc}$  das amostras antes das irradiações ( $H_{exc} \sim 75$ Oe). Para doses baixas, no intervalo de  $4 \times 10^{13}$  -  $6 \times 10^{14}$  íons/cm<sup>2</sup>, o valor de  $H_{exc}$  flutua entre 90 e 110 Oe. O valor máximo foi obtido na amostra irradiada com  $10^{15}$  íons/cm<sup>2</sup> e para doses maiores a esta ele diminui, sendo comparável ao valor de  $H_{exc}$  das amostras antes das irradiações. O campo coercivo segue um comportamento semelhante a  $H_{exc}$ .

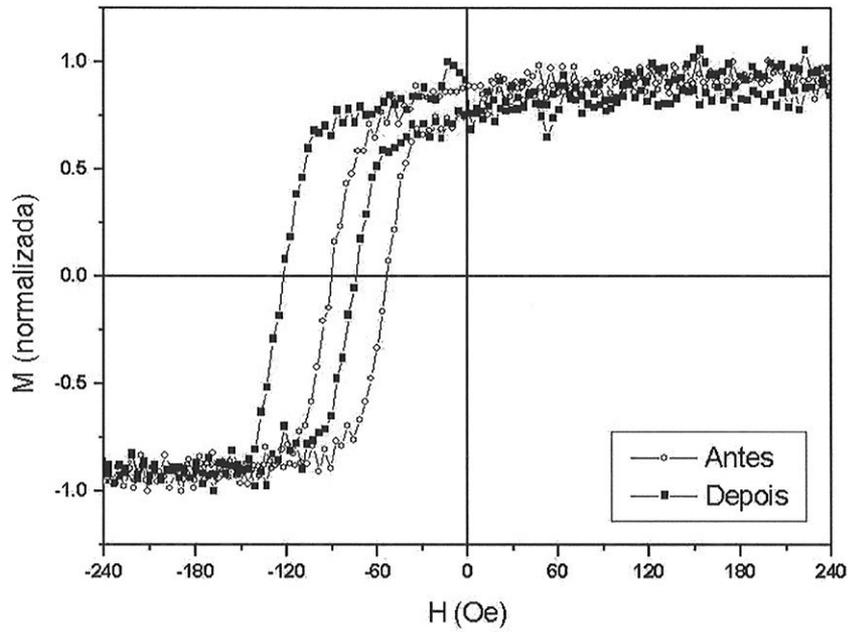


Figura 4.19 : Curvas de histerese correspondentes à amostra 4, irradiada com He à  $T_{amb}$ , utilizando-se uma dose de  $8 \times 10^{13}$  íons/cm<sup>2</sup>.

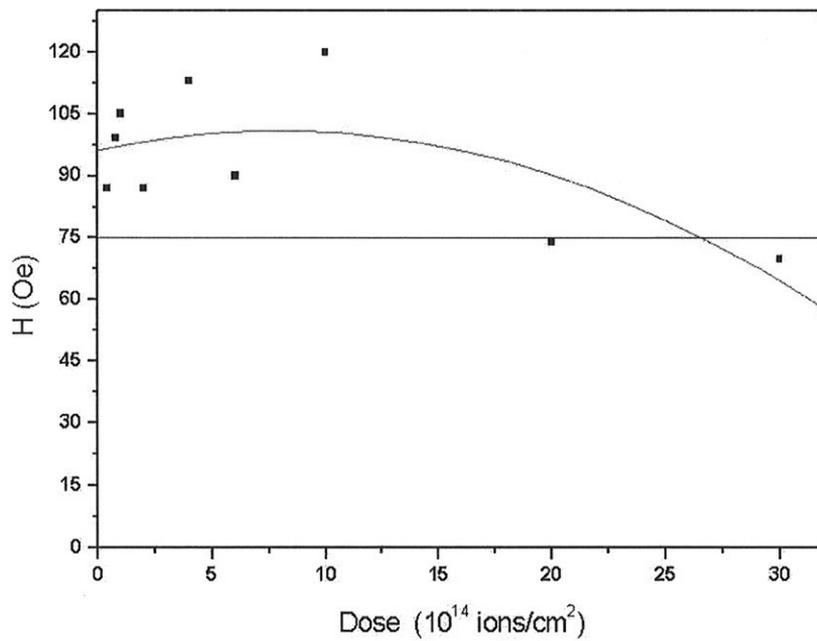
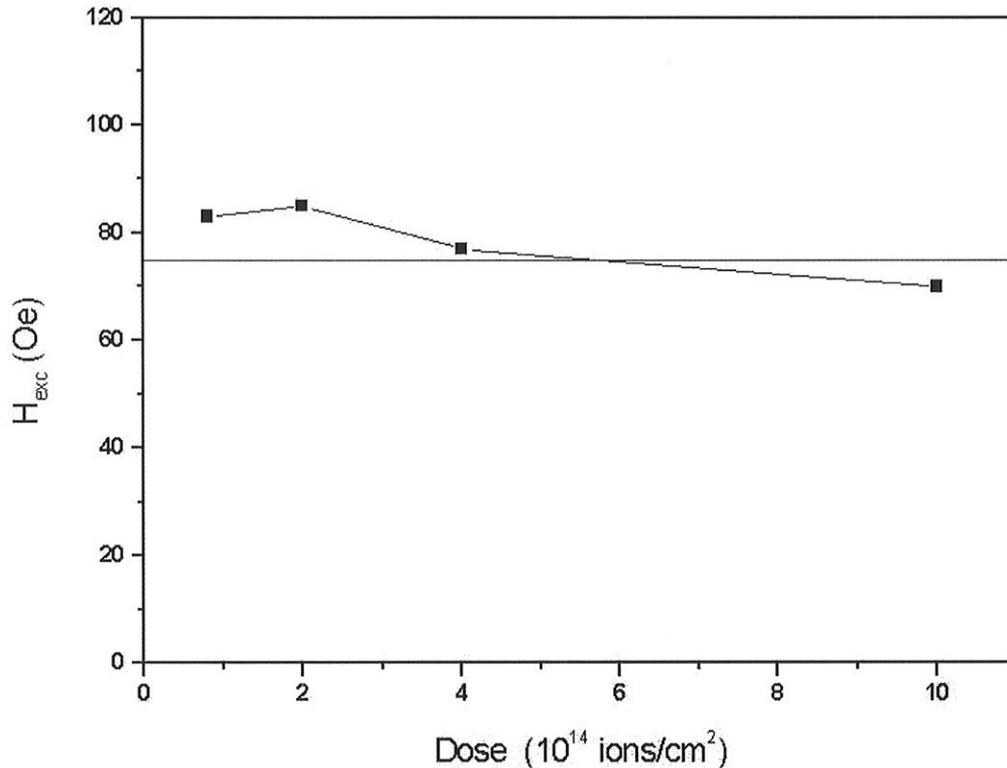


Figura 4.20: Variação de  $H_{exc}$  em função da dose de irradiação das amostras irradiadas com He à  $T_{amb}$ .

Em seguida, na figura 4.21 são apresentados os valores de  $H_{exc}$  em função da dose de irradiação de todas as amostras irradiadas com He à temperatura do nitrogênio líquido. Neste caso, observamos que o valor de  $H_{exc}$  teve um aumento menos significativo, comparado com os valores de  $H_{exc}$  obtidos nas amostras sem irradiação ( $H_{exc} \sim 75\text{Oe}$ ).

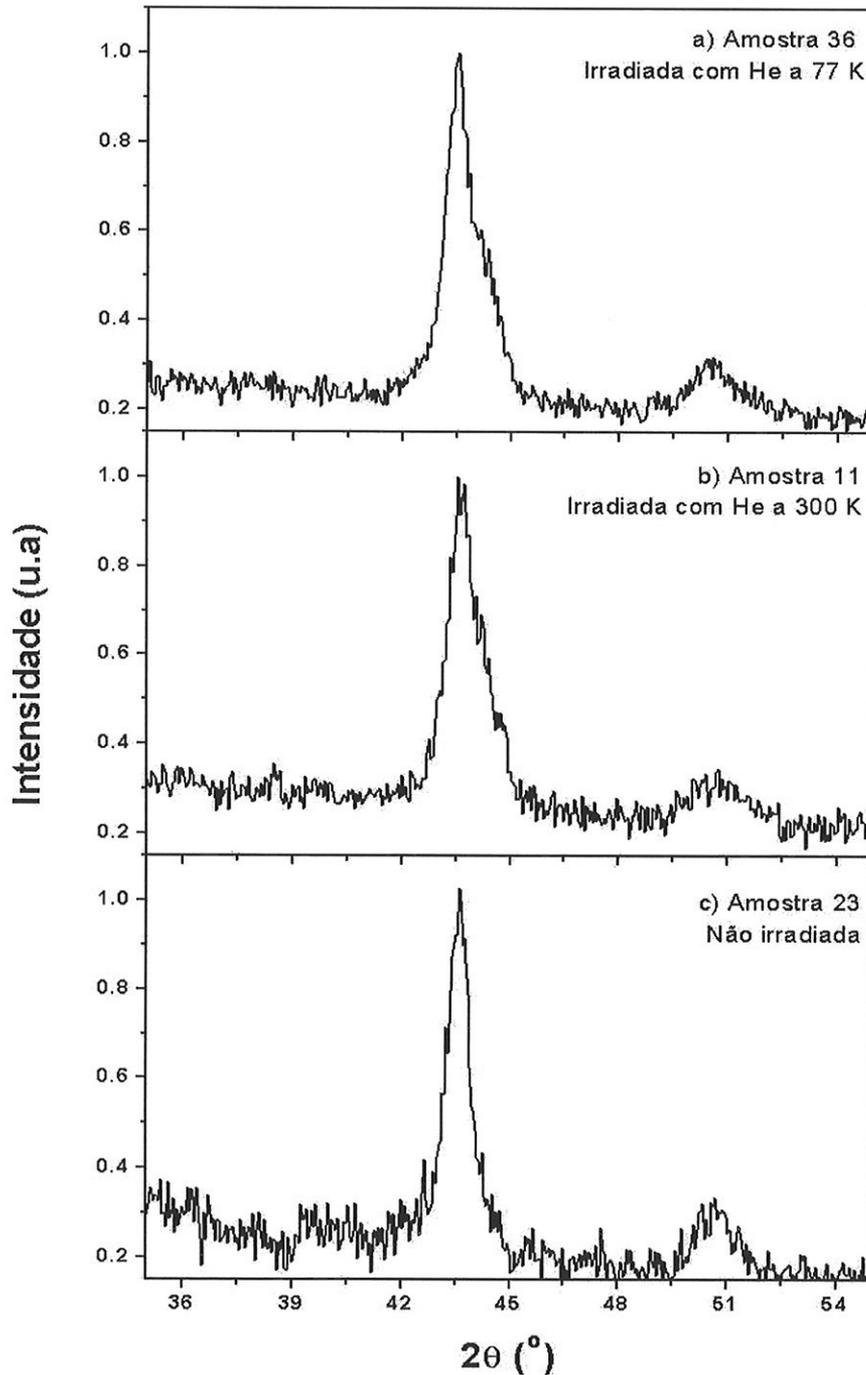


**Figura 4.21** : Variação de  $H_{exc}$  em função da dose de irradiação das amostras irradiadas com He a  $T_{LN}$ .

De acordo com os resultados apresentados acima, verificamos que as irradiações iônicas com He modificaram as propriedades magnéticas dos filmes, particularmente, nas amostras irradiadas a  $T_{amb}$ . Uma explicação para este resultado pode ser dada correlacionando efeitos estruturais e magnéticos. Neste sentido, caracterizamos estruturalmente algumas das amostras irradiadas através de difração, absorção e refletometria de raios-x, cujos resultados são apresentados a seguir.

Na figura 4.22 apresentamos os resultados de difração de raios-X de duas das amostras irradiadas com He. Segundo estes resultados podemos afirmar que não houve mudança na estrutura das amostras após as irradiações. Todos os difratogramas de raios-

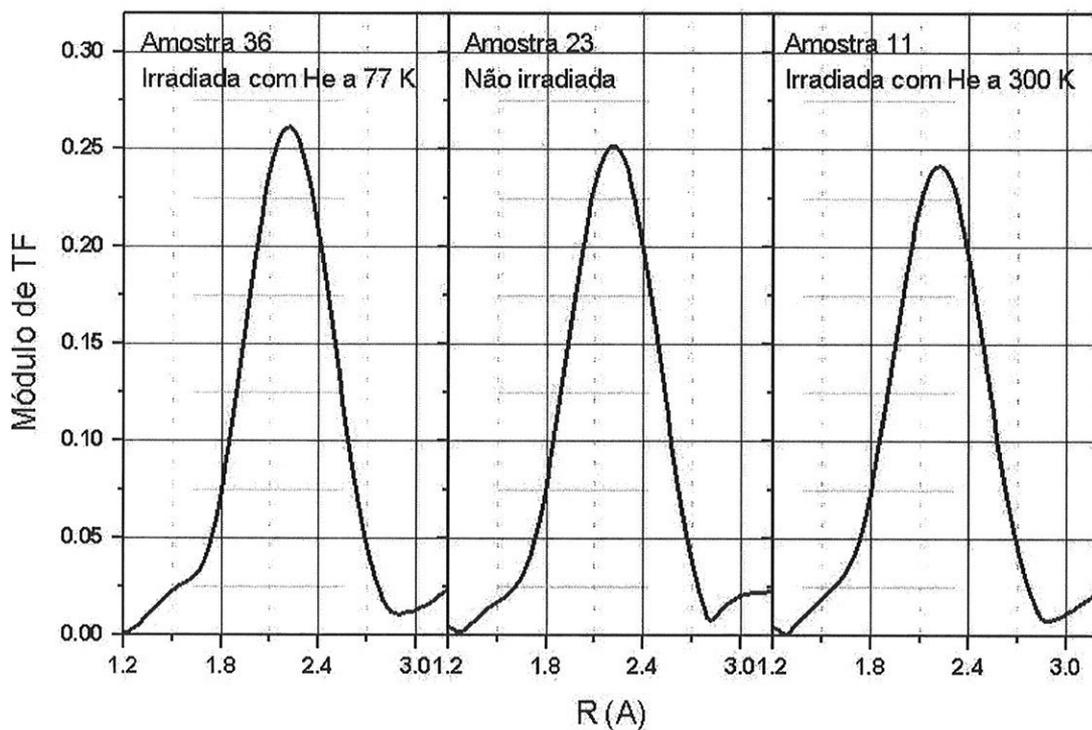
Xindicam que estas amostras apresentam as fases ferro e antiferramagnéticas identificadas nas amostras sem irradiação iônica, assim como também, as mesmas texturas cristalográficas nas orientações (100) e (200).



**Figura 4.22** : Difratomogramas das amostras de  $Si(100)/Cu(20nm)/NiFe(10nm)/FeMn(10nm)/Ta(3nm)$  (a) irradiada com He à  $T_{LN}$  (b) não irradiada (c) irradiada com He à  $T_{amb}$ .

Em seguida, na figura 4.23, apresentamos o pico principal do módulo das transformadas de Fourier dos espectros experimentais de EXAFS de duas amostras irradiadas com He e uma amostra sem irradiação iônica. Este pico corresponde aos primeiros vizinhos da esfera de coordenação. As amostras analisadas foram: uma amostra irradiada com He a  $T_{amb}$  (amostra 11), uma amostra irradiada com He a  $T_{LN}$  (amostra 36) e uma amostra sem irradiação iônica (amostra 23).

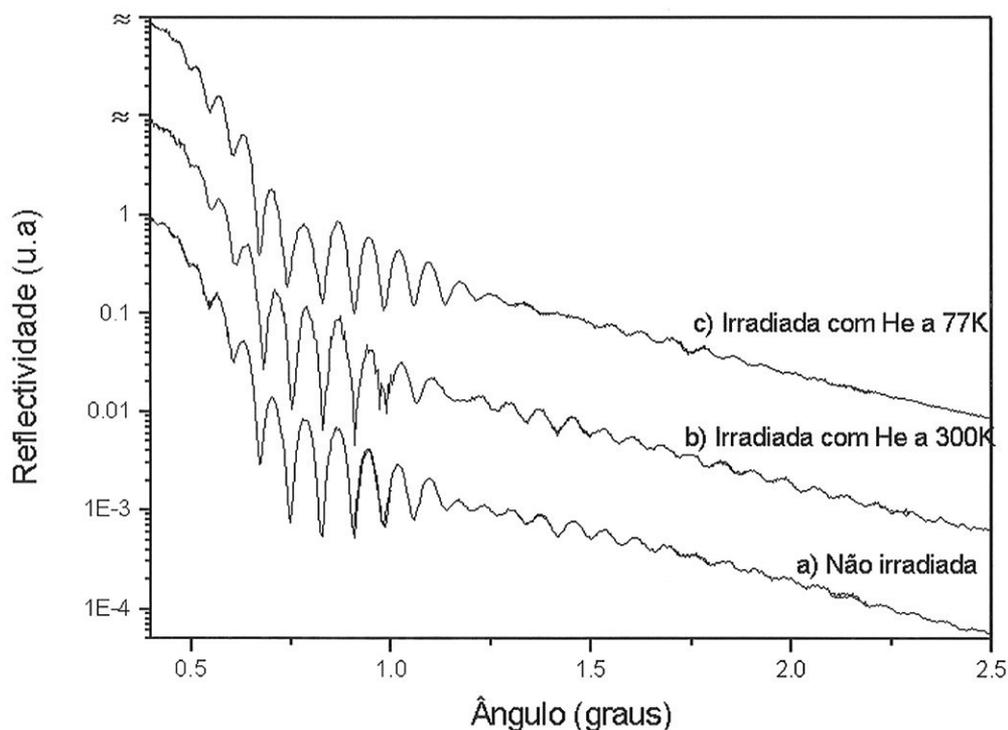
Analisando comparativamente os espectros destas amostras, observamos que não há diferença na posição do pico e conseqüentemente no intervalo da distância dos primeiros vizinhos. A diferença fundamental entre os três picos está na sua amplitude. Podemos notar que a amplitude do pico da amostra irradiada com He a  $T_{amb}$  é menor que nas outras duas amostras.



**Figura 4.23** : Primeiro pico do módulo das transformadas de Fourier das oscilações de EXAFS das amostras de Si(100)/Cu(20nm)/NiFe(10nm)/FeMn(10nm)/Ta(3nm) (a) irradiada com He à  $T_{LN}$ , (b) não irradiada e (c) irradiada com He à  $T_{amb}$ .

Como sabemos, a redução da amplitude do pico das transformadas de Fourier está relacionada com a maior desordem na estrutura fina das amostras. Por conseguinte, concluímos que a amostra irradiada com He a  $T_{amb}$  apresenta maior desordem que as outras duas amostras. Por outro lado, como vimos anteriormente, segundo a caracterização magnética, esta amostra apresenta o maior valor de  $H_{exc}$  comparado com o campo de *exchange* do restante das amostras irradiadas com He a  $T_{amb}$ . Na amostra 36, irradiada com He a  $T_{LN}$ , vemos que o efeito da irradiação iônica provocou um melhor ordenamento estrutural local, no entanto, nenhum efeito considerável sobre o acoplamento.

Na figura 4.24 são apresentados os espectros de refletometria das amostras analisadas. Como dito no capítulo anterior as curvas de refletometria, logo acima do ângulo crítico, contém informações sobre a densidade eletrônica, espessura e rugosidades dos filmes. Esses parâmetros produzem efeitos distintos nas curvas que podem ser identificados quando analisamos um filme simples e uniforme. No entanto, no caso de filmes com várias camadas, como o nosso caso, a interpretação dos dados de refletometria é feito através da comparação dos espectros de refletometria experimentais com espectros simulados a partir de uma estrutura modelo. Apesar disso, a simulação só será possível se não existir um número de parâmetros exagerado. Infelizmente esse não é o nosso caso. Os nossos filmes são constituídos de quatro camadas, cada uma delas com uma espessura diferente, portanto são três interfaces e a superfície externa. Por esta razão é impossível realizar o ajuste requerido. Entretanto, considerando que todas as amostras analisadas por refletometria possuem a mesma composição e a mesma espessura e que as ligas que constituem o filme apresentam densidades eletrônicas muito próximas entre si, é razoável assumir que o parâmetro que mudou foram as rugosidades dos filmes. Como pode ser observado na figura 4.24, acima do ângulo crítico, os espectros de refletometria das amostras 11, 23 e 36 apresentam muita similitude entre eles. Vemos que o período das oscilações se repete nas três curvas, indicando que os filmes apresentam a mesma espessura. Por outro lado, vemos que o decaimento da intensidade das oscilações diminui na curva de refletometria correspondente à amostra irradiada com He a  $T_{LN}$ . Este resultado nos indica que esta amostra apresenta maior rugosidade em comparação com a amostra não irradiada e a amostra irradiada com He a  $T_{amb}$ .



**Figura 4.24** : Espectros de refletometria de raios-X das amostras de  $Si(100)/Cu(20nm)/NiFe(10nm)/FeMn(10nm)/Ta(3nm)$  (a) não irradiada, (b) irradiada com He à  $T_{LN}$  e (c) irradiada com He à  $T_{amb}$ .

Sabe-se que quando íons incidem sobre a superfície de um filme eles irão penetrar no material colidindo com os núcleos e os elétrons do mesmo. Por causa destas colisões os íons perdem velocidade até chegarem ao repouso. As colisões dos íons incidentes com os átomos da rede cristalina causam uma transferência de momentum e energia cinética. Quando a transferência de energia em uma colisão é maior que a energia de ligação do átomo da rede cristalina, este átomo será arrancado da sua posição, criando-se um defeito pontual que perturba a periodicidade da rede cristalina. Assim vários átomos serão arrancados ao longo da trajetória do íon e, portanto, vários defeitos serão criados de forma aleatória. Estas alterações estruturais dependem de parâmetros como a espécie iônica utilizada, a energia das partículas incidentes, a dose de irradiação e a temperatura da amostra. Com relação à temperatura da amostra existem dois fatores a considerar: a temperatura da amostra durante a irradiação iônica e o aquecimento local do filme devido

ao bombardeamento iônico. Porém em baixas temperaturas ( $T_{LN}$ ) o calor devido ao aquecimento local do filme é rapidamente dissipado, provocando uma acomodação local dos átomos da vizinhança. Portanto, neste caso, o deslocamento dos átomos devido às colisões com os íons tem efeito balístico. Podemos dizer que no local de passagem do íons são criados defeitos pontuais bem localizados. Nas irradiações a  $T_{amb}$  o efeito tanto da temperatura da amostra como do aquecimento local do filme durante o bombardeamento iônico é de aumentar as vibrações da rede cristalina, permitindo um reordenamento atômico e uma redistribuição dos defeitos ao longo do filme. Baseados nesta análise pode-se interpretar os resultados de EXAFS apresentados anteriormente.

No caso da amostra irradiada com He a  $T_{LN}$  os átomos que colidem com os íons foram deslocados da sua posição de equilíbrio, criando-se defeitos pontuais bem localizados. Como não houve uma mudança estrutural global na amostra, este processo trouxe como consequência a acomodação (relaxação) dos átomos vizinhos, melhorando assim o ordenamento atômico da amostra como um todo. De modo que, através das medidas de EXAFS estamos analisando o comportamento médio da estrutura local do volume da amostra. No filme irradiado à  $T_{amb}$  a temperatura permitiu uma maior mobilidade dos átomos (difusão local). Neste caso, as distâncias interatômicas podem sofrer pequenas alterações levando a um menor ordenamento estrutural local, mas a um melhor ordenamento magnético. Esta análise está em concordância com os resultados da caracterização magnética dos filmes irradiados com He à  $T_{amb}$  onde foi observado que a maior desordem estrutural local aumenta o valor de  $H_{exc}$  destas amostras, melhorando o acoplamento de *exchange* FM/AFM.

Por outro lado, sabemos que o estudo estrutural da interface FM/AFM representa um estudo complexo, envolvendo principalmente a rugosidade interfacial. Na literatura vemos que estudos realizados em diferentes sistemas FM/AFM indicam que o acoplamento é influenciado pela rugosidade interfacial. Assim por exemplo, em bicamadas de NiFe/FeMn o aumento da rugosidade interfacial resulta no aumento do valor de  $H_{exc}$  [7]. Um resultado oposto é encontrado em sistemas de FeF<sub>2</sub>-Fe, onde se observa o decréscimo de  $H_{exc}$  devido ao aumento da rugosidade [62]. Neste sentido, cabe pensar que dependendo do tipo e do grau de desordem interfacial a configuração de spin FM/AFM é modificada, trazendo como consequência o enfraquecimento ou

fortalecimento do acoplamento de *exchange*. No caso das nossas amostras, não foi possível estimar os valores da rugosidade interfacial. Uma vez que, como dito no capítulo anterior, devido ao grande número de parâmetros envolvidos, tais como número de camadas (que implica quatro interfaces) e propriedades químicas e eletrônicas similares dos elementos constituintes das camadas não foi possível realizar o ajuste dos dados experimentais dos espectros de refletometria das nossas amostras e, portanto, estabelecer a rugosidade da interface entre as camadas magnéticas.

Em síntese, sabemos que a estrutura cristalina de um filme fino obtido por sputtering apresenta defeitos criados durante o processo de crescimento. Quando este material é irradiado ionicamente ocorrem modificações estruturais, assim por exemplo, novos defeitos serão criados e os defeitos que já existiam na estrutura cristalina serão redistribuídos ou concentrados dependendo dos parâmetros utilizados para a irradiação iônica e da temperatura da amostra. Em baixas temperaturas, nas colisões dos íons com os átomos os defeitos ficam concentrados e os átomos do seu entorno local são acomodados. Estas sutis modificações estruturais trazem como consequência o melhor ordenamento da estrutura fina do filme como um todo, observado através das medidas de EXAFS. Na temperatura ambiente, pode ocorrer uma difusão local devido às irradiações iônicas assim os defeitos são redistribuídos aumentando a desordem estrutural do filme, mas melhorando as interfaces.

#### **4.5.2 Caracterização magnética das amostras irradiadas com He a $T_{amb}$ e tratadas termicamente logo após as irradiações iônicas**

Como mostrado na figura 4.20, o comportamento do valor de  $H_{exc}$  em função da dose de irradiação das amostras irradiadas com He a  $T_{amb}$  apresenta uma flutuação acentuada. Portanto, decidimos realizar o procedimento FC em todas estas amostras e verificar o valor de  $H_{exc}$ .

Inicialmente, o procedimento FC foi feito somente em quatro filmes irradiados com íons de He a  $T_{amb}$ . Pois, nesta etapa do doutoramento, a maioria das amostras irradiadas estavam sendo caracterizadas através de diferentes técnicas. O tratamento térmico foi feito até 235 °C e o resfriamento na presença de um campo magnético de 5kOe. As amostras escolhidas foram duas amostras irradiadas com baixas doses e outras

duas com altas doses de irradiação: amostras 4, 5, 7 e 17, irradiadas com doses de  $8 \times 10^{14}$ ,  $2 \times 10^{14}$ ,  $2 \times 10^{15}$  e  $3 \times 10^{15}$  íons/cm<sup>2</sup>, respectivamente. As curvas de histerese de cada uma destas amostras, após o tratamento térmico são mostradas na figura 4.25 e na figura 4.26 é mostrado o valor de  $H_{exc}$  em função da dose de irradiação delas.

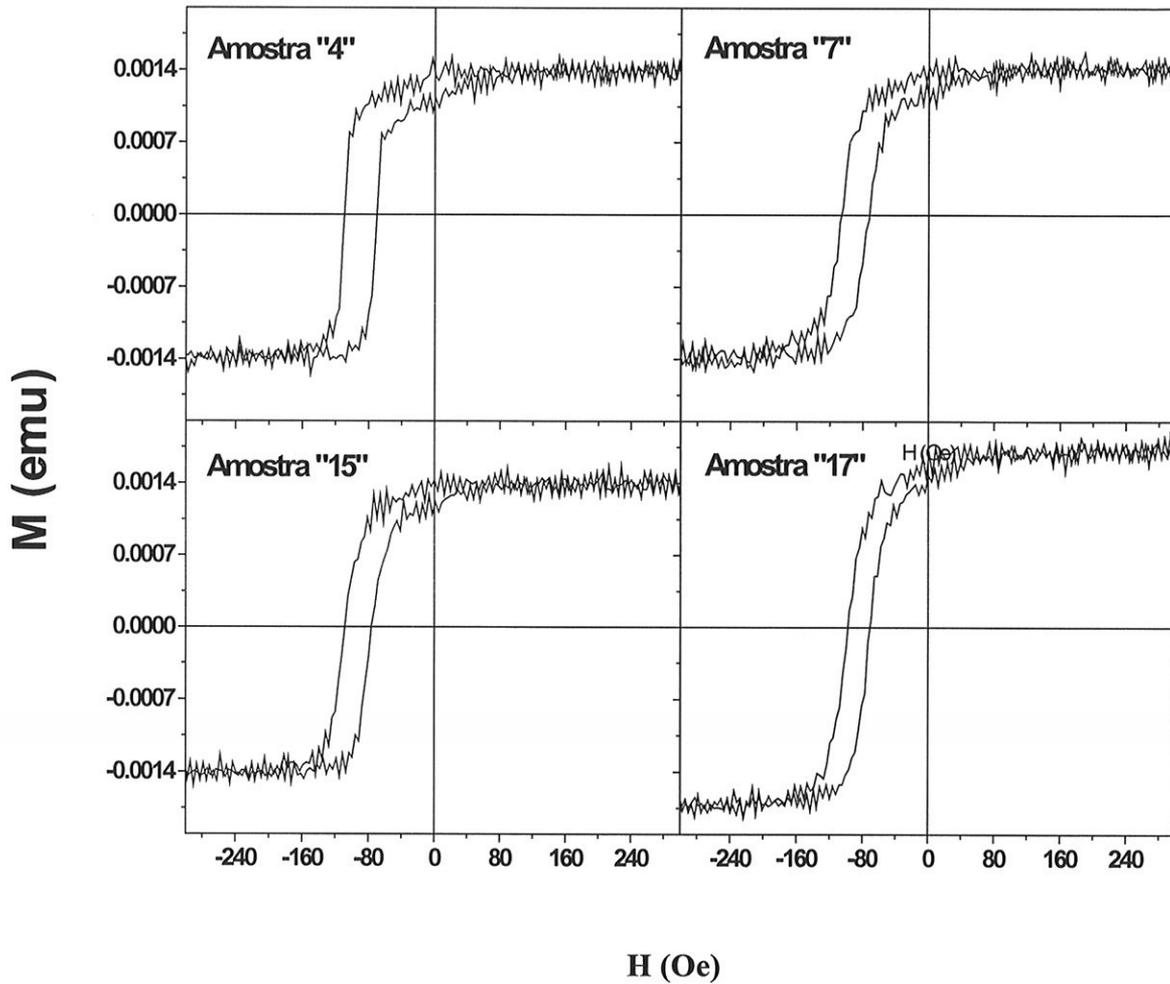
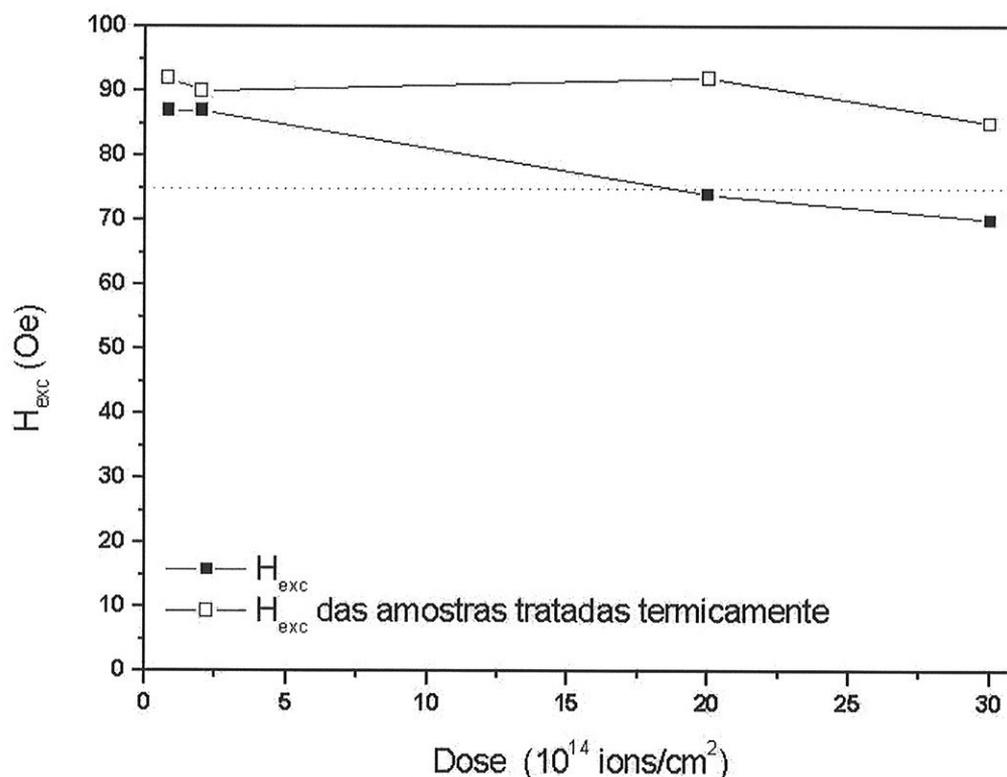


Figura 4.25 : Curvas de histerese das amostras após o procedimento FC.



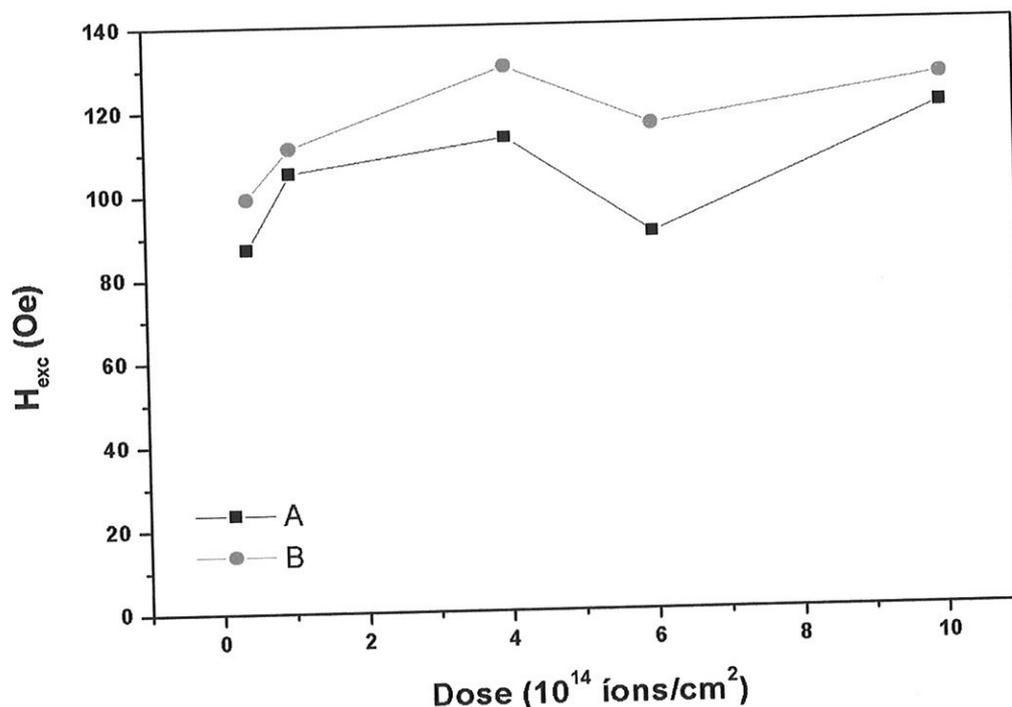
**Figura 4.26 :** Valor de  $H_{exc}$  das amostras, tratadas termicamente, em função da dose de irradiação.

Observamos que, independentemente da dose com que foram irradiadas, após o tratamento térmico as quatro amostras apresentam o mesmo valor de  $H_{exc}$  de aproximadamente 90 Oe. Este resultado nos sugere que após o tratamento térmico o ordenamento magnético FM/AFM é similar nas quatro amostras e que as modificações feitas pelas irradiações iônicas foram principalmente de caráter magnético.

#### 4.5.3 Caracterização magnética das amostras seis meses após serem irradiadas com He à $T_{amb}$

Continuando com o estudo das amostras irradiadas com He à  $T_{amb}$ , após termos caracterizado todas estas amostras através de diferentes técnicas, o que nos levou um tempo considerável, decidimos tratar termicamente o restante delas. Para isso, dividimos em dois pedaços cada filme e tratamos termicamente um dos pedaços. Previamente, caracterizamos magneticamente ambos pedaços. Para nossa surpresa, após esta última

caracterização, observamos que o valor do campo de *exchange* aumentou comparado com o  $H_{exc}$  das mesmas amostras caracterizadas logo após as irradiações iônicas, como mostrado na figura 4.27.



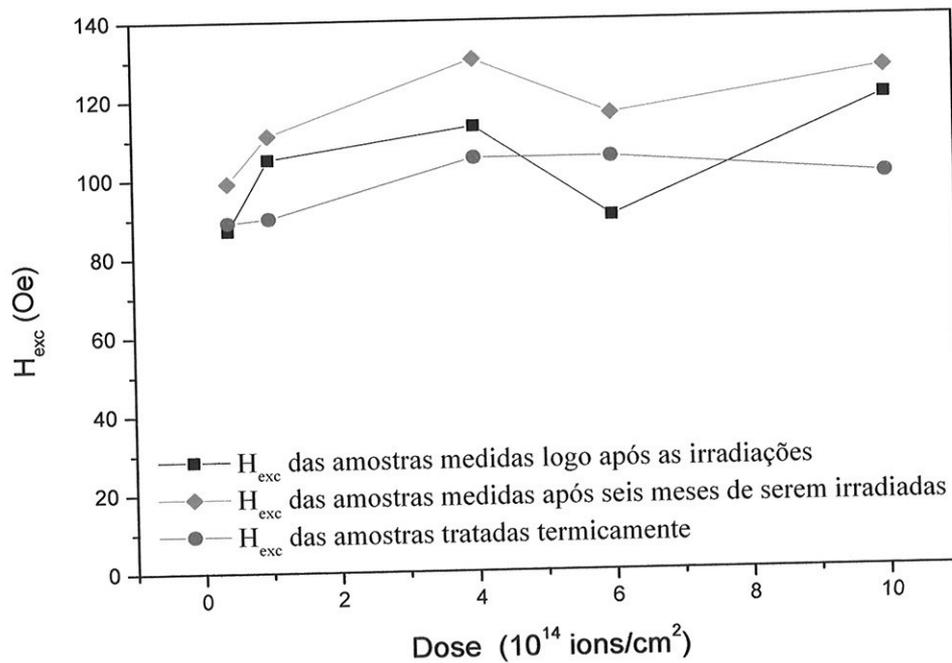
**Figura 4.27 :** Valores de  $H_{exc}$  em função da dose de irradiação dos filmes irradiados com He à  $T_{amb}$ , medidos no ano de 2003 (A) e no ano de 2004 (B).

Vemos que o comportamento de  $H_{exc}$  em função da dose de irradiação conserva a mesma flutuação encontrada anteriormente. Como já explicado, nos filmes irradiados à  $T_{amb}$ , o efeito da temperatura permite a maior mobilidade dos átomos (difusão local). Neste processo, as distâncias interatômicas sofrem pequenas alterações levando a um melhor ordenamento químico e magnético. Como se sabe a interação via troca representa a interação magnética entre os spins da camada FM e AFM. Ela depende das distribuições eletrônicas dos átomos e da distância entre eles. Neste sentido, podemos dizer que o reordenamento atômico devido às irradiações iônicas originou pequenas aproximações interatômicas que repercutiram no acoplamento de *exchange*. Por outro lado, cabe pensar que o aumento da interação de *exchange* de pequenas regiões tenham originado a reorientação magnética dos spins do seu entorno local, aumentando assim o

acoplamento de *exchange* de todo filme. Podemos dizer que após as irradiações iônicas a interface passou a ser formada por pequenas regiões com spins orientados em diferentes direções e com o tempo estes spins foram reorientados para minimizar a energia.

#### 4.5.4 Caracterização magnética e estrutural das amostras tratadas termicamente após seis meses de serem irradiadas com He à $T_{amb}$

No gráfico 4.28, são apresentados os valores de  $H_{exc}$  de amostras medidas depois de seis meses de serem irradiadas com e sem tratamento térmico, em função da dose de irradiação. Também são apresentados os valores de  $H_{exc}$  medidos logo após as irradiações iônicas.



**Figura 4.28** : Valores de  $H_{exc}$  em função da dose de irradiação

Segundo estes resultados, observamos que o campo de *exchange*, após o tratamento térmico apresenta um comportamento homogêneo, sem as flutuações encontradas anteriormente. O campo de *exchange* das amostras irradiadas com baixas doses ( $4 \times 10^{13}$  e  $10^{14}$  íons/cm<sup>2</sup>) é de 90 Oe. Nas amostras irradiadas com doses entre

$4 \times 10^{14}$  e  $10^{15}$  ele apresenta um aumento de até aproximadamente 40% em relação ao valor de  $H_{exc}$  das amostras sem irradiação iônica.

Podemos dizer que o gráfico de  $H_{exc}$  em função da dose de irradiação das amostras tratadas representa o comportamento efetivo do acoplamento de *exchange* deixado pelas irradiações iônicas. O procedimento de tratar termicamente e resfriar as amostras na presença de campo magnético estabilizou o acoplamento interfacial FM/AFM.

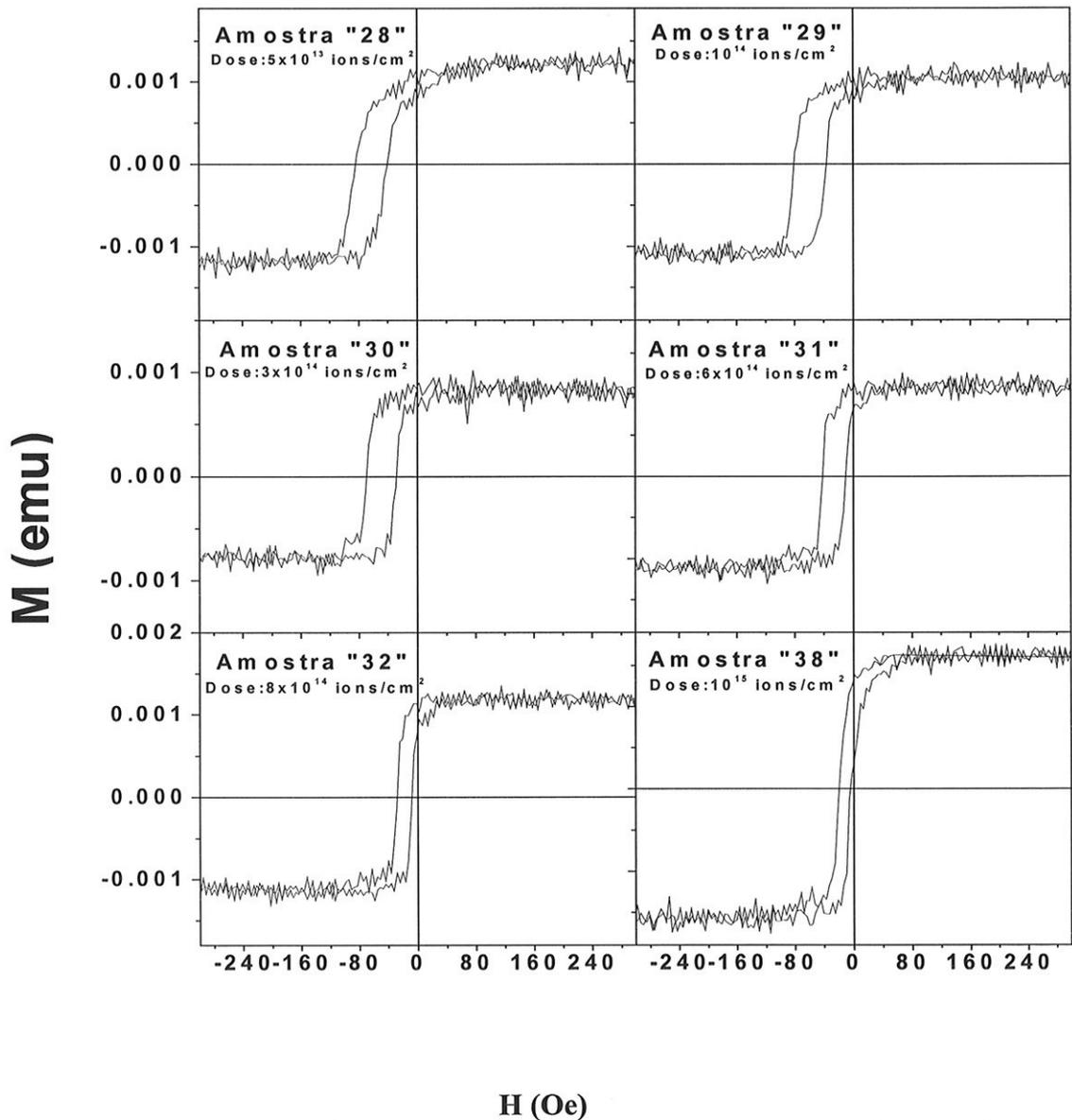
Os resultados da caracterização estrutural através de difração de raios-X, uma vez mais, indicam que não houve mudanças estruturais de longo alcance nas amostras, no que diz respeito às fases magnéticas, cristalinidade, tamanho de grão e textura.

Como se sabe é de grande dificuldade a observação de pequenas mudanças interfaciais em sistemas com *exchange bias*, tais como a presença de domínios antiferromagnéticos na interface. Nós realizamos medidas no microscópio óptico de varredura em campo próximo (SNOM) em algumas das amostras irradiadas visando encontrar informação de pequenas regiões da amostra, de aproximadamente  $1 \mu\text{m}$ . Observamos que há uma homogeneidade no valor de  $H_{exc}$  em diferentes regiões do filme. O que nos faz pensar que qualquer modificação magnética que tenha ocorrido nas amostras devido às irradiações é extremamente pequena, de modo que, com o SNOM não é possível identificá-las. Através do SNOM sempre estamos observando o comportamento magnético médio da pequena região analisada, o qual é igual ao comportamento magnético de toda a amostra.

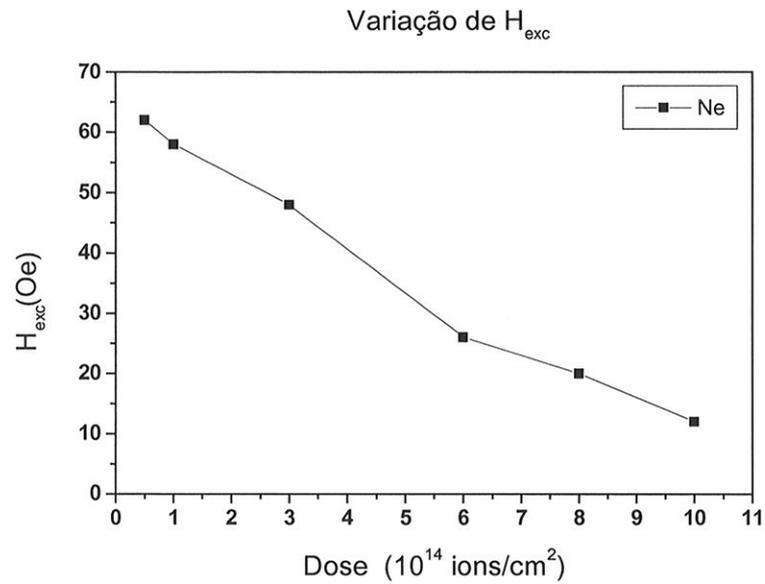
#### **4.5.5 Caracterização magnética e estrutural das amostras irradiadas com Ne à $T_{amb}$ e $T_{LN}$**

As irradiações com Ne à  $T_{amb}$  foram feitas utilizando uma energia de 25 keV e doses de irradiação entre  $5 \times 10^{13}$  e  $1 \times 10^{15}$  íons/cm<sup>2</sup>. O estudo das propriedades magnéticas destas amostras também foi baseada na análise das curvas de histerese. Na figura 4.29, são mostrados os ciclos de histerese de algumas destas amostras. Em seguida, nas figuras 4.30 e 4.31, são mostrados os valores de  $H_{exc}$  e  $H_c$  destes filmes em função da dose de irradiação utilizada, respectivamente.

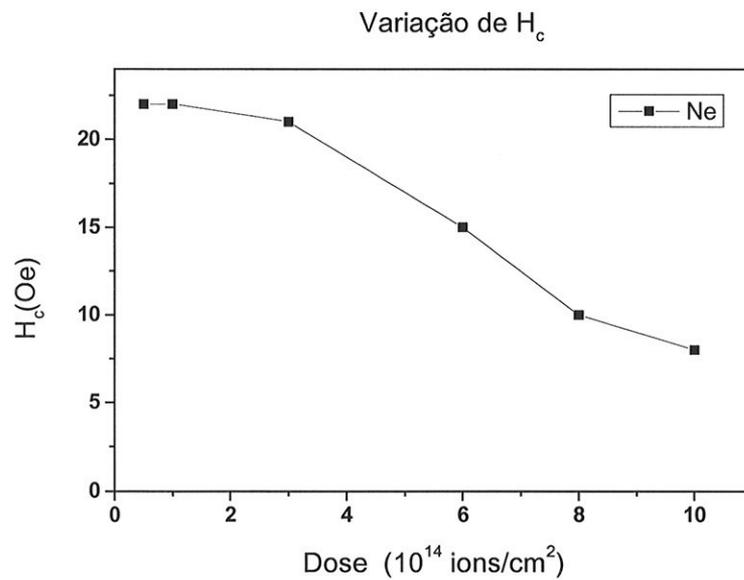
Segundo estes resultados, vemos que à medida que aumentamos a dose de irradiação há diminuição gradativa de  $H_{exc}$  e  $H_c$ . Esta alteração nas propriedades magnéticas das amostras pode ser atribuída a mudanças estruturais. Estas mudanças teriam sua origem no impacto causado pelos átomos de Ne por eles serem muito massivos. Após o procedimento FC realizado nas amostras irradiadas com Ne, observamos que a diminuição de  $H_{exc}$  e  $H_c$  permanece.



**Figura 4.29 :** Curvas de histerese das amostras irradiadas com diferentes doses de Ne.

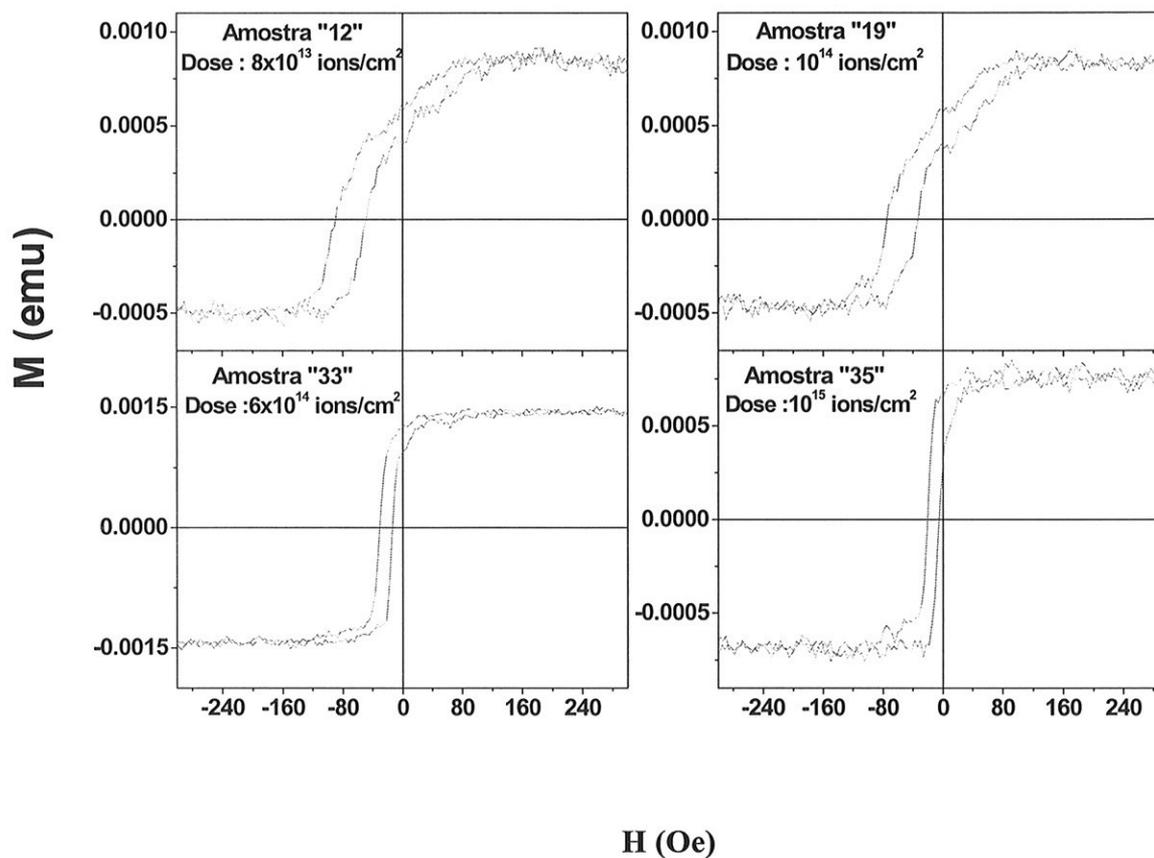


**Figura 4.30:** *Varição de  $H_{exc}$  em função da dose de irradiação das amostras irradiadas com Ne à  $T_{amb}$ .*

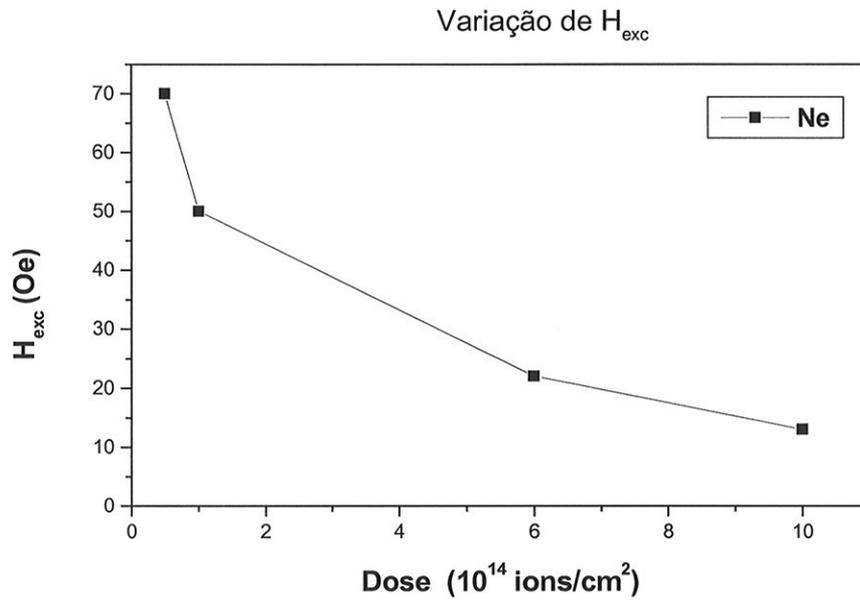


**Figura 4.31 :** *Varição de  $H_c$  em função da dose de irradiação das amostras irradiadas com Ne à  $T_{amb}$ .*

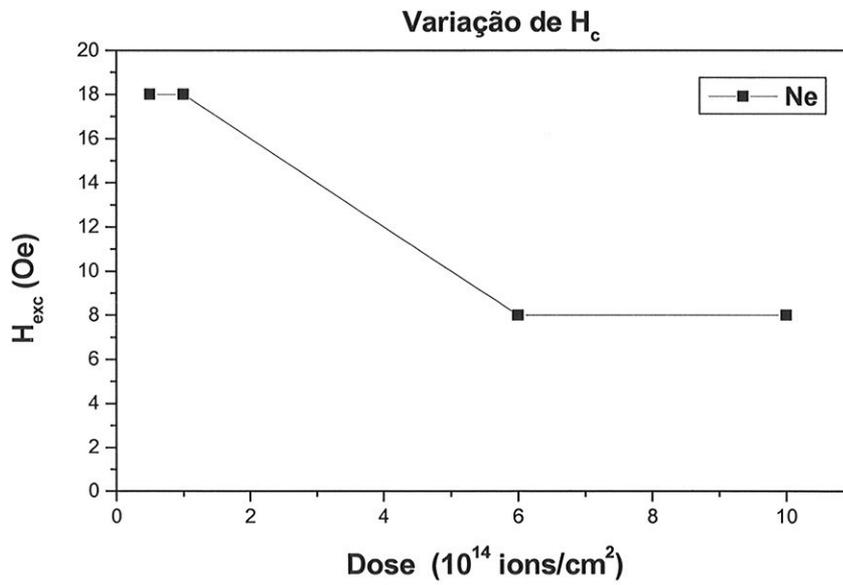
No gráfico 4.32, são mostradas as curvas de histerese das amostras irradiadas com Ne à  $T_{LN}$ , utilizando-se diferentes doses de irradiação. Nas figuras 4.33 e 4.34, mostramos os valores de  $H_{exc}$  e  $H_c$  dos filmes em função da dose de irradiação utilizada.



*Figura 4.32 : Curvas de histerese das amostras irradiadas com Ne à  $T_{LN}$ .*



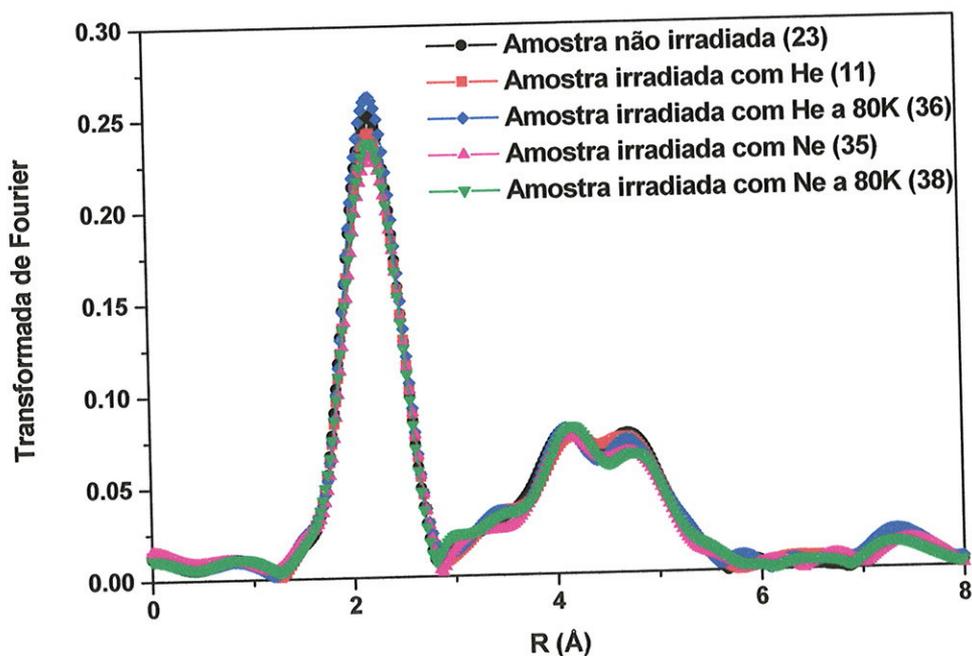
*Figura 4.33 : Variação de  $H_{exc}$  em função da dose de irradiação das amostras irradiadas com Ne à  $T_{LN}$ .*



*Figura 4.34 : Variação de  $H_c$  em função da dose de irradiação das amostras irradiadas com Ne à  $T_{LN}$ .*

Novamente, observamos forte degradação no valor do campo de *exchange*, em função da dosagem da irradiação. Portanto, concluímos que o efeito das irradiações com Ne alteram permanentemente as propriedades magnéticas das amostras. Entretanto, as medidas de difração de raios-X de várias amostras irradiadas com Ne nos indicam que não houve mudanças de ordem estrutural de longo alcance. Do mesmo modo que nas amostras irradiadas com He, as mudanças nas amostras irradiadas com Ne ocorreram em sua estrutura fina.

Na figura 4.35, são mostradas as transformadas de Fourier da região de EXAFS dos espectros de absorção do Mn de amostras irradiadas com He e Ne à  $T_{amb}$ ,  $T_{LN}$  e de uma amostra sem irradiação iônica.



**Figura 4.35** : Transformadas de Fourier das oscilações de EXAFS das medidas de absorção de raios-X na borda do Mn das amostras irradiadas com He e Ne (à  $T_{amb}$  e  $T_{LN}$ ) e de uma amostra sem irradiação iônica.

Comparando as transformadas de Fourier destas amostras, uma vez mais vemos que não há diferenças no intervalo da distância aparente dos primeiros vizinhos (primeiro pico do gráfico). Observamos diferenças na altura dos picos. Sabemos que quanto menor a altura do pico da distância aparente dos primeiros vizinhos, maior é a desordem na

estrutura fina das amostras devido às irradiações. Portanto, vemos que as irradiações iônicas com Ne provocaram maior desordem na estrutura fina das amostras.

#### **4.5.6 Efeito da oxidação nas amostras irradiadas**

Como mencionamos anteriormente, as amostras irradiadas são constituídas de Si(100)/Cu(20nm)/NiFe(10nm)/FeMn(3nm)/Ta(3nm). A fina camada de tântalo depositada na cobertura foi colocada para evitar a oxidação das bicamadas magnéticas. No entanto, devido às irradiações iônicas e ao tempo considerável sob o efeito do meio ambiente, as amostras apresentaram oxidação superficial. Logo após as irradiações, a oxidação da camada de tântalo tornou-se evidente. Na superfície das amostras observou-se a presença de pequenas manchas brancas. Por outro lado, no caso de algumas amostras caracterizadas depois de um longo período de tempo (seis meses depois) observamos que elas apresentavam dois comportamentos histeréticos. Uma transição deslocada com relação à origem, devido à anisotropia unidirecional e uma segunda, muito menor em relação à curva anterior em torno do campo nulo. Este comportamento foi observado em todas as amostras irradiadas medidas novamente após seis meses. Uma possível explicação para esta parte da histerese em  $H = 0$  seria a presença de algum óxido magnético formado na superfície da camada antiferromagnética. Contudo, a formação deste óxido não afetou o acoplamento magnético na interface, uma vez que o valor de  $H_{exc}$  aumentou, como foi explicado anteriormente. Este fato constitui um resultado importante, pois ele reafirma que o acoplamento de *exchange* é basicamente interfacial.

#### **4.6 Medidas magneto ópticas locais em filmes de NiFe/FeMn**

Em seguida apresentamos os resultados de medidas magneto ópticas locais de algumas amostras de NiFe/FeMn utilizando-se o SNOM. Estas medidas foram feitas com o objetivo de obter informação local do comportamento magnético dos filmes. Uma das amostras escolhidas para facilitar esta experiência foi o filme de Si(100)/Cu/FeMn/NiFe/Ta, onde a camada de NiFe, por ser a primeira camada magnética a partir da superfície, apresentaria maior sinal magneto-óptico a ser detectado pelo SNOM. Posteriormente realizamos medidas magneto ópticas em vários filmes de Si(100)/Cu(20nm)/NiFe/FeMn/Ta(3nm) com diferentes espessuras  $t_{AF}$  e  $t_{AFM}$  e amostras

irradiadas com He e Ne. Em todas elas observamos um comportamento homogêneo do valor de  $H_{exc}$  em todas as regiões medidas.

Continuamos nosso estudo em várias das amostras constituídas de Si(100)/Cu(20nm)/NiFe(10nm)/FeMn(10nm)/Ta(3nm), produzidas em conjunto. Uma vez mais observamos um comportamento homogêneo do valor de  $H_{exc}$ , excepto nas amostras depositadas no centro do porta-substrato. No caso destas últimas amostras observamos diferenças marcantes entre as medidas magneto ópticas e as medidas no VSM. Na figura 4.36 é mostrada a curva de histerese de uma amostra depositada no centro do porta-substrato (amostra 20) medida no VSM e na figura 4.37 são apresentados os resultados das medidas magneto ópticas desta amostra. Estas últimas medidas foram obtidas ao longo de uma linha reta, com uma distância de 1  $\mu\text{m}$  das posições de medidas. Observamos que nestes 3  $\mu\text{m}$ , as curvas de histerese variam de acordo com a localização das medidas realizadas e o campo de *exchange* varia de  $H_{exc} = 40$  Oe (medida 1) para  $H_{exc} = -40$  Oe (medida 4). Como explicado anteriormente, a anisotropia unidirecional dos filmes após sua deposição por *sputtering* segue o sentido radial do porta-substrato. Portanto, diferentemente das outras, as amostras que foram depositadas no centro do porta-substrato apresentam curvas de histerese divididas em duas regiões, uma no primeiro quadrante e a outra no terceiro quadrante da curva de histerese. Acreditamos que este comportamento seja devido à presença de componentes da magnetização, da camada ferromagnética, orientadas paralela e antiparalelamente, de modo que nas medidas no VSM observamos duas regiões que representam a média dos momentos das duas direções. Como vemos no SNOM foi possível medir estas duas regiões separadamente, no entanto, a magnitude do campo de *exchange* permaneceu inalterável. Estes resultados confirmam a hipótese de que os filmes depositados no centro do porta-substrato são divididos em regiões com diferentes sentidos de anisotropia local.

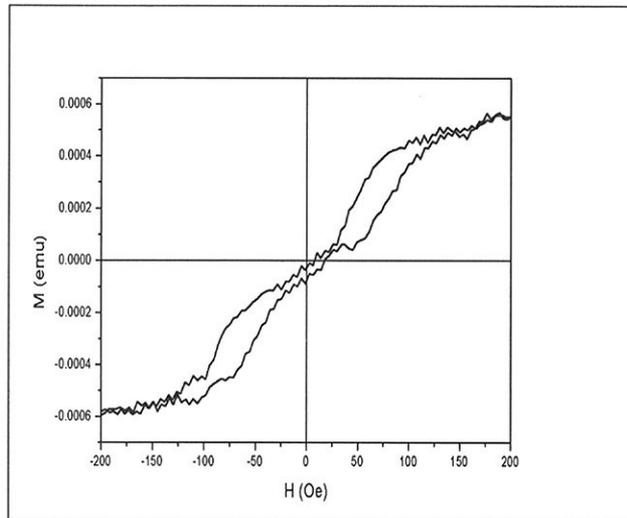


Figura 4.36 : Curva de histerese de uma amostra depositada no centro do pora-substrato medida no VSM.

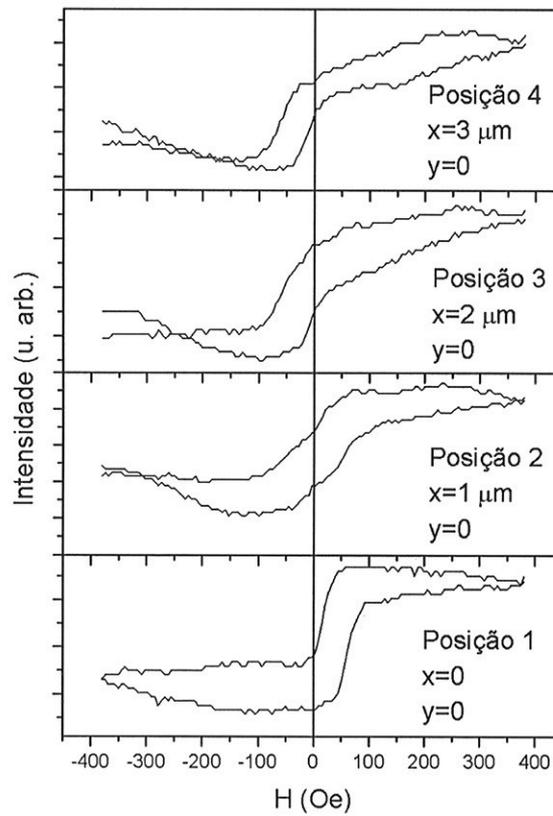


Figura 4.37 : Seqüência de 4 curvas de histerese locais da amostra 20. As curvas foram obtidas ao longo de uma linha reta com uma distância de  $1\mu\text{m}$  entre elas.

## Capítulo 5

### Análise geral e conclusões

O acoplamento entre a camada ferromagnética e antiferromagnética dos sistemas com *exchange bias* depende de três fatores importantes: parâmetros relacionados com a estrutura das amostras, configuração magnética das bicamadas e qualidade da interface. Neste sentido, abordamos vários destes fatores através de diferentes técnicas de caracterização e correlacionamos os resultados magnéticos com os estruturais, acumulando um grande número de informações. Por esta razão, no presente capítulo será apresentada de maneira conjunta a análise geral e as conclusões do presente trabalho.

Como mencionado na introdução do presente trabalho, iniciamos o estudo do acoplamento de sistemas com *exchange bias* de NiFe(30nm)/FeMn(15nm) desde sua produção. O que significou estudarmos as propriedades magnéticas e estruturais das amostras considerando as diferentes condições de deposição por *sputtering* assim como a influência dos *buffers* e substratos utilizados na produção das amostras.

A caracterização magnética das amostras, utilizando diferentes *buffers* e substratos, nos indica que as bicamadas magnéticas depositadas sobre o *buffer* de Cu apresentam as melhores propriedades magnéticas: alto valor de  $H_{exc}$  e baixa coercividade.

O acompanhamento do crescimento estrutural das camadas que compõem as amostras foi feito através de difração de raios-X. Identificamos as fases presentes nelas presentes e as texturas de crescimento. A análise destes resultados mostra que o *buffer* de

Cu apresenta uma estrutura cúbica de fase centrada (FCC) e o *buffer* de tântalo uma estrutura tetragonal de fase centrada (FCT). Todas as bicamadas magnéticas apresentam as fases desejadas: a fase ferromagnética de  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$  e a fase antiferromagnética de  $\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$  ou fase  $\gamma$ , ambas de estrutura cúbica de fase centrada (FCC). No entanto, vemos que estas fases magnéticas crescem em diferentes texturas cristalográficas, dependendo do *buffer* utilizado. Observamos que as bicamadas magnéticas depositadas sobre o *buffer* de tântalo apresentam uma única direção cristalográfica de crescimento, na direção (111). Quando utilizamos o *buffer* de cobre, as bicamadas magnéticas apresentam duas direções cristalográficas nas direções (111) e (200). Contudo, segundo os resultados da caracterização magnética podemos dizer que o valor de  $H_{\text{exc}}$  não tem uma correlação direta com a textura cristalográfica das mesmas.

Analisando a região de EXAFS dos espectros de absorção de raios-X do Mn observamos que a amostra com Cu apresenta melhor ordenamento estrutural local do que as amostras com Ta. Portanto, podemos dizer que as propriedades magnéticas das amostras estão relacionadas com o seu ordenamento estrutural local, induzido pelo *buffer* utilizado. Assim, o Cu resultou ser o *buffer* mais apropriado para a obtenção de amostras com propriedades magnéticas otimizadas.

Por outro lado, a caracterização magnética das amostras, com diferentes espessuras de cobre, nos indica que o acoplamento de *exchange* também é influenciado pela espessura deste *buffer*. As amostras de  $\text{Cu}(t)/\text{NiFe}(30\text{nm})/\text{FeMn}(15\text{nm})$  com  $t > 20\text{nm}$  apresentam curvas de histerese menos retangulares, mais inclinadas e menor valor de  $H_{\text{exc}}$  quando comparado com o valor encontrado nas amostras com 20nm de Cu. Este resultado nos sugere que à medida que aumentamos a espessura da camada de Cu, sua estrutura cristalina se desordena, em consequência, o ordenamento estrutural das bicamadas magnéticas é modificado.

Como explicado anteriormente, uma maneira de obtermos *exchange bias* com altos valores de  $H_{\text{exc}}$  é otimizar o ordenamento magnético das bicamadas FM/AFM através de um tratamento térmico acima da temperatura de Néel e resfriamento na presença de um campo magnético externo. Neste sentido, realizamos este procedimento em todas as bicamadas de  $\text{NiFe}(30\text{nm})/\text{FeMn}(15\text{nm})$  depositadas sobre *buffers* de Cu e Ta e diretamente sobre substratos de Si(100) e Si(111). Observamos que após o

tratamento, todas elas apresentam o mesmo valor de  $H_{exc}$  de aproximadamente 23 Oe. Sendo este valor de  $H_{exc}$  menor que o campo de *exchange* das amostras com *buffer* de Cu sem tratamento térmico. Este resultado é relevante porque ele nos permite concluir que obtemos amostras com alto valor de campo de *exchange* com o sistema de *sputtering* utilizado. O que significa que campo magnético gerado pelos canhões do sistema de *sputtering* de aproximadamente 15 Oe é suficiente para induzir a anisotropia unidirecional nas bicamadas magnéticas.

A partir da caracterização magnética das amostras, variando a seqüência de deposição das camadas magnéticas, encontramos que as curvas de histerese das amostras de *buffer*/FeMn(15nm)/NiFe(30nm) não apresentam deslocamento. Este resultado nos sugere que grande parte da configuração antiferromagnética interfacial poderia ser compensada, não contribuindo com a anisotropia unidirecional. Quando estas amostras são tratadas termicamente até acima da  $T_N$  e resfriadas na presença de um campo magnético observamos que somente a amostra com *buffer* de Cu apresenta  $H_{exc}$ . Este resultado nos sugere que na amostra com *buffer* de Cu houve um rearranjo dos momentos magnéticos da camada antiferromagnética, que deu lugar a uma nova configuração interfacial, criando a anisotropia unidirecional, enquanto as outras condições possivelmente não geraram a fase  $\gamma$  do FeMn.

O estudo da dependência das propriedades magnéticas dos filmes com a espessura da camada ferromagnética mostra que o valor de  $H_{exc}$  é inversamente proporcional à espessura da camada FM. Variando-se a espessura da camada antiferromagnética, observamos que a amostra com 10 nm de  $t_{AFM}$  apresenta o maior valor de  $H_{exc}$ . Para  $t_{AFM}$  menores que 10 nm o valor do campo de *exchange* diminui.

O resultado da caracterização magnética do conjunto de amostras constituídas de Si(100)/Cu(20nm)/NiFe(10nm)/FeMn(10nm)/Ta(3nm), produzidas simultaneamente, mostrou que o campo de *exchange* de todas elas é de 75 Oe e a coercividade de 15 Oe. Por outro lado, observamos que a anisotropia unidirecional destas amostras segue o sentido radial do porta-substrato, induzida pelo campo magnético proveniente dos canhões da câmara de *sputtering*. Desta maneira, as amostras apresentam ciclos histeréticos com diferentes formatos, dependendo da sua posição no porta-substrato. Assim, por exemplo, nas amostras localizadas no centro do porta-substrato, onde o

campo magnético é baixo, observamos ciclos histeréticos divididos em dois quadrantes. No entanto, foi possível uniformizar o sentido da anisotropia unidirecional de todas as amostras através do tratamento térmico até acima de  $T_N$  e resfriamento na presença do campo magnético externo. Após este procedimento o campo de *exchange* de todas estas amostras continuou sendo aproximadamente 75 Oe e o valor da coercividade de 16 Oe. Uma vez mais este resultado nos indica a importância do campo magnético do nosso sistema de *sputtering* no acoplamento de *exchange bias* do sistema em estudo.

Os resultados da caracterização magnética das amostras irradiadas com diferentes doses de He a  $T_{amb}$ , mostram que o valor de  $H_{exc}$  aumentou, após as irradiações iônicas comparado com o  $H_{exc}$  obtido nas amostras não irradiadas ( $H_{exc} \sim 75\text{Oe}$ ). Para doses baixas, no intervalo de  $4 \times 10^{13}$  -  $6 \times 10^{14}$  íons/cm<sup>2</sup>, o valor de  $H_{exc}$  oscila entre 90 e 110 Oe, posteriormente, ele aumenta, sendo máximo na amostra irradiada com  $10^{15}$  íons/cm<sup>2</sup> e para doses maiores a esta, o valor  $H_{exc}$  diminui. O campo coercivo segue um comportamento semelhante a  $H_{exc}$ . Por outro lado, a análise das curvas de histerese das amostras irradiadas com diferentes doses de He a  $T_{LN}$  mostrou que o valor de  $H_{exc}$  e  $H_c$  tiveram um pequeno aumento. Mas não significativo como no caso das amostras irradiadas a  $T_{amb}$ .

Através das medidas de difração de raios-X podemos afirmar que após as irradiações não houve mudanças estruturais de longo alcance, na estrutura cristalográfica ou textura das amostras. Todos os difratogramas de raios-X indicam que as amostras apresentam difratogramas semelhantes às amostras não irradiadas. Por outro lado, a partir das medidas de EXAFS observamos que as irradiações iônicas causaram pequenas mudanças na estrutura local destas amostras e, portanto, a reorientação magnética da interface FM/AFM. Observamos que a amostra irradiada com He a  $T_{amb}$  apresenta maior grau de desordem comparado com os resultados de EXAFS da amostra irradiada com He a  $T_{LN}$  e de uma amostra com a mesma composição não irradiada. Levantamos como hipótese que dependendo da temperatura da amostra durante a irradiação iônica foram criados defeitos estruturais. Esse processo trouxe como consequência alterações na estrutura local e nas distâncias interatômicas. Magneticamente as mudanças nas distâncias interatômicas favoreceram ao acoplamento de *exchange*. Quando comparamos os espectros de refletometria de uma amostra irradiada com He a  $T_{amb}$ , uma amostra

irradiada com He a  $T_{LN}$  e de uma amostra com a mesma composição não irradiada observamos que os espectros apresentam muita similitude entre eles. No entanto, vemos mudanças no decaimento da intensidade das franjas relacionado à rugosidade do filme. Neste sentido, observamos que a amostra irradiada com He a  $T_{LN}$  apresenta maior rugosidade.

Os resultados da caracterização magnética de quatro amostras irradiadas com diferentes doses de He a  $T_{amb}$  e tratadas termicamente mostram que elas apresentam o mesmo valor de  $H_{exc}$  e de  $H_c$  de aproximadamente 90 e 15 Oe, respectivamente. Segundo estes resultados, vemos que o valor do campo de *exchange* das amostras irradiadas com He a  $T_{amb}$  aumentou comparado com  $H_{exc}$  das amostras não irradiadas.

Segundo a caracterização magnética das amostras irradiadas com He a  $T_{amb}$  realizadas seis meses depois das irradiações iônicas observamos que o valor do campo de *exchange* aumentou. Como dito anteriormente, nos filmes irradiados a  $T_{amb}$  as alterações nas distâncias interatômicas trouxeram como consequência um melhor ordenamento químico e magnético. Podemos dizer que depois das irradiações iônicas os spins de pequenas regiões na interface FM/AFM foram reorientados aumentando o acoplamento de *exchange*. Assim, com o passar do tempo a reorientação de spins continuou a minimizar a energia, aumentando assim a anisotropia unidirecional. A partir da caracterização magnética destas amostras, depois de realizado o procedimento FC, observamos que o valor de  $H_{exc}$  varia segundo a dose de irradiação utilizada e que ele diminuiu em relação ao valor de  $H_{exc}$  das amostras medidas depois de seis meses de irradiação. No entanto, ele continua sendo maior que o valor de  $H_{exc}$  das amostras sem irradiação iônica. Este resultado era esperado uma vez que o tratamento térmico minimiza os defeitos gerados pelas irradiações, diminuindo o acoplamento de *exchange bias*.

A partir dos resultados da caracterização magnética das amostras irradiadas com Ne, podemos concluir que as irradiações com Ne tanto a  $T_{amb}$  como a  $T_{LN}$ , provocam um decréscimo considerável no campo de *exchange* e do campo coercivo.

A partir das medidas realizadas no microscópio óptico de varredura em campo próximo (SNOM), em diferentes regiões de amostras de NiFe(10nm)/FeMn(10nm), observamos que não há variações locais no campo de *exchange*. Este resultado nos indica

que apesar de estarmos medindo regiões muito pequenas da amostra, o campo de *exchange* representa o comportamento médio da interação de *exchange* destas regiões. Este fato é possível devido à alta permeabilidade da camada de NiFe, que média a interação de *exchange* apresentando um comportamento de *exchange* homogêneo. Vale a pena ressaltar que este comportamento homogêneo do valor de  $H_{exc}$  em todas as regiões medidas foi visto em todas as amostras analisadas, sejam amostras com diferentes espessuras  $t_{AF}$  e  $t_{AFM}$  e amostras irradiadas com He e Ne. As únicas amostras onde encontramos diferenças nas medidas magneto ópticas foram amostras depositadas no centro do porta-substrato. Nestas amostras observamos mudanças no sentido de  $H_{exc}$ . No entanto a magnitude do campo de *exchange* permaneceu inalterável.

Como foi visto, realizamos um extenso trabalho de análise cruzada entre as propriedades magnéticas e os parâmetros estruturais das amostras nas condições *as-cast* e após as irradiações iônicas com He e Ne. No entanto, o fenômeno de *exchange bias* não está totalmente compreendido. Outros estudos devem ser feitos para obter maior esclarecimento deste acoplamento como, por exemplo, um estudo mais aprofundado da estrutura fina dos filmes. Um outro estudo que pode ser feito é a análise de medidas de dicroísmo magnético linear visando extrair informação magnética da camada antiferromagnética dos filmes.

## Referências

1. W. H. Meikeljohn e C. P. Bean, *Phys. Rev.* **102** (1956) 1413.
2. W. H. Meikeljohn e C. P. Bean, *Phys. Rev.* **105** (1957) 904.
3. W. H. Meikeljohn, *J. Appl. Phys.* **33** (1962) 1328.
4. A. J. Devasahayam, P. J. Sides e M. H. Kryder, *J. Appl. Phys.* **83** (1998) 7216.
5. R. Jungblut, R. Coehoorn, M. T. Johnson, J. aan de Stegge e A. Reinders, *J. Appl. Phys.* **75** (1994) 6659.
6. G. Pan, S. Huo, D. G. Mapps e W. Clegg, *IEEE Trans. Magn.* **35** (1999) 3916.
7. C. M. Park, K. I. Min e K. H. Shin. *J. Appl. Phys.* **79** (1996) 6228.
8. C. X. Liu, C. T. Yu, H. Jiang, L. Y. Shen, C. Alexander, G. J. Mankey, *J. Appl. Phys.* **87** (2000) 6644.
9. K. Nishioka, C. H. Hou, H. Fujiwara e R. D. Metzger, *J. Appl. Phys.* **80** (1996) 4528.
10. S. Nagakawa, K. Nishimura, Y. Shimizu e M. Naoe, *IEEE Trans. Magn.* **35** (1999) 2970.
11. A. E. Berkowitz e K. Takano, *J. Magn. Magn. Mater.* **200** (1999) 552.
12. J. Nogués e I. K. Schuller, *J. Magn. Magn. Mater.* **192** (1999) 203.
13. M. Kiwi, *J. Magn. Magn. Mater.* **234** (2001) 584.
14. R. L. Stamps, *J. Phys.* **D 33** (2000) R247
15. N. H. March, P. Lambin, F. Herman, *J. Magn. Magn. Mater.* **44** (1984) 1.
16. T. J. Moran, J. M. Gallego, I. K. Schuller, *J. Appl. Phys.* **78** (1995) 1887.
17. M. Pakala, Y. Huai, G. Anderson e L. Miloslavsky, *J. Appl. Phys.* **87** (2000) 6653.

18. T. Lin, D. Mauri, N. Staud, C. Hwang, G. L. Gorman e J. K. Howard, *Appl. Phys. Lett.* **65** (1994) 1183.
19. B. Y. Wong, C. Mitdumata, S. Prakash e T. Kobayashi, *J. Appl. Phys.* **79** (1996) 7896.
20. R. D. Hempstead, S. Krongelb e D. A. Thompson, *IEEE Trans. Magn.* **14** (1978) 521.
21. C. Tsang e R. E. Fontana, *IEEE Trans. Magn.* **MAG-14** (1978) 521.
22. C. Tsang, *IEEE Trans. Magn.* **MAG-25** (1989) 3692.
23. C. Tsang, *IEEE Trans. Magn.* **26** (1990) 1689.
24. H. Takano, *IEEE Trans. Magn.* **27** (1991) 4678.
25. V. Ng, F.H. Chen e A. O. Adeyeye, *J. Magn. Magn. Mater.* **260** (2003) 53.
26. D. M. Kelly, I. K. Schuller, V. Korenivski, K. V. Rao, R. B. van Dover, *Phys. Rev. B.* **50** (1994) 3481.
27. C. Chappert, H. Bernas, J. Ferre, V. Kottler, J. P. Jamet, Y. Chen, E. Cambriil, T. Devoliver, F. Rousseaux, V. Mathet, H. Launois, *Science* **280** (1998) 1919.
28. T. Aign, P. Meyer, S. Lemerle, J. P. Jamet, J. Ferre, V. Mathet, C. Chappert, J. Gierak, C. Vieu, F. Rousseaux, H. Launois e H. Bernas, *Phys. Rev. Lett.* **81** (1998) 5656.
29. T. Devoliver, C. Chappert, Y. Chen, E. Cambriil, H. Bernas, J. P. Jamet, J. Ferre, V. *J. Appl. Phys. Lett.* **74** (1999) 3383.
30. D. Ravelosona, C. Chappert, V. Mathet e H. Bernas, *Appl. Phys. Lett.* **76** (2000) 236.
31. T. Mewes, R. Lopusnik, J. Fassbender, B. Hillebrand, M. Jung, D. Engel, A. Ehresmann e H. Schmoranzler, *Appl. Phys. Lett.* **76** (2000) 1057.
32. A. Mougin, T. Mewes, M. Jung, J. Fassbender, B. Hillebrand, D. Engel, A. Ehresmann e H. Schmoranzler, *Appl. Phys. Lett.* **63** (2001) 060409-1.
33. J. Juraszek, S. Poppe, J. Fassbender, T. Mewes, B. Hillebrands, D. Engel, A. Ehresmann e H. Schmoranzler, *J. Appl. Phys.* **91** (2002) 6896.
34. J. Fassbender e B. Hillebrand, *Appl. Phys. A77* **19** (2003) 51.
35. D. Engel, A. Ehresmann e H. Schmoranzler, *J. Magn. Magn. Mater.* **263** (2003) 275.

36. D. G. Hwang, S. S. Lee e C. M. Park, *Appl. Phys. Lett.* **72** (1999) 2162.
37. J. Nogués, D. Lederman, J. Moran, I. K. Schuller e K. V. Rao, *Appl. Phys Lett.* **68** (1996) 3186.
38. Y. D. Yao, Y. y. Chen, M. F. Tai, D. H. Wang e H. M. Lin, *Mater. Sci. Eng. A* **217** (1996) 281.
39. Y. D. Yao, Y. Y. Chen, M. F. Tai, D. H. Wang e H. M. Lin, *Mater. Sci. Eng.. A* **281** (1996) 217.
40. C. M. Hsu, H. M. Lin e K. R. Tsai, *J. Appl. Phys.* **76** (1994) 4798.
41. V. Papaefthymiou, S. Gangopadhyay e K. J. Klabunde, *J. Appl. Phys* **67** (1990) 4487.
42. Y. Iwasaki, M. Takiguchi e K. Bessho, *J. Appl. Phys.* **81** (1997) 5021.
43. A. E. Berkowitz, J. H. Greiner, *J. Appl. Phys.* **35** (1964) 925.
44. J. Moran, J. Nogués, D. Lederman e I. K. Schuller, *Appl. Phys Lett.* **72** (1998) 617.
45. J. Moran e I. K. Schuller, *J. Appl. Phys.* **79** (1996) 5109.
46. O. Massanet, R. Montmory e C. R. Acad, *Sci. Paris* **258** (1964) 1752.
47. Y. Iwasaki, A. T. Saito, A. Tsutai e M. Sahashi, *IEEE Trans. Magn.* **33** (1997) 2875.
48. T. Umemoto, A. Maeda, S. Takahashi, T. Tanuma e M. Kume, *Jpn. J. Appl. Phys.* **36** (1997) 6746.
49. H. Hoshiya, S. Soeya, Y. Hamakawa e R. Nakatani, *IEEE Trans. Magn.* **33** (1997) 2878.
50. K. Hoshino, R. Nakatani H. Hoshiya, Y. Sugita e S. Tsunashima, *Jpn. J. Appl. Phys.* **35** (1996) 607
51. H. N. Fuke, Y. Iwasaki, A. T. Saito, Y. Himiguchi e M. Sahashi, *J. Appl. Phys.* **81** (1997) 4004.
52. H. Hoshiya, S. Soeya e M. Fuyama, *J. Appl. Phys.* **80** (1996) 1006.
53. H. Yoda, Y. Iwasaki, T. Kobayashi, A. Tsutai e M. Sahashi, *IEEE Trans. Magn.* **32** (1996) 3363.
54. A. Tanaka, Y. Shimizu, H. Kishi, K. Nagasaka e M. Oshiki, *IEEE Trans. Magn.* **33** (1997) 3592.

55. H. Kishi, Y. Shimizu, K. Nagasaka, A. Tanaka e K. Kobayashi, e M. Oshiki, *IEEE Trans. Magn.* **32** (1996) 3380.
56. J. N. Chapman, M. F. Guilles e P. P. Freitas, *J. Appl. Phys.* **79** (1996) 6452.
57. V. A. Sereдкин, G. I. Frolov e V. Y. Yakavchik, *Phys. Met. Metall.* **63** (1987) 34
58. F. Hellman, R. B. van Dover e E. M. Gyorgy, *Appl. Phys. Lett.* **50** (1987) 296.
59. D. V. Dimitrov, A. S. Murthy, G. C. Hadjipanagis e C. P. Swann, *J. Appl. Phys.* **79** (1996) 5106.
60. D. M. Lind, K. A. Shaw e S. D. Berry, *J. Appl. Phys.* **76** (1994) 6284.
61. P. J. van der Zaag, R. M. Wolf, A. R. Ball, C. Bordel, L. F. Feiner e R. Jungblut, *J. Magn. Magn. Mater.* **148** (1995) 346.
62. J. Nogués, D. Lederman, T. J. Moran, and I. K. Schuller, *Phys. Rev. Lett.* **76** (1996) 4624.
63. C. Leighton, J. Nogués, H. Suhl, and I. K. Schuller, *Phys. Rev. Lett.* **60** (1999) 12837.
64. C. M. Hsu, H. M. Lin e K. R. Tsai, *J. Appl. Phys.* **76** (1994) 4793.
65. H. M. Lin, C. M. Hsu, Y. D. Yao, Y. Y. Chen e C. Y. Tung, *NanoStruct. Mater.* **6** (1995) 977.
66. H. Heffner e G. Wade, *J. Appl. Phys.* **31** (1960) 2316.
67. J. H. Greiner, I. M. Croll e M. Sulich, *J. Appl. Phys.* **32** (1961) 188S.
68. J. S. Kouvel, *J. Phys. Chem. Sol.* **24** (1963) 271.
69. D. L. Peng, *Phys. Rev. B* **61** (2000) 3103.
70. L. Néel, *Ann. Phys. (Paris)* **2** (1967) 61.
71. A. P. Malozemoff, *Phys. Rev. B* **35** (1987) 3679.
72. A. P. Malozemoff, *Phys. Rev. B* **37** (1988) 7673.
73. B. Dieny, V. S. Speriosu, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, D. R. Wilhoit, e D. Mauri, *Phys. Rev. B* **43** (1991) 1297.
74. N. C. Koon, *Phys. Rev. Lett.* **78** (1997) 4865.

75. T. C. Schulthess and W. H. Butler, *Phys. Rev. Lett.* **81** (1998) 4516.
76. T. Ambrose, C.L. Chien, *J. Appl. Phys.* **83** (1998) 6822.
77. M. T. Lin, C. Ho, C. Chang e Y. Yao, *Phys. Rev. B* **63** (2001) 100404R.
78. M. T. Lin, C. Ho, C. Chang, W. Pan, Y. Yao, O. de Haas, R. Schafer e C. Schneider, *J. Magn. Magn. Mater.* **239** (2002) 375.
79. B. Dieny, V. S. Speriosu, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, D. R. Wilhoit, e D. Mauri, *Phys. Rev. B* **43** (1991) 1297.
80. Y. Imry e S. K. Ma, *Phys. Rev. Lett.* **35** (1975) 1399.
81. A. E. Berkowitz, K. Takano, R.H. Kodama, W. Cao e G. Thomas, *Phys. Rev. Lett.* **79** (1997) 1130.
82. D. Ozkaya, R. Langford, W. Chan e A. Petford-Long, *J. Appl. Phys.* **91** (2002) 9937.
83. W. Kaminsky, G. Jones, N. Patel, W. Booiij, Y. Xu e A. Bland, *Appl. Phys. Lett.* **78** (2001) 1589.
84. S. Woods, A. Ingvarsson, H. Hamann e R. Koch, *Appl. Phys. Lett.* **81** (2002) 1267.
85. D. McGrouther, J. N. Chapman, F. W. M. Vanhelmont, *J. Appl. Phys.* **95** (2004) 4479.
86. Z.B.Guo, K.B. Li, G.C. Han, Z.Y. Liu, P. Luo e Y.H. Wu, *J. Magn. Magn. Mater.* **44** (2002) 1.
87. A. Mougin, S. Poppe, J. Fassbender, B. Hillebrands, G. Faini, U. Ubels, M. Jung, D. Engel, A. Ehresmann e H. Schmoranzer, *J. Appl. Phys.* **89** (2001) 6606.
88. S. Poppe, J. Fassbender, B. Hillebrands. *Europhys. Lett.* **66** (2004) 430.
89. C. Leighton, J. Nogués, B. J. Jonsson-Akerman e Ivan K. Schuller, Schuller, *Phys. Rev. Lett.* **84** (2000) 3466.
90. Tsang, N. Heiman e K Lee. *J. Appl. Phys.* **52** (1981) 2471.
91. M. Mao, C. Cerjan, B. Law, F. Grabner e S. Vaidya. *J. Appl. Phys.* **87** (2000) 4933.
92. L. Ritchie, X. Liu, S. Invarsson, G. Xiao, J. Du e J. Q. Xiao. *J. Magn. Magn. Mater.* **247** (2002) 187-190.
93. Olleta Allegranza e Mao Min Chen. *J. Appl. Phys.* **73** (1993) 6218.

94. G. Choe e S. Gupta, *Appl. Phys. Lett.* **70** (1997) 1766.
95. M.H. Li, J. Cai, G. Yu, H. Jiang, W. Lai e F. Zhu. *J. Appl. Phys.* **92** (2002) 2620.
96. M. H. Tabacniks, *Análise de Filmes Finos por Pixe e RBS*, I Escola Brasileira de Magnetismo, IFUSP-São Paulo, p. 14.1-14.21 (1998)
97. L. R. Doolittle, *Algorithms for the rapid simulation of Rutherford Backscattering spectra*, *Nuclear Instrument and Methods in Physics Research* **B9** (1995) 344.
98. Cullity, B. D. *Elements of X-Ray Diffraction*. 2. Ed. California, Adison-Wesley Publishing Company, Inc., 1978
99. Jeroen Schoenmaker, *Desenvolvimento de um Microscópio Óptico e Magnetoóptico de Varredura em Campo-próximo*, Tese de Doutorado – IFUSP (2005).