# Ressonância Ferromagnética aplicada ao estudo da anisotropia magnética em multicamadas de Co/Pd

José Alexandre Romano

#### Membros da banca examinadora:

Prof. Dr. Edson Corrêa da Silva (orientador) – IFGW/UNICAMP Prof. Dr. João Edgar Schmidt – UFRGS - RS Prof. Dr. Antônio Alberto Ribeiro Fernandes – IME - RJ Prof. Dr. Sérgio Gama – IFGW/UNICAMP Prof. Dr. Flávio César Guimarães Gandra – IFGW/UNICAMP

#### Prof. Dr. Edson Corrêa da Silva (orientador)

Tese apresentada ao Instituto de Física Gleb Wataghin da UNICAMP como parte dos requisitos para a obtenção do título de Doutor em Ciências.

Campinas – SP Dezembro - 1997

Π

À Kuca e Raquel

### Agradecimentos

Devo meus agradecimentos a muitas pessoas com as quais convivi durante estes últimos anos. Dentre as quais há pessoas que, apesar de não participarem do meu ambiente de trabalho, de uma ou outra forma estiveram envolvidas no meu trabalho e no meu dia-adia. Estou muito grato a elas pela sua ajuda.

Ao Prof. Edson C. da Silva, pela sua orientação e dedicação ao longo deste trabalho, bem como pela amizade, estímulo e encorajamento para que eu desenvolvesse minha tese de doutorado na área de magnetismo;

Ao Prof. Flávio Gandra pelas medidas de magnetização, discussões, sugestões, cafés e amizade;

Ao Prof. Antonio pela ajuda na área computacional e pela amizade;

Ao Prof. João Schmidt pelas amostras e pelas discussões, que apesar de poucas, devido a barreira geográfica, foram densas;

Ao Flávio, engenheiro do CEMEQ, que tantas e tantas vezes resolveu os problemas do nosso bom e velho equipamento de EPR. Sem a sua ajuda, a conclusão deste trabalho teria sido muito difícil.

Ao Prof. Retori, por ter cedido o equipamento de EPR durante o tempo de reforma de nosso departamento;

Aos amigos do grupo de Fototérmica e Ressonância Magnética: Zé Roberto, Gerias, Dinah, Paulo, Martin, Pereira, Daniel e Laura, pela amizade e todo tipo de ajuda;

Aos amigos do grupo de Metais e Ligas: Daniel, Vinicius e em particular, o Medina, pela amizade e ajuda nas medidas de magnetização;

Às Fundações CAPES e FAPESP pela ajuda financeira

Às secretárias do departamento, da CPG e da biblioteca do IF;

À Kuca, minha esposa e companheira, pela sua compreensão, carinho e ajuda, a quem eu devo muito mais que este trabalho.

## Índice

Capítulo 1: Introdução	1
1.1 Localização do tema	2
1.2 Contribuição de volume e superfície para a energia de anisotropia	3
1.3 Meio magneto-óptico de gravação	7
1.4 Origem da anisotropia de superfície	9
Capítulo 2: Teoria da Ressonância Ferromagnética	12
2.1 Fundamentos da ressonância ferromagnética	13
2.1.1 Breve histórico da ressonância ferromagnética	13
2.1.2 Fenomenologia da ressonância ferromagnética	14
2.2 A precessão amortecida da magnetização	16
2.3 O tensor da susceptibilidade dinâmica	19
2.4 Fórmula geral para a freqüência de microondas	23
2.5 Energia livre e anisotropia magnética	25
2.6 Condição de ressonância para um filme fino	28
2.6.1 Filme policristalino com anisotropia perpendicular ao plano .	28
Aplicação: caracterização magnética de um filme	
fino de Co por ressonância ferromagnética	33
2.6.2 Filme policristalino com anisotropia no plano	38
Aplicação: caracterização de um filme multicamada	
de Co/Ag por ressonância ferromagnética	40
2.7 Ressonância de ondas de spin em filmes finos	41
Capítulo 3: Técnicas experimentais e amostras utilizadas	45
3.1 Amostras	46
3.2 Técnicas experimentais	47
3.2.1 Ressonância Ferromagnética (FMR)	47

3.2.2 Magnetometria de amostra vibrante (VSM)	50
Capítulo 4: Resultados experimentais e discussão	51
4.1 Efeito da implantação de Ar <sup>+</sup> na anisotropia magnética	
de multicamadas de Co/Pd	52
4.2 Determinação da anisotropia de interface em multicamadas	
de Co/Pd	65
4.3 Discussão sobre a largura de linha dos espectros de FMR	76
4.4 Estudo da ressonância de baixo campo em multicamadas	
de Co/Pd	79
4.5 Influência do tratamento térmico na anisotropia magnética	
em multicamadas de Co/Pd	86
Análise dos modos em baixo campo da amostra	
CP9 (23/19 Å) como preparada	89
4.6 Estudo da amostra CP6 (4.5/15 Å) <sub>50</sub>	90
Capítulo 5: Conclusões finais e sugestões para trabalhos futuros	97
Referências	100

#### <u>Resumo</u>

O tema central desta tese é o estudo de propriedades magnéticas de multicamadas ultrafinas (ML's) de Co/Pd usando a técnica da ressonância ferromagnética (FMR). O trabalho é motivado pela busca de um entendimento dos mecanismos que ocorrem em sistemas de multicamadas magnéticas metálicas causando um aumento da anisotropia magnética. Quando a espessura da camada de Co é de apenas algumas camadas atômicas, a elevada anisotropia faz com que a magnetização seja perpendicular ao plano do filme. O aumento desta anisotropia pode ser explicado, em alguns casos, pelo modelo sugerido por Néel o qual atribui sua elevação à assimetria nas vizinhanças de um átomo na superfície da camada magnética. Também já foi observado que a energia magnetoelástica, dependendo da mistura dos átomos nas interfaces e da espessura da camada de Co, pode contribuir para esta anisotropia. Entretanto, esta é uma questão aberta e a origem microscópica da anisotropia de superfície, ou de interface, ainda não é clara.

No sentido de contribuir para o entendimento destas questões, estudamos amostras com camadas de Co de diferentes de espessuras e determinamos as contribuições de volume e de interface para a energia de anisotropia. Um conjunto das amostras sofreu implantação de íons Ar<sup>+</sup> a diferentes dosagens (1x10<sup>13</sup> a 7.5x10<sup>14</sup> íons/cm<sup>2</sup>) com o objetivo de modificar gradativamente as interfaces com relação rugosidade e interdifusão entre os átomos de Co e Pd e, desta forma afetar a anisotropia de interface. Outro conjunto sofreu tratamento térmico, a diferentes temperaturas, a fim de determinarmos sua influência na anisotropia magnética.

Através da análise da largura de linha dos espectros de FMR, fomos capazes de fazer uma abordagem qualitativa das interações entre as camadas de Co e da homogeneidade das amostras. Analisamos também a influência do substrato, vidro ou silício, na anisotropia magnética e na homogeneidade e qualidade dos filmes.

Estudamos ainda com a FMR outros modos de ressonância que aparecem nestes sistemas, alguns cuja origem é atribuída a interações entre as camadas de Co, e outro cuja origem ainda não é bem entendida. Além da FMR, utilizamos também VSM (vibrating sample magnetometer), e SMOKE (surface magneto-optic Kerr effect) como técnicas subsidiárias.

#### Abstract

The central theme of this thesis is the study of magnetic properties of ultrathin multilayers (ML's) of Co/Pd using the ferromagnetic resonance technique (FMR). The work is motivated by the search of a better understanding of the mechanisms that occurs in the metallic magnetic multilayers systems that causes an increase on the magnetic anisotropy. When the thickness of the Co layer is just a few atomic layers, the high anisotropy even causes the magnetization to be perpendicular to the plane of the film. The increase of this anisotropy can be explained, in some cases, using the model suggested by Néel which attributes this increase to the asymmetry in the neighborhood of the atoms at the surface of the magnetic layer. It was already observed that the magnetoelastic energy, depending on the mixture of the atoms at the interfaces and of the thickness of the Co layer, can contribute to this interface anisotropy. However, this is an open question and the microscopic origin of the surface anisotropy, or interface anisotropy, is still not clear.

With the purpose to colaborate with the clarification of these questions, we studied samples with different thicknesses of the Co layer and we determined the volume and interface contributions to the anisotropy energy. A set of samples were submitted to  $Ar^+$  ion implantation at different doses (1x10<sup>13</sup> to 7.5x10<sup>14</sup> ions/cm<sup>2</sup>). The objective is to modify gradually the interfaces with respect to the rugosity and interdiffusion between the Co and Pd atoms and, in this way, to affect the interface anisotropy. Another set was heat treated in several temperatures, in order to determine its influence on the magnetic anisotropy.

Using the FMR line-width results we were able to make a qualitative description of the interactions among the Co layers and of the homogeneity of the samples.

We have also analyzed the influence of the substrate, either glass or silicon, on the magnetic anisotropy and on the homogeneity and quality of the films.

Other FMR resonance modes were observed in our ML's systems. We attributed some of them to interactions between the Co layers. However there is still one mode whose origin is not well understood. Besides the FMR technique, we also used VSM (vibrating sample magnetometer), and SMOKE (surface magneto-optic Kerr effect) as subsidiary techniques.

# Capítulo 1:

Introdução

Neste capítulo localizamos o tema de nosso trabalho, abordando o interesse e objetivos do estudo de multicamadas magnéticas, e relatamos brevemente resultados recentes da literatura. No capítulo 2 descrevemos a teoria da ressonância ferromagnética e sua aplicação ao estudo de filmes magnéticos finos e ultrafinos. Como ilustração, aplicamos a teoria estudada a dois casos típicos: um filme com anisotropia perpendicular ao plano, e outro, com uma pequena anisotropia uniaxial no plano do filme. As amostras estudadas e a descrição das técnicas experimentais utilizadas são apresentadas no capítulo 3. Os resultados experimentais são apresentados no capítulo 4, onde usamos a FMR para obter as contribuições de volume e de interface para a energia de anisotropia,  $K_V$  e  $K_S$ respectivamente; tratamos a influência da implantação de íons de Ar<sup>+</sup> na anisotropia magnética das multicamadas; estudamos a origem do modo adicional de ressonância que ocorre nestes sistemas e analisamos ainda a influência do tratamento térmico nas propriedades magnéticas das multicamadas. Também, através dos parâmetros obtidos dos espectros de FMR, fazemos uma abordagem qualitativa das interações entre as camadas de Co e da influência do substrato na anisotropia magnética e na qualidade dos filmes. Finalmente, no capítulo 5, apresentamos uma conclusão geral de nosso trabalho e lançamos algumas idéias para trabalhos futuros.

#### <u>1.1 Localização do tema</u>

O estudo de multicamadas (ML's) metálicas ultrafinas de elementos magnéticos separados por não magnéticos, tem sido intensificado nos últimos anos devido tanto a um interesse tecnológico, como também de pesquisa básica na busca pela compreensão de fenômenos físicos que não estão ainda elucidados. Por exemplo, para multicamadas de Co/Pd, Co/Pt, Co/Au e Co/Cu [1-4], uma grande anisotropia perpendicular ao plano do filme é observada quando a espessura da camada magnética é reduzida a algumas camadas atômicas. Para termos uma idéia da magnitude desta anisotropia, consideremos um exemplo da literatura: uma multicamada de Co/Pd, com espessuras de 2/11 Å, possui uma anisotropia

magnética de 5.0 x 10<sup>7</sup> erg/cm<sup>3</sup> [2], enquanto que o Co, em sua forma volumar, possui 8.5 x 10<sup>6</sup> erg/cm<sup>3</sup>. Este fato coloca estes materiais como fortes candidatos a um meio de gravação magneto-óptico de alta densidade [3,4]. Do ponto de vista fenomenológico, estes sistemas são interessantes pois busca-se ainda um entendimento mais completo das causas que levam ao aumento da anisotropia observada.

Com relação à técnica, a ressonância ferromagnética (FMR) já tem se estabelecido como uma poderosa ferramenta no estudo e na determinação de propriedades magnéticas de filmes ferromagnéticos finos e ultrafinos [5,6,20,21], tais como: anisotropia magnética [7,8], fator g e parâmetro de amortecimento magnético [9], e medidas de acoplamento de troca entre camadas magnéticas separadas por um meio não magnético [10-12]. Além disso, a FMR também é utilizada como uma técnica complementar no controle da qualidade dos filmes, uma vez que inomogeneidades magnéticas, propriedades estruturais e morfológicas, como existência de fases, afetam seus parâmetros espectrais [13-15].

### 1.2 Contribuição de volume e de superfície para energia de anisotropia

A propriedade da energia de um sistema magnético variar com a orientação da magnetização, em relação a um sistema de coordenadas escolhido no material, é definida como anisotropia magnética. Em filmes finos, as contribuições para a anisotropia total vêm da anisotropia de forma, também chamada de energia desmagnetizante ou ainda, energia magnetostática, da anisotropia magnetocristlina e da anisotropia magnetoelástica. A origem e atuação de cada uma delas na energia livre do sistema são explicadas na seção 2.5. Em filmes ultrafinos há que considerar-se ainda a anisotropia de superfície, também chamada de anisotropia de interface, no caso de estruturas multicamadas. Na seção 1.4 damos um breve relato de alguns modelos que se propõem a explicar sua origem.

No estudo da densidade de energia anisotrópica em filmes ultrafinos, tem-se assumido [16,17] que esta pode ser escrita como a relação fenomenológica abaixo:

$$K_{ef} = K_V + \frac{2K_S}{t} \tag{1.1}$$

onde  $K_{ef}$  a é anisotropia efetiva por unidade de volume,  $K_V$  contém as contribuições volumétricas (energia desmagnetizante devido à forma da amostra e anisotropias magnetocristalina e magnetoelástica),  $K_S$  é a anisotropia de superfície e *t* é a espessura da camada magnética. O fator 2 deve-se ao fato de haver duas superfícies por camada. O termo  $K_V$ , em multicamadas magnéticas é, via de regra, negativo, pois a energia desmagnetizante, a qual favorece um eixo fácil para a magnetoelástica, que podem ser positivas dependendo da microestrutura do material e das condições de crescimento do filme. O eixo fácil é definido como sendo a direção na qual os momentos magnéticos se alinham mesmo na ausência de um campo externo. Valores positivos de  $K_{ef}$  implicam em eixo fácil paralelo ao plano. Pode-se ver da equação 1.1 que, na medida que a espessura da camada magnética decresce, aumenta a contribuição das interfaces, podendo assim, abaixo de uma de espessura crítica *t<sub>C</sub>*, ocorrer uma mudança no sinal de  $K_{ef}$  e, consequentemente, na direção do eixo fácil da magnetização.

A equação 1.1 é usada em resultados experimentais para determinação de  $K_V$  e de  $K_S$ , plotando-se  $K_{ef}t$  versus t. O coeficiente angular obtido do ajuste linear com esta equação fornece a contribuição de volume  $K_V$ , e a contribuição de interface  $K_S$  pode ser obtida do coeficiente linear, como ilustrado na figura 1.1. A anisotropia efetiva pode ser obtida por diferentes técnicas (ressonância ferromagnética, magnetometria de amostra vibrante VSM, efeito Kerr magneto-óptico), como veremos nos capítulos seguintes.



<u>Figura 1.1</u>: Gráfico ilustrando como se obtém as contribuições de volume de superfície para energia de anisotropia, a partir de medidas da anisotropia efetiva para diferentes espessuras do elemento magnético.

Embora este método seja freqüentemente utilizado e tenha se mostrado útil na análise da anisotropia magnética em filmes finos, deve-se tomar alguns cuidados na sua aplicação. A equação 1.1 é válida dentro de certos limites para a espessura do elemento magnético, pois nesta descrição assume-se que a anisotropia na superfície é sentida pelo sistema como um todo, ou seja, a camada deve comportar-se como uma entidade magnética única, de forma que seus momentos magnéticos estejam alinhados. Isto é válido quando a camada for mais fina que o comprimento de troca (*exchange*) o qual, no caso do Co, está em torno de 30 Å. Também assume-se que as contribuições de volume sejam independentes da espessura. Sabese que para camadas muito finas, da ordem de uma ou duas camadas atômicas,  $K_V$  pode ter uma dependência com 1/t devido a efeitos de estresse, como veremos na seção 1.4. Para camadas de Co/Pd este efeito começa a manifestar-se abaixo de 5 ou 6 Å.

A espessura de transição  $t_c$ , na qual ocorre a mudança de eixo fácil, depende de qual elemento é usado como espaçador. Isto pode ser verificado pelos resultados experimentais, obtidos por den Broeder e co-autores [2], apresentados na tabela 1.1.

para munu	Lamadas de CO/A.		
X	$K_V$ (10 <sup>7</sup> erg/cm <sup>3</sup> )	$K_S$ (erg/ $cm^2$ )	$t_{c}\left(\hat{\mathcal{A}}\right) = \frac{2K_{s}}{K_{v}}$
Pt	-1.00	0.50	10.0
Au	-0.70	0.58	17.0
Cu	-0.80	0.10	2.5
Ag	-0.97	0.20	4.0
Ir	-1.20	~0.8	13.0
Mo	-0.84	~0.3	7.0

<u>Tabela 1.1:</u> Valores de K<sub>V</sub> e K<sub>S</sub>, obtidos da referência 2, para multicamadas de Co/X.

Na tabela 1.2 são apresentados alguns resultados da literatura para  $K_V$  e  $K_S$ , em multicamadas de Co/Pd. Ainda que o elemento não magnético seja o mesmo (Pd, no caso), a espessura de transição pode variar, dependendo da técnica e das condições utilizadas no preparo do filme, e ainda, da orientação dos átomos na multicamada. Também estão indicados na tabela 1.2, a técnica de crescimento, a espessura de transição  $t_C$  e a microestrutura da multicamada. O fato de não serem todas as amostras preparadas e medidas pelo mesmo grupo de pesquisa, introduz, obviamente, um erro experimental.

$K_{s}$ (erg/cm <sup>2</sup> )	$K_V(10^7 erg/cm^3)$	estrutura	t <sub>c</sub> (Å)	técnica	referência
0.16	-0.90	poli (111)	8	sputtering	18
0.32	-0.53	poli (111)	-	sputtering	19
0.40	-0.98	-	8	sputtering	21
0.39	-0.96	-	9	sputtering	3
0.63	-5.00	(100)	3	MBE	17
0.63	-1.80	(110)	7	MBE	17
0.63	-0.50	(111)	24	MBE	17
0.63	-1.20	poli (111)	11	MBE	17
0.26	-0.72	poli (111)	8	e-beam	16
0.55	-1.20	poli (111)	-	e-beam	7
0.35	-1.08	poli (111)	-	e-beam	22
0.55	-1.20	poli (111)	-	e-beam	19

Tabela 1.2: Valores de Ky e Ks obtidos da literatura para multicamadas de Co/Pd.

Especial atenção deve ser dada às amostras preparadas por MBE (molecular beam epitaxy) mostradas na tabela 1.2. Todas foram preparad-as pelo mesmo grupo e, apesar das diferenças estruturais, apresentaram, surpreendentemente, a mesma anisotropia de superfície. Este trabalho tem levantado fortes possibilidades de que, pelo menos no caso de sistemas Co/Pd, a anisotropia de interface não dependa da orientação dos átomos. Já, para os valores de  $K_V$  são esperadas variações, pois o crescimento ao longo de diferentes eixos cristalográficos produz diferentes contribuições para as anisotropias magnetocristalina e magnetoelástica. Valores de  $K_V$  diferentes implica em coeficientes angulares diferentes na equação 1.1 (figura 1.1) e, consequentemente, espessuras de transição diferentes, como observado na tabela.

#### <u>1.3 Meio magneto-óptico de gravação</u>

Embora meios magneto-ópticos (MO) de gravação já sejam aplicados comercialmente [23], há ainda muito interesse no desenvolvimento de novos materiais na busca de meios cuja capacidade de armazenamento de informação seja maior. São os chamados meios MO de alta densidade. Há estimativas de que em menos de 20 anos se chegara à extraordinária capacidade de 10<sup>8</sup> bits/mm<sup>2</sup> [24,25]. Ainda há a vantagem óbvia destes meios sobre os meios ópticos (CD) por permitirem apagar e regravar a informação.

Dentre as características mais desejáveis de um meio magneto-óptico de gravação, duas são mais importantes: o material deve ter uma anisotropia uniaxial grande de forma que a magnetização fique perpendicular ao plano do filme e um campo coercivo que diminua com o aumento da temperatura. O primeiro ponto é importante por aumentar a densidade de informação que se pode armazenar no material. O segundo, está relacionado com a forma de se escrever a informação no material. Damos a seguir uma descrição fenomenológica básica do processo de gravação e leitura.

No processo de gravação aplica-se um campo magnético cujo sentido é oposto ao da magnetização do material (veja figura 1.2), a qual deve estar saturada, e um laser com potência de 5 a 10 mW para provocar um aquecimento localizado. A intensidade do campo

magnético aplicado é tal que, na temperatura ambiente é menor que a coercividade do material e, na temperatura de aquecimento, maior que a coercividade. Desta forma, a magnetização na região aquecida localmente, assumirá a direção do campo aplicado e manterá sua posição quando o meio for esfriado e, nas regiões não aquecidas, a magnetização não sofre mudanças. Assim pode-se definir um sistema binário para as duas posições da magnetização (paralela e anti-paralela ao campo aplicado). Para se apagar a informação, basta aplicar no material um campo magnético maior que seu campo coercivo.



Figura 1.2: Ilustração simplificada do processo de gravação magneto-óptico.

No processo de leitura, um feixe de luz polarizada incide no material e o feixe refletido é coletado por um sistema óptico (lentes, colimadores, polarizadores) até um detetor. Devido à interação do vetor do campo magnético do feixe incidente com a magnetização do material localizada em um monodomínio, o eixo de polarização do feixe refletido sofre uma rotação(efeito Kerr magneto-óptico). Há duas direções possíveis para esta rotação, a qual depende da magnetização no monodomínio ser paralela ou anti-paralela. Desta forma, a informação gravada pode ser lida em um sistema binário.

Com relação às características e propriedades para um material candidato a meio MO de gravação, ainda há outros pontos importantes. Buscam-se materiais que tenham capacidade de suportar domínios relativamente pequenos, que apresentem um bom desvio do ângulo de rotação Kerr  $\theta_{\rm K}$  e uma boa refletividade, de forma a resultar numa boa razão

sinal-ruídio, que sejam resistentes à corrosão e ainda que suas propriedades magnéticas se mantenham estáveis ao longo dos anos.

Os materiais utilizados como meios MO de gravação existentes no mercado são compostos de elementos terras raras e metais de transição e enfrentam problemas de corrosão. Com o tempo, os elementos de terras raras tendem a formar óxidos não magnéticos [26]. Dentre os candidatos a novos meios MO de gravação, sistemas multicamadas de Co/Pd e Co/Pt, apesar de possuírem propriedades magnéticas ligeiramente inferiores às ligas amorfas de terras raras, têm se destacado por apresentarem um bom  $\theta_{\rm K}$  (~0.2<sup>o</sup>), e ainda por possuírem uma excelente resistência à corrosão [27].

#### <u>1.4 Origem da anisotropia de superfície</u>

Néel foi o primeiro a teorizar a origem da anisotropia de superfície, utilizando o modelo de interação de par de van Vleck [28]. Néel estendeu o modelo proposto para o cálculo da anisotropia magnetocristalina de um material volumar, para o cálculo da anisotropia de átomos na superfície do material. Considerando as interações dipolar e spinórbita de um átomo com seu vizinhos, quando localizado internamente ou na superfície do material, Néel encontrou uma diferença de energia nos dois casos, devido à diferença da simetria local, a qual chamou de anisotropia de superfície [29].

De acordo com o modelo de Néel, espera-se que a anisotropia de interface em multicamadas de Co/X, onde X é o átomo não magnético, dependa de X apenas pela sua influência na estrutura das camadas de Co [30]. De fato, tem sido observada uma forte dependência de K<sub>V</sub> e K<sub>S</sub> com relação à orientação dos átomos nas multicamadas em sistemas Co/Pt, Co/Ni e Co/Cu [1]. Porém, resultados experimentais recentes, em multicamadas de Co/Pd, demostraram que a anisotropia de superfície, nestes sistemas, não depende da epitaxia da multicamada [17] (veja os resultados desta referência na tabela 1.2). Também, cálculos de primeiros princípios, usando a aproximação da densidade de spin local (local-spin-density approximation LSDA) e, considerando a estrutura eletrônica dos átomos,

mostram que a energia de anisotropia depende do tipo de átomo X adjacente à camada magnética [31].

Embora o modelo de interação de par contribua significativamente para o entendimento da anisotropia magnética, sua aplicação para anisotropia de superfície pode ser, em alguns casos, incorreta fundamentalmente, levando à previsões erradas para o sinal de  $K_S$  [32]. Isto nos mostra que a teoria de Néel está incompleta.

Além da contribuição de Néel para a anisotropia de superfície, tem sido proposto que o estresse em multicamadas, apesar de contribuir para a anisotropia de volume, pode também, em situações particulares, contribuir para a anisotropia de superfície. Além de possíveis diferenças entre os coeficientes de expansão térmica dos materiais que formam a multicamada e estresses intrínsecos ao processo de deposição, diferenças entre o parâmetro de rede de seus constituintes, podem também originar tensões no filme. Com relação ao último caso, dois regimes devem ser definidos. Se o descasamento de rede  $\eta = (a_A - a_B)/a_A$ , onde *a* é o parâmetro de rede, entre os dois elementos *A* e *B* que compõem a multicamada não for grande, a minimização da energia total, abaixo de uma determinada espessura, conduz a um acomodamento introduzindo uma tensão expansiva em um elemento e compressiva em outro, de forma que os dois elementos assumem, no plano, o mesmo parâmetro de rede [33]. Este é o regime coerente. Acima da espessura mencionada, tem-se o regime incoerente ou parcialmente coerente.

No regime coerente, pode-se mostrar que, se a espessura do elemento magnético for muito maior que a do não magnético, a tensão gerada influenciará apenas as contribuições de volume para a energia de anisotropia. O mesmo também ocorrerá se a razão entre as espessuras for constante ao longo da multicamada. Para o outro regime, não é fácil de se calcular a tensão. Chappert e Bruno [34] o fizeram para um caso especial de uma única camada sobre um substrato rígido e mostraram que, neste caso, a tensão tem uma dependência com o inverso da espessura. Neste caso, a equação 1.1 não é mais válida, pois a energia magnetoelástica, embutida em  $K_V$ , depende de t.

Nestes dois modelos as interfaces são consideradas perfeitamente lisas. Na prática, isto não ocorre, e as interfaces apresentam rugosidades e/ou interdifusão entre os átomos constituintes, que podem influenciar a anisotropia magnética. Bruno [34] considerou as

interfaces formadas por degraus ou crateras e calculou a contribuição deste efeito, via interação dipolar, na anisotropia de forma. Os degraus criam, nas interfaces, campos desmagnetizantes locais que diminuem a anisotropia desmagnetizante total do filme, contribuindo, assim, positivamente para a anisotropia efetiva. Porém, a contribuição deste efeito na anisotropia de superfície é muito pequena (0.001 erg/cm<sup>2</sup> para o Co (0001)). Já, a interdifusão nas interfaces reduz a assimetria entre os átomos diminuindo assim a contribuição de Néel.

# Capítulo 2:

Teoria da Ressonância Ferromagnética

#### 2.1 Fundamentos da ressonância ferromagnética

Entende-se por ressonância ferromagnética a absorção de radiação eletromagnética por um material ferromagnético. Esta absorção se passa na presença de um campo magnético, em torno do qual o momento magnético total do material precessiona. A absorção ressonante ocorre quando a freqüência desta precessão coincide com a freqüência do campo de radiação eletromagnética. Esta freqüência, por sua vez, se localiza na região de microondas.

#### 2.1.1 Breve histórico da ressonância ferromagnética

A descoberta do fenômeno deve-se a Arkad 'yev [35, 36] que foi o primeiro a observar a absorção ressonante de microondas em fios de Ni e Fe em 1912. Somente em 1923, Dorfman [37] explicaria qualitativamente o fenômeno a partir de transições Zeeman. Após esta data, praticamente não houve nenhum progresso até o trabalho teórico de Landau e Lifshitz [38] em 1935 que veio lançar nova luz sobre o comportamento de um material ferromagnético na presença de microondas. O estudo experimental do fenômeno só voltou em 1946, quando a absorção ressonante de microondas foi observada mais claramente que em 1912 em ligas de Ni-Fe por Griffiths [39] e simultaneamente por Zavoiskii [40], que havia descoberto a ressonância paramagnética em 1944 [41]. Novas motivações surgiram e mais trabalhos teóricos e experimentais. Em 47, Kittel [42] e em 50, Van Vleck [43] generalizaram, em seus trabalhos, os cálculos de Landau e Lifshitz. Desde então, sucessivos trabalhos consolidaram teórica e experimentalmente a ressonância ferromagnética no estudo de materiais magnéticos [44-48].

#### 2.1.2 Fenomenologia da ressonância ferromagnética

Considere a figura 1 onde é mostrado um material ferromagnético na presença de um campo externo  $H_0$ . Os momentos magnéticos  $\mu$  sofrem um torque devido a presença do campo e passam a precessionar em torno de  $H_0$ , de acordo com a equação:

$$\frac{d\vec{\mu}}{dt} = -\gamma \left[\vec{\mu} \times H_0\right] \tag{2.1}$$

onde  $\gamma = g\mu_B/\hbar$  é a razão giromagnética, g é o fator de *splitting* espectroscópico (similar ao fator de Landé) e  $\mu_B$ , o magneton de Bohr ( $\mu_B \cong 10^{-20}$  e.m.u.). Em primeira aproximação, esta equação pode ser tratada classicamente chegando-se a freqüência de precessão clássica encontrada por Larmor [49]:

$$\omega_0 = \frac{g\mu_B}{\hbar} H_0 \tag{2.2}$$



<u>Figura 2.1</u>: Material ferromagnético na presença de um campo externo  $H_0$  e de um campo oscilante h(t). A magnetização M precessiona em torno de  $H_0$  com uma freqüência  $\omega$ .

Se o material for então homogeneamente magnetizado pela ação do campo externo até um estado de saturação magnética, a estrutura de domínios é quebrada e toda a amostra comporta-se como um monodomínio. Assim o problema pode ser tratado como a precessão da magnetização total do material *M*, que é a soma de todos os momentos magnéticos dos elétrons, no material, por unidade de volume.

O elétron, em um material ferromagnético, devido à sua interação com a rede cristalina, pode assumir uma órbita preferencial, gerando assim uma direção preferencial para seu momento magnético. Se esta direção, de alguma forma, for perturbada, um torque age no elétron de forma a traze-lo à sua posição original de mínima energia. Este torque, da mesma forma que o campo magnético externo, produz um movimento de precessão do momento magnético. Assim, as diferentes interações no material ferromagnético podem ser tratadas assumindo-se que os spins, responsáveis pelo ferromagnetismo, precessionam com freqüência  $\omega_0$  não em torno do campo externo H<sub>0</sub> mas sim em torno de um campo efetivo H<sub>ef</sub>, conforme foi mostrado por L. D. Landau e E. M. Lifshitz [38].

Se o material estiver na presença de um campo oscilante fraco  $\mathbf{h}(t)$ , de alta freqüência, tal que este seja muito menor que o campo externo, a magnetização terá então uma componente oscilante podendo ser expressa por  $\mathbf{M} = \mathbf{M}_0 + \mathbf{m}(t)$ , com  $|\mathbf{m}(t)| \ll M_0$ . Isto é representado graficamente na figura 2.2. A ressonância poderá ocorrer quando a freqüência deste campo oscilante for igual à freqüência de precessão de Larmor  $\omega_0$ . Neste caso, o campo oscilante causará transições entre os subníveis Zeeman adjacentes, do sistema ferromagnético, separados pela energia g $\mu_BH_{ef}$  como esquematizado na figura 2.3.



<u>Figura 2.2</u>: Precessão do vetor da magnetização em torno do campo estático  $H_0$  e do campo magnético de alta freqüência h(t).

$$H = 0$$

$$\Delta E = g\mu_B H_{ey}$$

$$\Delta E = g\mu_B H_{ey}$$

<u>Figura 2.3</u>: Esquema representando as transições de níveis em um sistema de spin  $\frac{1}{2}$ . O fóton de energia necessário deve corresponder a g $\mu_BH_{ef}$ .

#### 2.2 A precessão amortecida da magnetização

Devido a interações intrínsecas ao sistema de spins no material ferromagnético, como por exemplo: interações entre os próprios spins (interação dipolar), interações dos spins com os elétrons de condução ou ainda, interação dos spins com a rede cristalina, deve-se incluir na equação 2.1 um termo de relaxação que descreva um amortecimento na precessão da magnetização. Substituindo  $\mu$  pela magnetização total *M*, obtém-se:

$$dM/dt = -\gamma (M \times H_{ef}) + R$$
(2.3)

Há na literatura várias propostas para este termo de relaxação. A primeira delas foi feita por Landau e Lifshitz [38] que propuseram a seguinte equação para o movimento de precessão amortecido:

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = -\gamma \left(\vec{M} \times \vec{H}_{ef}\right) - \frac{\lambda}{M^2} \left[\vec{M} \times \left(\vec{M} \times \vec{H}_{ef}\right)\right]$$
(2.4)

onde  $\lambda$  é um termo de relaxação caracterizado pela interação dipolar entre os momentos magnéticos no material e representa um torque agindo na magnetização de modo a forçar seu retorno à posição de equilíbrio. Normalmente esta equação é escrita utilizando-se um parâmetro de amortecimento adimensional definido como  $\alpha = \lambda/\gamma M$ . Assim tem-se a equação de Landau e Lifshitz na seguinte forma:

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = -\gamma \left(\vec{M} \times \vec{H}_{ef}\right) - \alpha \frac{\gamma}{M} \left[\vec{M} \times \left(\vec{M} \times \vec{H}_{ef}\right)\right]$$
(2.5)

Na figura 2.4 está representado o vetor da magnetização **M** desenvolvendo uma precessão amortecida em torno do campo efetivo na ausência do campo de alta freqüência.



<u>Figura 2.4</u>: Precessão amortecida do vetor magnetização em torno do campo efetivo H<sub>ef</sub> na ausência do campo de alta freqüência.

Uma vez que a equação de Landau e Lifshitz conduz a soluções irreais para valores grandes do parâmetro de amortecimento  $\alpha$ , Gilbert [50] sugeriu outro termo para este parâmetro proporcional à variação temporal do vetor da magnetização de forma que a equação 2.3 resulta em:

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = -\gamma \left(1 + \alpha^2\right) \left(\vec{M} \times \vec{H}_{ef}\right) - \frac{\alpha}{M} \left[\vec{M} \times \frac{d\vec{M}}{dt}\right]$$
(2.6)

Pode-se mostrar que há um conexão entre a equação de Landau-Lifshitz e a equação de Gilbert [51], e ainda que ambas levam a resultados idênticos quando o parâmetro de amortecimento  $\alpha$  for menor que 0.1, o que pode ser considerado verdadeiro na maior parte dos experimentos de ressonância feromagnética conhecidos. Em experimentos feitos com campos oscilantes fortes, onde a aproximação M<sub>0</sub>  $\cong$  M não é mais válida, ou seja, na presença de efeitos não lineares, a equação de Gilbert se mostra mais útil [52].

Há ainda uma terceira equação conhecida como equação de Bloch-Bloembergen e que foi usada primeiramente por Kittel [42] em sua generalização nos cálculos de Landau e Lifshitz. No caso de campos oscilantes fracos, os três casos são equivalentes e a forma de linha obtida para a absorção ressonante é Lorentziana.

#### 2.3 O tensor da susceptibilidade dinâmica

Seja uma amostra ferromagnética isotrópica e elipsoidal na presença de um campo externo e de um campo oscilante como o especificado na figura 2.2. Se as dimensões da amostra forem pequenas comparadas com a profundidade de penetração do campo de alta freqüência  $\mathbf{h}(t)$ , então a distribuição deste será homogênea, em magnitude e direção, em toda a amostra. Neste caso, a precessão da magnetização também será homogênea e terá uma componente oscilante  $\mathbf{m}(t)$  de mesma freqüência de  $\mathbf{h}(t)$ , de forma que pode-se escrever:

$$\vec{H} = \vec{H}_{ef} + \vec{h}e^{i\omega t}$$

$$\vec{M} = \vec{M}_S + \vec{m}e^{i\omega t}$$
(2.7)

onde no lugar de  $H_0$ , indicado na figura 2.2, tem-se agora o campo efetivo  $H_{ef}$ , no qual estão incluídos as contribuições de campos internos causados pelo comportamento ferromagnético do material. O campo oscilante **h**(t) deve ser polarizado perpendicularmente ao campo externo para que ocorram transições permitidas [49].

Introduzindo as equações 2.7 em 2.5 e desprezando-se os termos de ordem 2 em *m*, *h* e *mh*, após algumas contas chega-se à seguinte relação para as componentes oscilantes da magnetização [53]:

$$\begin{bmatrix} m_x \\ m_y \\ m_z \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \chi_{xx} & \chi_{xy} & 0 \\ \chi_{yx} & \chi_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} h_x \\ h_y \\ h_z \end{bmatrix}$$
(2.8)

sendo que o tensor da susceptibilidade magnética de alta freqüência  $\chi$ , de acordo com a relação acima, é definido como:

$$\underline{\boldsymbol{\chi}} = \frac{\mathbf{m}}{\mathbf{h}} = \begin{bmatrix} \boldsymbol{\chi}_{xx} & \boldsymbol{\chi}_{xy} & \mathbf{0} \\ \boldsymbol{\chi}_{yx} & \boldsymbol{\chi}_{yy} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{0} & \mathbf{0} \end{bmatrix}$$
(2.9)

onde

$$\chi_{xx} = \chi_{yy} = \frac{(\omega_0 + i\omega\alpha)\omega_M}{(\omega_0 + i\omega\alpha)^2 - \omega^2}$$
(2.10a)

$$\chi_{yx} = \chi_{yx} = \frac{\omega \omega_M}{(\omega_0 + i\omega \alpha)^2 - \omega^2}$$
(2.10b)

 $com \ \omega_0 = \gamma H_{ef} \ e \ \omega_M = \gamma M_S.$ 

As componentes do tensor da susceptibilidade *a.e.* são variáveis complexas, podendo ser separadas em partes real e imaginária. Para um campo oscilante linearmente polarizado na direção x pode-se obter para a variável  $\chi_{xx} = \chi'_{xx} - i\chi''_{xx}$ 

$$\chi'_{xx} = \frac{\omega_{M}\omega_{0}(\omega_{0}^{2} - \omega^{2}) + \omega_{M}\omega^{2}\omega_{0}\alpha}{[\omega_{0}^{2} - \omega^{2}(1 + \alpha^{2})]^{2} + 4\omega^{2}\omega_{0}^{2}\alpha^{2}}$$
(2.11a)

$$\chi_{xx}^{\prime\prime} = \frac{\omega_{M} \omega \alpha [\omega_{0}^{2} + \omega^{2} (1 + \alpha^{2})]}{[\omega_{0}^{2} - \omega^{2} (1 + \alpha^{2})]^{2} + 4\omega^{2} \omega_{0}^{2} \alpha^{2}}$$
(2.11b)

que representa a solução da equação de Landau e Lifshitz.

No experimento de FMR, como veremos no capítulo 3, o sinal medido é proporcional à potência de microondas refletida pela cavidade onde se encontra a amostra. A potência refletida, por sua vez, é proporcional à absorção de microondas sofrida pela amostra. Pode-se mostrar que a absorção é proporcional à parte imaginária da

susceptibilidade. A componente real está relacionada à dispersão de microondas, a qual também pode influenciar na potência de microondas refletida pela cavidade. Esta dispersão é muito comum em materiais metálicos, devendo ser considerada, no caso de filmes finos, quando a espessura do filme for maior que a profundidade de penetração de microondas no material. No caso de filmes ultrafinos, a contribuição da parte dispersiva da susceptibilidade pode ser desprezada, pois a espessura é bem menor que a profundidade de penetração.

Geralmente, por conveniência experimental, ao invés de se variar a freqüência de microondas, na FMR, varia-se o campo magnético mantendo-se a frequência fixa. As equações 2.11 também podem ser obtidas em função do campo externo e do campo efetivo, fazendo-se as mudanças  $H=\omega/\gamma$  e  $H_{ef}=\omega_0/\gamma$ . A figura 2.5 mostra o comportamento típico da componente imaginária da susceptibilidade de alta freqüência para dois parâmetros de amortecimento  $\alpha$ , obtido para  $\omega_0/\gamma=3.1$ , considerando-se a equação 2.11b para o caso de uma amostra esférica isotrópica. Os parâmetros área, campo de ressonância e largura de linha, obtidos para  $\alpha=0.05$  foram: 4.446, 3.093 e 0.310 kOe, respectivamente. E para  $\alpha=0.01$ , foram: 4.707, 3.098 e 0.062 kOe. Pode-se ver uma pequena diferença, de apenas 5 Oe, no campo de ressonância devido ao parâmetro de amortecimento. Esta diferença é, em muitos casos, menor que o erro experimental.



<u>Figura 2.5:</u> Comportamento da componente imaginária da susceptibilidade, obtido com a equação 2.11b.

Na maior parte dos experimentos de FMR conhecidos, o parâmetro de relaxação  $\alpha$  é menor que 0.1. Isto implica que a ressonância ocorrerá principalmente sobre a freqüência de Larmor ou, em termos de campo magnético, em  $\omega_0/\gamma$ . Da equação 2.11b pode-se deduzir que o alargamento da linha provocado pelo amortecimento, no caso de uma esfera isotrópica, é dado por:

$$\Delta H = \frac{2\alpha\omega_0}{\gamma} \tag{2.12}$$

Além da contribuição relativa ao amortecimento da precessão da magnetização, advinda dos processos mencionados no início da seção 2.2, e que depende da freqüência do experimento, há ainda outra contribuição, que independe de  $\omega$  e é causada por inomogeneidades magnéticas incorporadas à estrutura do filme durante seu crescimento [9,65] e que é usada, freqüentemente, para medir a qualidade da epitaxia dos filmes.

A conexão entre a potência de microondas absorvida pela amostra, durante o experimento de FMR, e a susceptibilidade a altas freqüências, pode ser derivada utilizando-se o vetor de Poynting. Dado que a amostra se encontra na região em que o campo magnético interagente é máximo, então a potência absorvida, por unidade de volume, é [68]:

$$P = -\omega \operatorname{Im} \left[ \mathbf{h}^* \cdot (\boldsymbol{\chi} + \underline{\mathbf{1}}) \mathbf{h} \right]$$
(2.13)

Utilizando-se a equação 2.9, para uma microonda linearmente polarizada na direção do eixo x, obtém-se:

$$P = -\omega \chi_{xx}^{\prime\prime} h^2 \tag{2.14}$$

onde  $\chi^{//}xx$  é dado por (2.11b).

### 2.4 Fórmula Geral para a freqüência de ressonância

Aqui apresentamos um método para se determinar a frequência de ressonância que foi sugerido por Smit e Wijin [47] em 1954. Como será visto, para sua aplicação é necessário que algumas condições sejam satisfeitas.

Considerando o sistema de configuração mostrado na figura 2.6, onde  $H_M$ ,  $H_{\theta} e H_{\phi}$ são as componentes do campo efetivo em coordenadas esféricas e introduzindo estas componentes na equação de Landau e Lifshitz (equação 2.5) obtêm-se as equações de movimento [54]:

$$\frac{d\theta}{dt} = \gamma \left( H_{\varphi} + \alpha H_{\theta} \right)$$

$$\frac{d\varphi}{dt} \operatorname{sen}\theta = -\gamma \left( H_{\theta} - \alpha H_{\varphi} \right)$$
(2.15)



Figura 2.6: Sistema de configuração especificando a magnetização e as componentes do campo efetivo.

Em uma situação de equilíbrio termodinâmico, a direção do vetor da magnetização **M** coincide com a componente radial do campo efetivo H<sub>M</sub>. Nesta situação, as componentes angulares do campo efetivo são nulas e a posição de equilíbrio do vetor **M**, definida pelos ângulo  $\theta_0 e \phi_0$ , é fornecida pelo mínimo da energia livre *E* do sistema:

$$\frac{\partial E}{\partial \theta} = \frac{\partial E}{\partial \phi} = 0 \tag{2.16}$$

Considerando que a magnetização sofra pequenos desvios em torno da posição de equilíbrio, as componentes angulares do campo efetivo serão dadas por [51]:

$$H_{\theta} = -\frac{1}{M} \frac{\partial E}{\partial \theta} \qquad e \qquad H_{\phi} = -\frac{1}{Msin\theta} \frac{\partial E}{\partial \theta} \qquad (2.17)$$

Sejam então os desvios da posição de equilíbrio dados por:

$$\delta \theta(t) = \theta(t) - \theta_0 \qquad e \qquad \delta \varphi(t) = \varphi(t) - \varphi_0 \qquad (2.18)$$

tal que  $\delta\theta \ll \theta_0$  e  $\delta\phi \ll \phi_0$ . Fazendo-se a expansão das derivadas da energia livre  $\partial E/\partial \theta$  e  $\partial E/\partial \phi$ , limitando-se aos termos lineares, obtém-se para as equações 2.17 a aproximação linear

$$-\frac{M}{\gamma}\operatorname{sen}\theta_{0}\delta\dot{\theta} = \left[\frac{\partial^{2}E}{\partial\phi\partial\theta} + \alpha \cdot \operatorname{sen}\theta_{0}\frac{\partial^{2}E}{\partial\theta^{2}}\right]\delta\theta + \left[\frac{\partial^{2}E}{\partial\theta^{2}} + \alpha \cdot \operatorname{sen}\theta_{0}\frac{\partial^{2}E}{\partial\theta\partial\phi}\right]\delta\phi$$

$$(2.19)$$

$$\frac{M}{\gamma}\sin\theta_{0}\delta\dot{\phi} = \left[\frac{\partial^{2}E}{\partial\theta^{2}} - \frac{\alpha}{\operatorname{sen}\theta_{0}}\frac{\partial^{2}E}{\partial\phi\partial\theta}\right]\delta\theta + \left[\frac{\partial^{2}E}{\partial\theta\partial\phi} - \frac{\alpha}{\operatorname{sen}\theta_{0}}\frac{\partial^{2}E}{\partial\phi^{2}}\right]\delta\phi$$

Este sistema homogêneo de equações terá soluções periódicas do tipo  $\delta\theta$ ,  $\delta\phi \sim \exp(i\omega t)$  se a equação secular  $\omega^2 - i\omega \Delta \omega - (\omega_{res})^2 = 0$  for satisfeita, onde:

$$\omega_{res} = \frac{\gamma \sqrt{1 + \alpha^2}}{sin\theta_0} \left[ \left( \frac{\partial^2 E}{\partial \theta^2} \right) \left( \frac{\partial^2 E}{\partial \phi^2} \right) - \left( \frac{\partial^2 E}{\partial \theta \partial \phi} \right)^2 \right]^{1/2}$$
(2.20)

$$\Delta \omega = \frac{\gamma \alpha}{M} \left[ \left( \frac{\partial^2 E}{\partial \theta^2} \right) + \left( \frac{\partial^2 E}{\partial \phi^2} \right) \frac{1}{\operatorname{sen}^2 \theta_0} \right]$$
(2.21)

Assim, de acordo com a equação acima, para sabermos a freqüência de ressonância é necessário termos uma expressão concreta para a energia livre do sistema com seus termos e suas dependências com relação à orientação da magnetização. A propriedade que expressa a dependência da energia interna com relação à direção da magnetização do material é definida como a anisotropia magnética. Na próxima seção abordaremos as principais contribuições para a energia livre e a origem da anisotropia magnética.

Neste procedimento adotado para se calcular a freqüência de ressonância, foi suposto que a magnetização se encontrava em um regime saturado e que a potência de microondas fosse pequena o suficiente para que a condição de pequenas oscilações fosse satisfeita.

#### 2.5 Energia Livre e Anisotropia Magnética

e

A energia livre total do sistema pode ser obtida considerando-se a interação da magnetização do material com o campo externo, conhecida como energia Zeeman, a qual depende da direção da magnetização em relação ao campo, e a energia de anisotropia, associada à anisotropia magnética, que depende da orientação da magnetização em relação a um sistema de coordenadas convenientemente escolhido para o material.

A anisotropia magnética tem sua origem em duas principais fontes: a interação dipolar e a interação spin-órbita. A primeira dá origem ao campo desmagnetizante proveniente da indução de pólos magnéticos na superfície do material ferromagnético. Este campo se opõe ao campo aplicado, sendo dependente apenas da intensidade da magnetização do material e de sua geometria, podendo portanto ser escrito como  $\vec{H}_D = N_D \vec{M}$ , onde  $N_D$  é o fator desmagnetizante, dependente da geometria da amostra. A energia proveniente deste campo, ou ainda, da interação dipolar, pode ser obtida considerando-se a energia por unidade de volume de um dipolo de magnetização **M** na presença do campo desmagnetizante, dada por

$$E_{D} = -\int \vec{H}_{D} \cdot d\vec{M} = -\int N_{D} \vec{M} \cdot d\vec{M} = -\frac{1}{2} N_{D} M^{2}$$
(2.22)

A energia proveniente desta anisotropia é de particular importância em filmes finos, sendo a energia que mais contribui para que a magnetização permaneça no plano do filme, como será visto mais à frente. No caso de um filme fino, pode-se mostrar que a energia magnetostática é  $E_D = -2\pi M_s^2$ . Considerando-se a magnetização do Co hcp em sua forma volumar, 1420 emu/cm<sup>3</sup>, tem-se para esta energia -1.27 x 10<sup>7</sup> erg/cm<sup>3</sup>.

A interação spin-órbita dos elétrons com os átomos vizinhos na rede cristalina pode produzir órbitas preferenciais para os elétrons e, portanto, direção preferencial para seus momentos magnéticos dando origem à anisotropia magnetocristalina. A interação dipolar também pode contribuir com esta energia, se bem que para estruturas cúbicas pode se mostrar que sua soma se cancela. Isto não ocorre para estruturas hexagonais, embora, para o Co hcp, a contribuição dipolar para a energia magnetocristalina seja desprezível [55]. A energia de anisotropia magnetocristalina por unidade de volume para um cristal de simetria uniaxial, como é o caso de Co hcp, é escrita como [56]:

$$E_{mc} = K_1 \operatorname{sen}^2 \theta + K_2 \operatorname{sen}^4 \theta \tag{2.23}$$

onde  $\theta$  é o ângulo entre a magnetização e o eixo de simetria do cristal. Para o cobalto hcp volumar, K<sub>1</sub> e K<sub>2</sub> valem 4.1 x 10<sup>6</sup> e 1.0 x 10<sup>6</sup> erg/cm<sup>3</sup>, respectivamente [56]. Para multicamadas com o eixo c normal ao plano do filme, a anisotropia magnetocristalina contribui para que o eixo fácil seja orientado perpendicular à superfície. No entanto, esta
energia é muito pequena, em comparação com a energia desmagnetizante, para fazer com que a magnetização fique fora do plano sem a ajuda de anisotropias adicionais.

Da mesma forma que a interação spin-órbita do elétron com a rede cristalina, resulta em direções cristalográficas preferenciais para a magnetização, uma deformação na rede, causada por estresses, ou mesmo por tensões elásticas, pode contribuir com o redirecionamento da magnetização. Estas últimas contribuições para a energia são conhecidas como energia magnetostrictiva (no caso de estresse) e energia magnetoelástica. São muito comuns em filmes finos, sendo as vezes inerente ao próprio processo de fabricação, ou ainda, resultantes de processos térmicos devido a diferenças entre os coeficientes de expansão térmica dos elementos que compõem o filme. A causa mais comum, porém, é o descasamento de parâmetros de rede entre os elementos que compõem a multicamada, ou ainda, entre o filme e o substrato. Neste caso, o parâmetro de rede do filme, procurando se acomodar àquele do substrato, pode ser significativamente deformado induzindo assim uma anisotropia via interação spin-órbita. A energia por unidade de volume desta anisotropia, para um filme fino isotrópico e policristalino é dada por [57]:

$$E_s = -\frac{3}{2}\lambda_s \sigma \, \mathrm{sen}^2 \, \theta \tag{2.24}$$

onde  $\sigma$  é a tensão isotrópica no plano do filme,  $\lambda_s$  é a constante isotrópica de magnetostricção de saturação (para o Co hcp,  $\lambda_{Co} = -50 \ge 10^{-6}$ ) e  $\theta$  é o ângulo entre o vetor magnetização e a direção da tensão uniforme. Quando os parâmetros  $\lambda$  e  $\sigma$  são constantes e não dependem da espessura, a contribuição desta energia pode ser identificada como uma contribuição de volume K<sub>V</sub> na energia de anisotropia. Embora a energia magnetostrictiva também esteja incluída na equação 2.24, esta é chamada normalmente de energia magnetoelástica.

Ainda, no caso de haver inomogeneidade espacial na distribuição da magnetização, deve-se considerar a energia proveniente da interação de troca entre os momentos magnéticos. Isto será relatado na seção 2.7.

Quando o campo externo não for forte o suficiente para magnetizar a amostra até um estado próximo à saturação de forma que esta possa, portanto, ser aproximada por um monodomínio, deve-se considerar ainda, na energia livre, a energia proveniente das fronteiras entre os domínios. Neste caso, o estudo da ressonância ferromagnética torna-se muito mais complicado e tratamentos especiais para cada caso tornam-se necessários [51]. Em todos os casos estudados no presente trabalho a ressonância ocorreu em campos onde a amostra estava saturada e portanto não consideramos esta contribuição.

## 2.6 Condição de ressonância para um filme fino

### 2.6.1 Filme policristalino com anisotropia perpendicular ao plano

Considerando-se um filme fino e policristalino, no sistema de coordenadas especificado na figura 2.6, no qual o filme está no plano *xy*, a posição do vetor magnetização é dada pelos ângulos  $\theta$  e  $\varphi$ , e a posição do campo externo H<sub>0</sub> é definida pelo ângulo  $\alpha$ . A interação da magnetização com o campo estático (energia Zeeman)  $E_Z$  será:

$$E_{Z} = -\vec{H} \circ \vec{M}$$

$$E_{Z} = -H_{0}M_{S}(\cos\alpha \cdot \sin\theta \cdot \cos\phi + \sin\alpha \cdot \cos\theta)$$
(2.25)



Figura 2.6: Sistema de coordenadas em um filme fino especificando a magnetização e o campo externo.

A energia desmagnetizante pode ser encontrada pela relação  $E_D = (N_X M_{SX}^2 + N_Y M_{SY}^2 + N_Z M_{SZ}^2) 1/2$ . Onde  $N_X$ ,  $N_Y$  e  $N_Z$  são os fatores desmagnetizantes em relação aos eixos de um elipsóide e estão conectados pela relação  $N_X + N_Y + N_Z = 4\pi$ [51]. Encontrando-se as componentes da magnetização e os fatores desmgnetizantes no sistema especificado, temos:

$$E_D = -2\pi \cdot M_S^2 \cdot \cos^2 \theta \tag{2.26}$$

Vale ressaltar aqui que o fator  $2\pi$  pressupõe que foi usado a aproximação contínua. Se o meio magnético não for considerado como um meio contínuo, mas formado por um conjunto discreto de dipolos magnéticos, pode-se mostrar que a espessura pode alterar este fator. Draaisma e de Jonge [58] mostraram que para filmes ultrafinos com espessuras de uma ou duas camadas atômicas, este fator pode variar em até 20%. Esta variação vai depender da estrutura cristalina e da epitaxia do filme. No presente trabalho, em todos os cálculos relativos à energia desmagnetizante, utilizamos o fator  $2\pi$ , o que é muito razoável para as espessuras de filmes que estudamos.

Em filmes finos com simetria rotacional em torno do eixo perpendicular ao plano do filme, a energia de anisotropia devido às contribuições magnetocristalina e magnetoelástica pode ser escrita como:

$$E_K = K_{\mu} sen^2 \theta \tag{2.27}$$

sendo que em  $K_u$  estão embutidas as constantes relativas às anisotropias magnetocristalina de primeira ordem e magnetoelástica. Definindo-se a energia a menos de uma constante, das equações 2.27 e 2.26 pode-se escrever:

$$E_a = \left(K_u - 2\pi M_s^2\right) \operatorname{sen}^2 \theta \tag{2.28}$$

O termo constante é definido como a anisotropia efetiva  $K_{ef} = K_u - 2\pi M_s^2$ . Desta relação pode-se ver que há uma competição entre as energias que favorecem um eixo fácil de magnetização perpendicular ao plano do filme K<sub>u</sub>, e a energia magnetostática que favorece um eixo no plano. Quando K<sub>ef</sub> for positivo o eixo fácil é perpendicular ao plano.

Somando-se todas as contribuições para a energia livre resulta em:

$$E = -H_0 M_s (\cos\alpha \cdot \sin\theta \cdot \cos\varphi + \sin\alpha \cdot \cos\theta) + (K_u - 2\pi M_s^2) \sin^2\theta \qquad (2.29)$$

Derivando a equação 2.29 em relação aos ângulos  $\theta$  e  $\varphi$  e igualando a zero, encontrase a posição de equilíbrio ( $\theta_0$ ,  $\varphi_0$ ) da magnetização:

$$\frac{\partial E}{\partial \varphi} = 0 \quad \rightarrow \quad \varphi_0 = 0 \tag{2.30}$$

$$\frac{\partial E}{\partial \theta} = 0 \rightarrow 2H_0 \cos(\alpha + \theta_0) = \left(\frac{2K_u}{M_s} - 4\pi M_s\right) \cdot \sin 2\theta_0 \qquad (2.31)$$

30

Era de se esperar o resultado encontrado para  $\varphi_0$ , pois consideramos que não há anisotropias no plano do filme e portanto a magnetização deve permanecer no mesmo plano de H<sub>0</sub>, o plano xz (veja figura 2.6). Na equação 2.31, o termo  $2K_u/M_s - 4\pi M_s$  pode ser definido como o campo de anisotropia efetiva H<sub>Kef</sub>. Desta forma, a posição de equilíbrio dependerá da intensidade do campo externo, de sua posição definida pelo ângulo  $\alpha$ , e do campo de anisotropia efetiva, onde estão incluídas as anisotropias de forma (desmagnetizante), magnetocristalina, magnetoelástica, de superfície e ainda a magnetização de saturação.

Efetuando-se as derivadas de segunda ordem e substituindo na equação 2.20, chegase, finalmente, à condição de ressonância para o caso considerado:

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^{2} = \left[H_{0}\operatorname{sen}\left(\alpha + \theta_{0}\right) + H_{Kef}\cos^{2}\theta_{0}\right] \times \left[H_{0}\operatorname{sen}\left(\alpha + \theta_{0}\right) + H_{Kef}\cos2\theta_{0}\right]$$
(2.32)

Onde não consideramos o parâmetro de amortecimento da equação 2.20, devido sua influência desprezível na freqüência de ressonância como mostrado na seção 2.3.

É bom ressaltar que a equação 2.32 foi deduzida considerando-se apenas o termo de primeira ordem para a anisotropia magnética. O mesmo procedimento pode ser feito considerando-se o termo de segunda ordem e chega-se às equações:

$$2H_0\cos(\alpha+\theta_0) = \left(\frac{2K_1}{M_S} + \frac{4K_2}{M_S} - 4\pi M_S\right)\cos\theta\,\sin\theta_0 - \frac{4K_2}{M_S}\cos^3\theta\,\sin\theta \tag{2.33}$$

para a condição de equilíbrio, e:

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^{2} = \left[H_{0}\operatorname{sen}(\alpha + \theta_{0}) + \left(H_{A} - 4\pi M_{S}\right)\cos 2\theta_{0} + H_{A2}\left(3\cos^{2}\theta_{0}\operatorname{sen}^{2}\theta_{0} - \cos^{4}\theta\right)\right] \times \left[H_{0}\operatorname{sen}(\alpha + \theta_{0}) + \left(H_{A} - 4\pi M_{S}\right)\cos^{2}\theta_{0} - H_{A2}\cos^{4}\theta\right]$$
(2.34)

para a condição de ressonância. Para estas equações, definimos os termos  $H_{A1} = 2K_1/M_s$ ,  $H_{A2} = 4K_2/M_s$  e  $H_A = H_{A1} + H_{A2}$ . O campo de anisotropia efetiva pode ser definido como  $H_{Kef} = H_A - 4\pi M_s$ . Nas constantes  $K_1$  e  $K_2$  estão incluídas as anisotropias magnetocristalina, magnetoelástica e de superfície.

Para o caso de um filme fino, colocando-se o mesmo em um determinado ângulo  $\alpha$  em relação ao campo externo, conforme a configuração da figura 2.6, pode-se obter experimentalmente o campo externo para a ressonância  $H_0$ . Isto pode ser feito para vários ângulos e desta forma obter-se o comportamento do campo de ressonância em função do ângulo  $\alpha$ . E, a partir de cálculos, ou ajustes, com as equações acima, pode-se determinar o campo de anisotropia efetiva e o fator *g*. Conhecendo-se a magnetização do material (o que pode ser feito com o auxílio de outra técnica, como por exemplo VSM, ou ainda, recorrendo-se à literatura), pode-se determinar sua anisotropia magnética efetiva.

De uma maneira mais simples, porém menos precisa, estes resultados também podem ser obtidos considerando-se apenas o campo de ressonância nas posições paralela ( $\alpha$ =0<sup>0</sup>) e perpendicular ( $\alpha$ =90<sup>0</sup>) ao plano do filme. Para o primeiro e segundo caso, respectivamente, obtém-se (diretamente da equação 2.32):

$$\omega/\gamma = \sqrt{H_0 \left(H_0 - H_{Kef}\right)} \tag{2.35a}$$

e

$$\omega/\gamma = H_0 + H_{Kef} \tag{2.35b}$$

A partir das equações 2.35, pode-se facilmente deduzir a equação abaixo para determinar-se o campo de anisotropia efetiva,

$$H_{Kef} = \frac{2K_{ef}}{M_s} = -(H_{\perp} + H_{//}) + [H_{//}(H_{\perp} + 5/4H_{//})]^{1/2}$$
(2.36)

bastando-se para isto, conhecer apenas o campo de ressonância na configuração paralela  $H_{//}$  e na configuração perpendicular  $H_{\perp}$ , não havendo necessidade do parâmetro  $\gamma$ .

Um caso particular pode ser obtido considerando-se apenas anisotropia de forma e desprezando-se as demais. Assim tem-se que  $H_{Kef} = -4\pi M_s$ , e chega-se às conhecidas equações de Kittel [59]:

$$\omega/\gamma = \sqrt{H_0 (H_0 + 4\pi M_s)}$$
(2.37a)

e

$$\omega/\gamma = H_0 - 4\pi M_s \tag{2.37b}$$

para  $H_0$  paralelo e perpendicular, respectivamente. Se, ao invés da equação 2.32, usarmos o mesmo propósito de simplificação na equação 2.34, chega-se aos seguintes resultados para os casos paralelo e perpendicular, respectivamente:

$$\frac{\omega}{\gamma} = \sqrt{H_0 \left( H_0 - H_{A1} - H_{A2} + 4\pi M_S \right)}$$
(2.38a)

e

$$\frac{\omega}{\gamma} = H_0 + H_{A1} - 4\pi M_s \tag{2.38b}$$

Das equações acima pode-se perceber imediatamente que a FMR, na configuração perpendicular, não é sensível ao termo de segunda ordem da anisotropia. Isto pode ser uma vantagem, pois pode-se determinar  $H_{A1}$  da configuração perpendicular e utilizá-lo, em seguida, na determinação de  $H_{A2}$  a partir do resultado obtido na configuração paralela.

### Aplicação: Caracterização magnética de um filme fino de Co por ressonância ferromagnética

A título de ilustração, aplicaremos os resultados apresentados anteriormente na caracterização de um filme fino de Co de 200 Å de espessura depositado sobre Si (111),

preparado por evaporação com feixe eletrônico (*e-beam evaporation*). O interesse tecnológico neste tipo de filme reside no fato de apresentarem alta coercitividade [69].

Na figura 2.7 mostramos os espectros de FMR em função do ângulo  $\alpha$ , entre o plano do filme e o campo externo. A amplitude do sinal está normalizada pelo ganho eletrônico do equipamento. O comportamento dos espectros, em relação ao ângulo  $\alpha$ , é típico de um filme com eixo fácil no plano. O campo externo no plano, necessário para que ocorra absorção de microondas e, como conseqüência, a transição entre níveis, é bem menor que na configuração perpendicular ( $\alpha$ =90<sup>0</sup>), como pode ser visto na figura. Isto, evidentemente, deve-se à enorme contribuição negativa da energia desmagnetizante na configuração perpendicular.



<u>Figura 2.7</u>: Espectros de FMR para um filme policristalino de Co (200 Å) sobre Si (111) obtido para vários ângulos do campo externo  $H_0$  em relação ao plano do filme. A amplitude do sinal está normalizada pelo ganho eletrônico do equipamento.

Devido à limitação de campo magnético máximo atingido pelo nosso equipamento de 19.5 kOe, não foi possível obter o espectro para um ângulo do campo externo em relação ao plano do filme exatamente a 90º. O ângulo máximo obtido foi de 89.1º, como indicado na figura 2.7, e para esta posição o campo de ressonância é 19.4 kOe, o que indica que, excluindo a energia desmagnetizante, o filme possui ainda uma pequena anisotropia.

Considerando-se a magnetização de saturação do Co hcp em sua forma volumar  $M_s$ = 1400 emu/cm<sup>3</sup> e que o filme tenha apenas a anisotropia devido à energia magnetostática, obtém-se da equação 2.35b, considerando-se  $\omega/\gamma$  = 3.3 kOe, que o campo externo para a ressonância deveria ocorrer em 20.9 kOe. O valor de  $\omega/\gamma$  foi obtido considerando-se a freqüência de microondas do experimento de 9.54 GHz e o valor de g de 2.18 do Co hcp volumar. Portanto, pode-se concluir que o filme possui uma pequena anisotropia. Com o auxílio das equações 2.31 e 2.32, pode-se fazer um cálculo mais preciso e obter a curva representada pela linha cheia na figura 2.8. Os pontos correspondem aos resultados experimentais obtidos dos espectros mostrados na figura 2.7, e a linha cheia foi obtida do cálculo com as equações 2.31 e 2.32 com  $H_{kef}$  = -16.5 kOe.

O procedimento usado no cálculo com as equações 2.31 e 2.32, ou ainda 2.33 e 2.34, no caso de considerarmos o termo de segunda ordem na anisotropia, será explicado no capítulo 3.



<u>Figura 2.8</u>: Comportamento do campo de ressonância em função do ângulo do campo externo em relação ao plano do filme. Os pontos correspondem aos resultados experimentais e a linha cheia foi calculada com as equações 2.31 e 2.32 para um campo de anisotropia efetiva de -16.5 kOe.

O valor do campo de anisotropia efetiva obtido resulta em  $K_{ef}$  = -1.15 x 10<sup>7</sup> erg/cm<sup>3</sup>, o qual é muito próximo dos valores encontrados na literatura para filmes de Co policristalinos [66,67]. Considerando a energia desmagnetizante  $-2\pi M_{s^2}$  = -1.23 x 10<sup>7</sup> erg/cm<sup>3</sup>, obtém-se para  $K_{u}$  o valor de 0.8 x 10<sup>6</sup> erg/cm<sup>3</sup>, onde estão incluídas as anisotropias magnetocristalina e magnetoelástica. Este valor está de acordo com valores da literatura para a anisotropia de volume em multicamadas de Co/Pd [44,45]. Obviamente, não temos aqui contribuição mensurável da anisotropia de superfície devido a espessura do filme em questão. O gráfico inserido na figura 2.8 mostra a posição de equilíbrio da magnetização, na ressonância, em função do ângulo do campo externo aplicado, obtido com a equação 2.31.

O comportamento da largura de linha pode ser analisado à luz da aproximação utilizada por Chappert *et al.* [67], que estudaram filmes finos policristalinos de Co depositados em substratos de Au, com estrutura hcp e eixo c orientado na direção de crescimento. Os autores consideraram uma pequena variação espacial deste eixo entre os cristalites além de uma distribuição de campo interno. Desta forma, duas fontes contribuiriam para a largura de linha, além daquelas intrínsecas ao mecanismo de amortecimento (veja seção 2.2). A primeira é expressa por  $\Delta H = \Delta \alpha_{H} \left( \frac{\partial H_{res}}{\partial \alpha_{H}} \right)$ , onde  $\Delta \alpha_{H}$  é o desvio médio do eixo c dos cristalites em

relação à normal ao filme, e a segunda por  $\Delta H = \Delta H_i \left(\frac{\partial H_{res}}{\partial H_i}\right)$  com  $\Delta H_i$  definindo

inomogeneidades de campos internos. Com esta aproximação os autores conseguiram descrever bem o comportamento da largura de linha em função da variação angular. Para os filmes de Co estudados, obtiveram  $\Delta \alpha_{\rm H}$  de 0.16<sup>0</sup>, 2<sup>o</sup> e 10<sup>o</sup> para espessuras de 80, 20 e 11.3 Å respectivamente. Pode-se notar que a qualidade da epitaxia decresce com a diminuição da espessura. Em nosso caso, para o filme de Co apresentado na figura 2.7, consideramos

apenas a primeira contribuição citada acima usando a equação  $\Delta H = \Delta H(0) + \Delta \alpha_H \left(\frac{\partial H_{res}}{\partial \alpha_H}\right)$ ,

onde  $\Delta H(0)$  é obtido fazendo-se  $\alpha=0$  e  $\frac{\partial H_{res}}{\partial \alpha_H}$ , derivando-se numericamente a equação

calculada para o comportamento de H<sub>res</sub> x  $\alpha$  mostrada na figura 2.8. O melhor resultado foi obtido para  $\Delta \alpha$ =0.8<sup>o</sup> e é mostrado na figura 2.9. Aqui, o parâmetro  $\Delta \alpha$  refere-se ao desvio do eixo (111) dos cristalites em relação à normal ao plano da multicamada.



<u>Figura 2.9</u>: Comportamento da largura de linha em função do ângulo  $\alpha$ . Os pontos representam os resultados experimentais obtidos dos espectros mostrados na figura 2.8. A linha cheia foi obtida com a equação  $\Delta H(\alpha) = \Delta H(0) + \Delta \alpha_H(\partial H_{rs}/\partial \alpha_H)$  derivando-se numericamente a linha calculada da figura 2.8 e usando-se  $\Delta H(0) = 0.08$  kG e  $\Delta \alpha_H = 0.8^{\circ}$ .

### 2.6.2 Filme policristalino com anisotropia no plano

Consideremos agora um filme com anisotropia uniaxial  $K_{\mu}$  no plano do filme e o sistema de coordenadas conforme especificado na figura 2.10, onde colocamos o eixo da anisotropia coincidente com o eixo x. A magnetização de saturação M<sub>s</sub> é definida agora pelos ângulos  $\theta$  e  $\phi$  e o campo externo H<sub>0</sub>, pelo ângulo  $\psi$ . A energia livre é então dada por:

$$E = -M_{S}H\left[\operatorname{sen}\theta\,\cos(\psi - \phi) + \cos\theta\right] + 2\pi M_{S}^{2}\,\cos^{2}\theta + K_{u}\left(1 - \operatorname{sen}^{2}\theta\,\cos^{2}\phi\right)$$
(2.39)

Seguindo então a aproximação de Smit eWijin [47], como foi feito na seção 2.6.1, chega-se a condição de equilíbrio para a magnetização dada pela equação:

$$\frac{\operatorname{sen}\psi}{\operatorname{sen}\phi} = \frac{\cos\psi}{\cos\phi} - \frac{H_{Kef}}{H_0}$$
(2.40)

onde supomos que  $M_s$  fique, como  $H_0$ , confinada ao plano *xy*. A condição de ressonância é então dada por:

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = \left[H_0 \cos(\psi - \phi_0) + 4\pi M_S + H_K \cos^2 \phi_0\right] \times \left[H_0 \cos(\psi - \phi_0) + H_K \cos 2\phi_0\right]$$
(2.41)

onde  $H_K$  é o campo de anisotropia causado pela anisotropia uniaxial no plano do filme. Para a dedução das equações acima, não foi considerado o termo de segunda ordem na ansitropia.



<u>Figura 2.10</u>: Sistema de configuração utilizado para um filme com anisotropia no plano. O eixo do campo de anisotropia  $H_K$  é coincidente com o eixo x.

### Aplicação: Caracterização de filme multicamada de Co/Ag por ressonância ferromagnética

Como aplicação usaremos os resultados experimentais obtidos em um filme multicamada de Co/Ag (10/40 Å)<sub>16</sub> depositado por *e-beam evaporation* sobre Si (111). O filme, durante o processo de fabricação, adquiriu uma pequena anisotropia no plano, cuja origem pode ser um descasamento entre os parâmetros de rede. A figura 2.11 mostra o comportamento do campo de ressonância em função do ângulo $\psi$ , entre o campo externo e o eixo de anisotropia. A linha calculada com as equações 2.40 e 2.41 fornece  $K_{ef} = 0.23 \times 10^6 \ erg/cm^3$ . É interessante notar que a FMR é muito sensível mesmo na determinação de pequenas anisotropias.



<u>Figura 2.11</u>: Comportamento do campo de ressonância  $H_{res}$  em função do ângulo  $\psi$ , definido na figura 2.10, para um filme multicamada de Co/Ag (10/40 Å)<sub>16</sub>. Os pontos foram obtidos experimentalmente e a linha cheia foi calculada com as equações 2.40 e 2.41.

### 2.7 Ressonância de ondas de spin em filmes finos

Em uma material ferromagnético, além da precessão uniforme, onde todos os spins estão paralelamente orientados e desenvolvendo uma precessão em fase (figura 2.12a), é possível também, em determinadas condições, excitações do sistema de spins de forma que o movimento de precessão de spins vizinhos sejam descritos por uma diferença de fase constante (figura 2.12b). Estas excitações são chamadas de ondas de spin e em filmes finos ferromagnéticos podem se propagar na forma de ondas estacionárias perpendiculares ao plano do filme. Os momentos dos spins vizinhos oscilam com diferentes inclinações transversais, de modo que os spins não estão mais orientados paralelamente.



<u>Figura 2.12</u>: (a) Excitação do modo de precessão uniforme dos spins ( $\lambda = \infty$ , k=0), em torno de  $\mathbf{H}_0$ , na presença do campo de alta freqüência  $\mathbf{h}(t)$ , (b) excitação de ondas de spins estacionárias ( $3\lambda/2=L$ , k= $3\pi/L$ ).

Há duas formas possíveis de se excitar modos de ondas de spin. A primeira é aquela ocorre quando a distribuição do campo de alta freqüência  $\mathbf{h}(t)$  não é uniforme em todo o material, devido ao efeito de skin depth [58]. Neste caso a espessura do filme deve ser maior que a espessura de penetração de microondas. A outra forma de se excitar ondas de spin sem que  $\mathbf{h}(t)$  seja não uniforme, foi discutida por Kittel [59,60]. Neste caso, forças causadas por uma forte anisotropia de superfície age sobre a magnetização na superfície da amostra causando um efeito de "pinning" nos spins da superfície de forma que a amplitude de oscilação da magnetização neste ponto seja nula.

Nos dois casos, a onda de spin é causada pela interação de troca entre os spins e a energia desta interação é dada pelo modelo de Heisenberg:

$$E_{ex} = -2JS_1 \cdot S_2 \tag{2.42}$$

onde J é a integral de troca, que se origina das regiões onde as funções de onda dos elétrons de átomos vizinhos, na rede cristalina, se sobrepõem. Esta interação causa um momento angular adicional sobre os spins e, portanto, também deve ser considerada na equação de movimento 2.5 A contribuição da interação de troca é dada pelo campo de troca [63]

$$\mathbf{H}_{\rm ex} = -\frac{D}{\gamma \hbar M} \nabla^2 \mathbf{M} \tag{2.43}$$

onde D é a constante de dispersão de onda de spin e está relacionada com a constante de troca A pela relação [63]:

$$D = \frac{2A\gamma\hbar}{M} \tag{2.44}$$

onde a constante A, por sua vez, está relacionada com a integral de troca, para o caso de uma rede cúbica, através da relação  $A = nJS^2/a$ , onde *n* é número de vizinhos mais próximos e *a* é a constante da rede cristalina.

A dedução da equação da condição de ressonância incluindo modos de ondas de spin, a partir da equação de movimento da magnetização (equação 2.5), exige um cálculo demorado, o qual foi feito minuciosamente por Okochi e Nosé [64], chegando-se à equação:

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^{2} = \left[H_{n} \operatorname{sen}(\alpha + \theta_{0}) + H_{Kef} \cos^{2} \theta_{0} + \frac{2A}{M} k_{n}^{2}\right] \times \left[H_{n} \operatorname{sen}(\alpha + \theta_{0}) + H_{Kef} \cos 2\theta_{0} + \frac{2A}{M} k_{n}^{2}\right]$$
(2.45)

onde  $k_n = n\pi / L$  é o número de onda do n-ésimo modo da onda de spin.  $\theta_0$  é determinado a partir da equação 2.31. A comparação da equação 2.45 com a 2.32 indica a presença do termo adicional  $2Ak^2/M$  nos dois colchetes e portanto à uma alteração do campo de ressonância em função do número de onda k.

Na configuração de campo externo perpendicular ao plano da amostra ( $\alpha$ =90<sup>0</sup> e  $\theta$ =0<sup>0</sup>), tem-se:

$$\frac{\omega}{\gamma} = H_n + H_{Kef} + \frac{2A}{M_S} k_n^2 \tag{2.46}$$

onde  $H_{Kef} = 2K_u/M_s - 4\pi M_s$ , como já definido anteriormente. Da equação 2.46 e da definição de  $H_{Kefs}$  pode-se deduzir facilmente a relação

$$\frac{2A}{M_s} = \frac{L^2}{\pi^2 n^2} \left( H_0 - H_n \right)$$
(2.47)

onde  $H_0$  e  $H_n$  são o campo de ressonância uniforme do pico principal e o campo de ressonância do *n*-ésimo modo da onda de spin. Esta equação nos diz que o campo de ressonância do *n*-ésimo modo varia linearmente com  $n^2$ , como foi mostrado por Kittel [59].

Desta forma, conhecendo-se os modos de ondas de spin pode-se determinar as constantes de acoplamento e de dispersão do ferromagneto.

# Capítulo 3:

# Técnicas experimentais e amostras utilizadas

### <u>3.1 Amostras</u>

Todas as amostras multicamadas estudadas no presente trabalho foram preparadas pelo Laboratório Institucional de Filmes Finos do Instituto de Física da Universidade Federal do Rio Grande do Sul. Os procedimentos, condições de preparo e caracterização estrutural estão bem detalhados nas referências [70-72] sendo aqui brevemente descritos. Há ainda, no Apêndice, os resultados da caracterização por raios - X obtidos pelo grupo responsável pela preparação dos filmes.

As amostras estudadas neste trabalho, com seus respectivos códigos, estão relacionadas na tabela 3.1. As multicamadas foram depositadas, a uma taxa de 1 Å/s, simultaneamente em substratos de Si (111) ou vidro, estando estes à temperatura ambiente, com um equipamento de evaporação por feixe de elétrons (*e-beam evaporation*) (UMS - Balzers), estando a câmara a uma pressão de 1 x 10<sup>-8</sup> mTorr. As espessuras dos filmes foram determinadas por difratometria de raios -X.

Os difratogramas de raios-X indicaram claramente uma textura (111) tanto para as amostras depositadas em Si(111) como para as depositadas em vidro. Devido a fina espessura das camadas de Co, e também da pequena diferença na posição das reflexões referentes às orientações (111) do Co fcc e do Co hcp, informações precisas com relação à microestrutura do Co são difíceis de serem obtidas [72]. Sabe-se porém que as duas fases podem coexistir e a predominância de uma sobre a outra pode depender da temperatura do substrato durante a deposição [66]. A determinação da anisotropia nestas amostras, a partir dos resultados obtidos com a FMR, que são discutidos no capítulo 4, mostra que a fase predominante é a hcp.

Um conjunto da amostra CP2 sofreu implantação de Ar<sup>+</sup> estando o substrato à temperatura ambiente. A energia do feixe de íons foi de 230 keV. Esta energia foi escolhida de forma a não favorecer uma interdifusão considerável na interface da multicamada com o substrato [70,72]. As amostras foram implantadas nas seguintes doses:  $1x10^{13}$ ,  $5x10^{13}$ ,  $1x10^{14}$ ,  $5x10^{14}$  e 7.5x10<sup>14</sup> íons/cm<sup>2</sup>.

Código da	espessura	substrato	nº de	
amostra	Co/Pd (Å)		bicamadas	
CP2	12/44	Si (111)	18	
CP3	19/44	Si (111)	18	
CP6	4/15	Si (111)	50	
CP7	10/16	Si (111)	20	
CP8	38/21	Si (111)	6	
CP9	23/19	Si (111)	10	
CP10	13/29	Si (111)	18	
CP3AM	19/44	vidro	18	
CP7AM	10/16	vidro	20	
CP8AM	38/21	vidro	6	
CP9AM	23/19	vidro	10	
CP10AM	13/29	vidro	18	

Tabela 3.1: Relação das amostras medidas e analisadas na tese

#### 3.2 Técnicas experimentais

## 3.2.1 Ressonância ferromagnética (FMR)

O equipamento utilizado para as medidas de ressonância ferromagnética foi um equipamento comercial da Varian (E-12) operando em banda-X. O campo magnético máximo atingido pelo eletroímã é de 12 kOe, sendo que, com a adição peças polares, pode-se chegar a um campo de 19.5 kOe. A cavidade ressonante é retangular operando no modo  $TE_{102}$  na freqüência de 9.54 GHz.

O equipamento utilizado é representado no diagrama de blocos da figura 3.1. A microondas é gerada pela válvula *Klystron* e atenuada, viajando por um sistema de guias de

onda até a cavidade, onde é colocada a amostra, na presença do campo externo. Esta cavidade funciona de maneira equivalente a um circuito *LRC* caracterizado por uma freqüência de ressonância e por um fator de qualidade Q [73], o qual relaciona a energia armazenada na cavidade em um ciclo com a energia dissipada pela cavidade no mesmo ciclo. A energia dissipada, por sua vez, está relacionada à absorção de microondas pela a amostra durante a ressonância. A absorção de energia do campo microondas por parte da amostra faz com que o fator Q da cavidade mude, causando uma variação da potência de microonda refletida pela cavidade, a qual é desviada para o cristal detetor, cujo sinal é amplificado e, através de uma interface, enviado para o microcomputador. A coleta de dados feita pelo sistema consiste simplesmente em medir a variação na tensão de saída do cristal detetor em função do campo aplicado *H*. Na verdade, a absorção de microondas é modulada devido a um campo modulado, de baixa amplitude, presente na cavidade. Desta forma, o sinal proveniente do cristal detetor é um sinal alternado, e a forma da linha detectada, devido à modulação, é proporcional à derivada da curva de absorção em relação ao campo externo.

A variação angular do filme em relação ao campo externo foi feita por um sistema *home-made*, acoplado ao suporte da amostra, com precisão de 0.45<sup>o</sup> e ligado ao microcomputador pela interface.



Figura 3.1: Esquema do experimento de ressonância ferromagnética (FMR).

#### 3.2.2 Magnetometria de amostra vibrante (VSM)

Este método é baseado na lei de Faraday da indução eletromagnética. A amostra colocada entre um conjunto de bobinas é movida, na presença do campo externo, por um sistema de vibração. De acordo com a lei de Faraday a variação do fluxo magnético induz uma corrente nas bobinas, cujo valor é proporcional à magnetização da amostra. O sinal da corrente gerada é então amplificado e, através de uma interface, enviado para um microcomputador, o qual registra o sinal da corrente em função do campo externo. O sinal da corrente elétrica pode ser convertido para unidade adequada através de uma amostra padrão de magnetização e massa conhecidas.

O método de VSM pode ser usado para determinar-se a curva de magnetização em função do campo externo e a magnetização de saturação M<sub>S</sub>. Através da curva de magnetização pode-se determinar a remanência e a coercitividade do material. A técnica é muito usada em filmes finos na determinação do campo de anisotropia efetivo  $H_{Kef}$ .

Um equipamento de VSM *home-made*, do Laboratório de Metais e Ligas do Instituto de Física da UNICAMP, foi utilizado para as medidas do campo de anisotropia efetivo em algumas das amostras.



<u>Figura 3.2</u>: Esquema do experimento de magnetometria de amostra vibrante (VSM) utilizado para as medidas de magnetização.

# Capítulo 4:

# Resultados experimentais e discussão

Nesta seção estudamos amostras multicamadas de Co/Pd que sofreram implantação iônica de Ar<sup>+</sup> a diferentes concentrações com o propósito de modificar as interfaces com relação à rugosidade e interdifusão entre os átomos de Co e Pd e, desta forma, afetar a anisotropia de interface. Como mostraremos, conseguimos acompanhar passo-a-passo as mudanças nas propriedades magnéticas causadas pela implantação iônica gradativa. A amostra escolhida para tal estudo foi a CP2 (12/44 Å)<sub>18</sub> depositada em Si(111), devido à sua fina camada de Co, de forma que a contribuição de sua anisotropia de superfície, na anisotropia magnética total, seja significativa.

Nas figuras 4.1 e 4.2 são mostrados os espectros da amostra não implantada. O sistema de referência utilizado é o mesmo da figura 2.6. Para  $\alpha$  igual a 90°, campo perpendicular ao plano do filme, observa-se claramente a presença de dois modos de ressonância. Definiremos a linha da ressonância em campo mais alto, nesta configuração, como linha 1, e a outra, em campo mais baixo, como linha 2. Uma terceira linha, de menor intensidade, a qual desaparece para ângulos  $\alpha$  menores que 90°, pode ser notada sobreposta à linha 1. À medida que  $\alpha$  decresce, observamos que as duas linhas principais deslocam-se para campos menores e, dependendo da largura de ambas as linhas e da distância de separação entre os picos, as duas ressonâncias podem não ser claramente resolvidas. Porém, de acordo com o procedimento adotado para efetuar-se os ajustes e obter-se os parâmetros campo de ressonância  $H_{res}$ , largura de linha  $\Delta H$  e amplitude A, conclui-se que as ressonâncias relativas às linhas 1 e 2 coexistem em qualquer ângulo. Conforme o procedimento utilizado, ajusta-se, primeiramente, o espectro obtido para  $\alpha = 90^{\circ}$ , para o qual as duas linhas estão bem definidas. Os parâmetros obtidos deste ajuste são então utilizados como referência no ajuste do próximo ângulo. Assim, quando as duas linhas estiverem próximas de se sobreporem, como é o caso para o ângulo de 78º, tem-se já um comportamento dos parâmetros para orientação no ajuste do próximo ângulo. Apesar da presença das duas linhas não ser visível abaixo de 78º, o comportamento obtido para a largura de linha, mostrado na figura 4.3, até o ângulo de 76º, nos leva a concluir que a segunda linha não poderia desaparecer bruscamente. A ressonância relativa à linha 1 é normalmente atribuída às camadas de Co, enquanto que a linha 2 também tem sido observada na literatura em multicamadas de Co/Pd [74], de Co/Au [75] e Co/Pt [76] e sua origem ainda não é clara. Por ora, nos limitaremos a dizer que esta ressonância não é resultado de interação entre as camadas de Co, o que será justificado mais à frente, e há indícios de que se trata de outro modo uniforme, como o modo de campo mais alto. Aqui analisaremos o efeito da implantação de Ar<sup>+</sup> nas anisotropias relativas às duas ressonâncias e, na seção 4.4, discutiremos a origem da ressonância de baixo campo.



<u>Figura 4.1</u>: Espectros de FMR para a amostra CP2  $(12/44 \text{ Å})_{18}$  para diferentes ângulos do campo externo em relação ao plano do filme, partindo de  $\alpha$ =90<sup>0</sup> (campo perpendicular) na figura (a) e indo até 72<sup>0</sup> na figura (b).



<u>Figura 4.2</u>: O mesmo da figura 4.1. O ângulo inicial na figura (a) é 71<sup>0</sup>. A figura (b) mostra a linha para  $\alpha$  igual a 76<sup>0</sup> e o ajuste com a equação de *Landau-Lifshitz* supondo duas ressonâncias.

Todos os espectros mostrados nas figuras 4.1 e 4.2 foram ajustados com a componente imaginária da susceptibilidade dinâmica obtida com a equação de Landau-Lifshitz (2.11b), considerando-se o caso de um filme fino. Na figura 4.2b é mostrado o resultado deste ajuste para o espectro obtido com o campo externo a um ângulo de 76º em relação ao plano do filme. Destacamos este ajuste apenas pelo fato de o espectro não mostrar claramente os dois modos de absorção. O comportamento do campo de ressonância em função do ângulo obtido dos ajustes acima citados, para os dois modos de ressonância, está indicado na figura 4.4. A linha cheia foi calculada com as equações 2.33 e 2.34, onde é considerada a adição de um termo de segunda ordem para a anisotropia. O parâmetro g utilizado no cálculo foi mantido constante e igual ao valor do Co em sua forma volumar, 2.18 [77]. O valor de  $M_s$  usado no cálculo, 1420 emu/cm<sup>3</sup>, foi obtido por VSM (veja tabela 4.1). A boa concordância entre os resultados calculados e os experimentais é um bom indicativo da validade do modelo utilizado onde supomos uma anisotropia uniaxial perpendicular ao plano do filme. Não foi observada, por FMR, qualquer anisotropia no plano do filme. O gráfico inserido na figura mostra o comportamento da posição de equilíbrio da magnetização definida pelo ângulo  $\theta$ , em função da orientação do campo externo, na condição de ressonância, obtida com a equação 2.33. De acordo com a definição de  $H_{A1}$  e  $H_{A2}$  (veja equação 2.34) e para o valor de  $M_s$  utilizado, temos  $K_1 = 0.846 \ge 10^7$  e  $K_2 = 3.3 \ge 10^5$  erg/cm<sup>3</sup> , para a linha 1, e  $K_1 = 1.060 \ge 10^7$  e  $K_2 = 0.6 \ge 10^5$  para a linha 2; e as razões  $K_2/K_1$  são 0.5% e 4%, respectivamente. Para os próximos cálculos apresentados cujas razões entre as anisotropias de primeira e segunda ordem forem menores que 5%, desprezaremos  $K_2$  e consideraremos  $K_{ef}$  igual a  $K_1$ . Aqui, o termo  $K_2$  foi considerado apenas para que se tivesse uma idéia de sua influência na anisotropia efetiva.



<u>Figura 4.3</u>: (a)-comportamento da largura de linha  $\Delta H$  em função do ângulo  $\alpha$  para as duas linhas observadas, (b) o mesmo para o parâmetro  $Ax\Delta H^2$  o qual é proporcional à intensidade da absorção ressonante. A linha cheia nos dois casos é apenas um guia para os olhos.



<u>Figura 4.4</u>: Comportamento do campo de ressonância para os dois modos de ressonância observados na amostra CP2  $(12/44 \text{ Å})_{18}$  não implantada. A linha cheia foi calculada com as equações 2.33 e 2.34. Os parâmetros obtidos estão indicados na figura. O gráfico inserido indica o comportamento da posição de equilíbrio da magnetização.

Nas figuras 4.5 e 4.6 são mostrados alguns dos espectros para as amostras que sofreram implantação nas doses de  $1 \times 10^{13}$  e  $5 \times 10^{14}$  íons/cm<sup>2</sup>, respectivamente. São indicados os ângulos entre o campo externo e o plano do filme apenas para algumas linhas. A amplitude dos espectros foi normalizada pelo ganho eletrônico do equipamento. Pode-se observar primeiramente que, para  $\alpha = 90^{\circ}$ , o campo de ressonância para as duas linhas ocorre em campos mais altos na medida em que se aumenta a dosagem de implantação, indicando uma diminuição da anisotropia e/ou um aumento da magnetização de saturação. Este comportamento é mais evidente na figura 4.7, onde são mostrados os espectros, na configuração perpendicular, para a amostra *como preparada* e para todas as doses de

implantação. Medidas de magnetização por VSM feitas nestas amostras para duas temperaturas, 73 K e 300 K, indicaram que  $M_s$  praticamente não varia nesta região de temperatura [71]. Com o aumento da implantação observou-se um considerável acréscimo de  $M_s$ .



<u>Figura 4.5:</u> Espectros de FMR com variação angular para a amostra CP2  $(12/44 \text{ Å})_{18}$  que sofreu implantação de Ar<sup>+</sup> na dose 1 x 10<sup>13</sup> íons/cm<sup>2</sup>.



Figura 4.6: O mesmo da figura 4.5 para amostra implantada na dose de 5x10<sup>14</sup> íons/cm<sup>2</sup>.

Com a implantação iônica, as interfaces são sistematicamente desordenadas [6] e, como conseqüência, uma quantidade maior de átomos de Pd é exposta e polarizada pelo átomo de Co deslocado causando assim um aumento de  $M_5$ . Isto é devido ao conhecido efeito de polarização de *spin* dos átomos de Pd, que pode ocorrer mesmo para pequenas perturbações magnéticas externas [78]. Ainda pode ocorrer, com a implantação, um outro efeito que contribui para a diminuição da magnetização. Sabe-se que  $T_C$  é menor que 300 K para ligas de Co-Pd cuja concentração de Co é menor que 10% [79]. Portanto, se houver regiões da amostra onde a mistura favoreça a formação de uma liga nesta composição, com o aumento da implantação pode-se aumentar a contribuição destas regiões, provocando-se assim uma diminuição do momento magnético por átomo de cobalto. O comportamento de  $M_S$  com a implantação, indicado na tabela 4.1, é uma clara evidência de que, neste caso, o primeiro mecanismo prevalece.



<u>Figura 4.7</u>: espectros de FMR da amostra CP2 na configuração perpendicular ( $\alpha$ =90<sup>0</sup>) para todas as doses de implantação e também para a amostra como preparada.

	Como preparada	1x10 <sup>13</sup> íons/cm²	5x10 <sup>13</sup> íons/cm <sup>2</sup>	1x10 <sup>14</sup> íons/cm <sup>2</sup>	5x10 <sup>14</sup> íons/cm²	7.5x10 <sup>14</sup> íons/cm²
M <sub>S</sub> a 73 K (emu/cm³)		1530	1640	1750	2100	2140
M <sub>S</sub> a 300 K (emu/cm <sup>3</sup> )	1420	1480	1600	1790	2000	2100

<u>Tabela 4.1</u>: Valores de  $M_s$  medidos por VSM para a amostra CP2 (12/44 Å)<sub>18</sub>, *como preparada* e implantada, obtidos da referência 71.

O mesmo tratamento de dados explicitado anteriormente para a amostra *como preparada*, foi utilizado para todas as amostras que sofreram implantação iônica. O resultado é mostrado na figura 4.8, onde as linhas cheias foram calculadas com as equações 2.31 e 2.32 usando-se o fator *g* do Co hcp volumar de 2.18 [77]. Os valores de  $H_{kef}$  usados no cálculo para cada caso estão indicados nos gráficos. O mesmo resultado para a amostra que sofreu a maior dose de implantação está na figura 4.9a. A partir do campo de anisotropia efetiva  $H_{kef}$  =  $2K_{ef}/M_s$  e com os valores medidos da magnetização de saturação para cada uma das doses, obtidos da referência 71 (tabela 4.1), obteve-se a anisotropia magnética para cada caso. O resultado é mostrado na figura 4.9b, de onde pode-se ver claramente que a anisotropia magnética de ambas as linhas diminui com a implantação. Nesta figura os pontos relativos às duas últimas doses foram obtidos sob a suposição de que as linhas 1 e 2 se sobrepuseram. Isto pode ser verificado na figura 4.7. Os resultados obtidos para todas as doses estão na tabela 4.2, onde podem ser vistos de maneira global. Apesar dos valores de  $H_{kef}$  mostrados nas figuras 4.8b e 4.8c serem praticamente os mesmos, o conhecimento da magnetização, em ambos os casos, revela anisotropias diferentes como pode ser verificado na tabela 4.2.

A diminuição da anisotropia pode ser atribuída à diminuição da assimetria entre os átomos de Co e Pd nas interfaces, reduzindo assim a contribuição de Néel para anisotropia magnética. Já foi mostrado a partir dos resultados de difratometria de raios-X nas mesmas amostras que o aumento da implantação faz com que a interdifusão entre os átomos nas interfaces seja maior e, como conseqüência, a interface passe a ser menos definida [72].


<u>Figura 4.8</u>: Os gráficos (a), (b), (c) e (d) mostram o comportamento do campo de ressonância em função do ângulo  $\alpha$ , definido pelo campo externo e o plano do filme, para as doses 1x10<sup>13</sup>, 5x10<sup>13</sup>, 1x10<sup>14</sup> e 5x10<sup>14</sup> respectivamente. A linha cheia é o resultado do cálculo, usando-se as equações 2.31 e 2.32. O valor do parâmetro  $H_{Kef}$  usado no cálculo é indicado em cada gráfico.

Dose	H <sub>kef</sub> (kOe)	H <sub>Kef</sub> (kOe)	$M_S$	$K_{ef}$ (10 <sup>6</sup> erg/cm <sup>3</sup> )	$K_{ef}$ (10 <sup>6</sup> erg/cm <sup>3</sup> )
(íons/cm <sup>2</sup> )	1	2	(emu/cm <sup>3</sup> )	1	2
0	-4.9	-2.7	1420	-3.52	-1.95
1x10 <sup>13</sup>	-6.8	-3.5	1480	-5.03	-2.59
5x10 <sup>13</sup>	-8.3	-5.5	1600	-6.64	-4.40
1x10 <sup>14</sup>	-8.3	-5.7	1790	-7.43	-5.10
5x10 <sup>14</sup>	-8.5		2000	-8.50	
7.5x10 <sup>14</sup>	-9.6		2100	-10.08	

<u>Tabela 4.2</u>: Campo de anisotropia e anisotropia efetiva para as linhas 1 e 2 em função da dose de implantação.



<u>Figura 4.9</u>: (a) os pontos são os resultados experimentais do campo de ressonância obtidos para a amostra implantada na dose de  $7.5 \times 10^{14}$  íons/cm<sup>2</sup> e a linha cheia foi calculada com as equações 2.31 e 2.32 usando-se o parâmetro H<sub>Kef</sub> indicado no gréfico. (b) anisotropia magnética efetiva em função da dose de implantação.

Concluímos esta seção observando que a ressonância ferromagnética, aliada a medidas de magnetização, mostrou-se sensível, acompanhando, passo-a-passo, as mudanças nas

anisotropias magnéticas, induzidas pela implantação iônica gradativa, das duas linhas acusadas nos espectros de FMR. Atribuímos a diminuição da anisotropia ao gradativo decréscimo da assimetria entre os átomos nas interfaces devido a interdifusão, entre os mesmos, causada pela implantação iônica.

### 4.2 Determinação da anisotropia de interface em multicamadas de Co/Pd

Nesta seção usamos todas as amostras relacionadas na tabela 3.1 para determinarmos as contribuições de volume e interface,  $K_V e K_S$ , para a energia de anisotropia efetiva. Apesar das espessuras de Co e Pd variarem juntamente de uma para outra, sabe-se que a anisotropia magnética é praticamente independente da espessura de Pd [16,80]. Embora haja na literatura um caso onde os autores constataram uma dependência da anisotropia efetiva em multicamadas de Co/Pd com a espessura de Pd, a variação ocorreu para espessuras menores que 15 Å [7] e, de acordo com os autores, foi causada por pontes de Co nas camadas de Pd, decorrentes do processo de fabricação do filme e da fina espessura de Pd. No presente caso, todas as amostras usadas para se determinar  $K_V$  e  $K_S$  possuem espessuras de Pd superiores a 15 Å.

Para cada uma das amostras estudadas, foram obtidos os espectros de FMR, com variação angular, e calculado o campo de anisotropia efetivo da mesma forma que fizemos para a CP2 (12/44 Å), como mostrado anteriormente. Nas figuras 4.10 e 4.11, mostramos os espectros de todas as amostras apenas na configuração perpendicular.

Aqui cabe uma discussão sobre a presença de mais um modo de ressonância em algumas das amostras e a influência da espessura de Pd neste fato. A literatura afirma que, no caso de multicamadas de Co/Pd, para espessura de Pd maior que 25 Å, a interação entre as camadas de cobalto pode ser negligenciada [81,82]. Isto foi mostrado experimentalmente por diversos autores com medidas de magnetometria de amostra vibrante (VSM). No caso da espessura ser menor que 25 Å, a interação de troca entre as camadas de Co pode originar outros modos de ressonância que, devido a polarização dos átomos de Pd podem se propagar por toda a multicamada como ondas de spin [83,84]. Neste caso, a equação

adequada para se estudar o comportamento dos modos de ressonância é a equação 2.45. E a anisotropia efetiva pode ser obtida considerando-se apenas o modo principal k = 0.

No conjunto das amostras estudas, aquelas para as quais há possibilidade de interação de troca entre as camadas magnéticas são: CP7 (10/16 Å), CP8 (38/21 Å) e CP9 (23/19 Å), todas com espessura de Pd menor que 25 Å. Destas, a única que apresentou visivelmente outros modos de ressonância foi a CP9, e a possibilidade é que sejam modos de ondas de spin, como discutiremos mais à frente. O motivo de aparecer nesta amostra e não ocorrer na CP7 e na CP8 não é claro. Os espectros destas três amostras estão mostrados na figura 4.10 onde podemos observar um deslocamento do campo de ressonância para campos mais baixos à medida que a espessura de Co é diminuída, causado por um aumento da anisotropia magnética efetiva. Este aumento é devido à contribuição das interfaces na anisotropia magnética total que torna-se mais relevante com a diminuição da espessura. Isto fica evidente se expressarmos o campo de anisotropia a partir de contribuições de anisotropias de volume e de superfície:

$$H_{Kef} = \frac{2 K_{ef}}{M_{s}} = \frac{2 K_{V}}{M_{s}} + \frac{4 K_{S}}{t M_{s}}$$

onde *t* é a espessura da camada de Co. Esta equação é advinda da relação fenomenológica que relaciona anisotropias de volume e de superfície.



<u>Figura 4.10</u>: Espectros das amostras CP7, CP8 e CP9 depositadas sobre Si(111) obtidos na configuração de campo externo perpendicular ao plano da amostra.

Nas amostras CP2 (12/44 Å), CP3 (19/44 Å) e CP10 (13/29), todas com espessura de Pd superior a 25 Å, supomos que, ou não há interação entre as camadas de Co ou, se houver, a interação é fraca comparada com o conjunto anterior (CP7, CP8 e CP9). Todas estas três amostras apresentaram o modo de campo mais baixo, o qual não é resultante de interação entre as camadas e, como já foi dito, sua origem ainda não está bem esclarecida [74,75,76]. As possibilidades para sua origem serão discutidas na seção 4.4.

Os modos de menor intensidade que aparecem na CP2, na CP3 e na CP10, e são mais evidentes nas últimas duas, não podem ser causados por uma inomogeneidade da magnetização ou por regiões de anisotropia diferente, pois neste caso não desapareceriam para qualquer ângulo entre 0 e 90<sup>o</sup>. Entretanto, o que ocorre é o desaparecimento destes para um pequeno desvio do campo externo em relação a normal. Isto é típico de modos de ondas de spin que podem aparecer, neste caso, mesmo devido a uma fraca interação entre as camadas de Co.

Na figura 4.11 são mostrados os espectros da CP2, CP3 e CP10, para a configuração perpendicular. O motivo do modo adicional de baixo campo estar presente nestas amostras e não ocorrer nas outras (CP7, CP8 e CP9) não é entendido ainda. Artman e co-autores [76] também observaram, em amostras de Co/Pt, a ocorrência do modo adicional para um conjunto de amostras onde a espessura de Pt era de 12 Å. Para outro conjunto, com espessuras de Pt de 8 Å, constataram apenas uma ressonância. Os autores também não encontraram uma explicação que justificasse este fato.



Figura 4.11: Espectros das amostras CP2, CP3 e CP10, em substrato de Si (111) na configuração de campo externo perpendicular ao plano da amostra.

Como verificamos no conjunto anterior (figura 4.10), também podemos observar na figura 4.11 o decréscimo do campo de ressonância com a diminuição da espessura da camada

de Co. Na figura 4.12 mostramos os espectros da amostra CP3 para alguns ângulos do campo externo em relação ao plano do filme. Pode-se notar que os modos de menor intensidade desaparecem para um ângulo crítico de aproximadamente 6<sup>0</sup> em relação à normal ao plano do filme, o que é típico de modos de ondas de spin [83,85]. O mesmo acontece para a amostra CP10.



<u>Figura 4.12</u>: Espectros da amostra CP3 (19/44 Å), para diferentes orientações do campo externo. No gráfico interno é mostrada a linha obtida para o campo externo no plano do filme.

A anisotropia magnética também pode ser determinada a partir da dependência da magnetização com o campo externo aplicado, medindo-se a magnetização de saturação nas configurações paralela e perpendicular ao plano da amostra [32]. Com este método, a anisotropia é obtida da área entre as curvas de magnetização nas duas configurações. Uma

outra forma é obter o campo de anisotropia a partir do campo onde ocorre a saturação na direção de difícil magnetização. Isto foi feito para as amostras CP3, CP7, CP9 e CP10, depositadas em Si, com a técnica de magnetometria de amostra vibrante (VSM). Os resultados estão mostrados nas figuras seguintes. Em todos os gráficos, os pontos preenchidos foram obtidos na configuração perpendicular e os vazios, na configuração paralela. O sinal obtido na medida de VSM foi normalizado pelo sinal obtido na saturação.



<u>Figura 4.13</u>: Medida de magnetização por VSM em função do campo externo nas configurações paralela (pontos vazios) e perpendicular ao plano do filme (pontos cheios) para a amostra CP3. O campo de anisotropia é dado pelo ponto de cruzamento das duas curvas e está indicado no gráfico por uma seta.



Figura 4.14: O mesmo da figura 4.13 para a amostra CP7.



Figura 4.15: O mesmo da figura 4.13 para a amostra CP9.



Figura 4.16: O mesmo da figura 4.13 para a amostra CP10.

Para as amostras depositadas sobre vidro as linhas de FMR mantiveram a mesma forma das amostras depositadas em Si. Os parâmetros campo de ressonância  $H_{res}$  e largura de linha pico-a-pico  $\Delta H_{pp}$ , obtidos para as amostras nos dois tipos de substratos, estão indicados na tabela 4.3 para a configuração de campo perpendicular ao plano da multicamada. Os números 1 e 2 referem-se às linhas 1 e 2, que são as ressonâncias em campo alto e baixo, respectivamente. A diferença em  $H_{res}$ , para os dois substratos, não chega a 5%, com exceção da linha 1 para a amostra CP10 cuja diferença é 12%. Para a largura de linha, nota-se que estas são consideravelmente mais largas para as amostras em vidro. A exceção ocorre para a largura da linha 2 nas amostras CP3 e CP10. Este fato pode indicar uma pequena diferença de melhor homogeneidade, em relação à textura, para as amostras depositadas em Si.

<u>Tabela 4.3</u>: Parâmetros campo de ressonância e largura de linha para as amostras depositadas em substratos de Si (111) e vidro, obtidos dos espectros de FMR na configuração perpendicular. Os números 1 e 2 referem-se às linhas 1 e 2.

	CP3(19/44)		CP10(	CP10(13/29)		CP7(10/16)		CP8(38/21)		CP9(23/19)	
	Si	vidro	Si	vidro	Si	vidro	Si	vidro	Si	vidro	
1	13.90	14.25	10.60	9.42	9.95	9.6	16.17	15.90	14.11	14.30	
H <sub>res</sub> (kOe) 2	9.40	9.00	6.60	6.74	-	-	-	-	12.11	12.22	
1	0.25	0.34	0.24	0.36	0.15	0.4	0.08	0.20	0.09	0.16	
Δ <b>H(kOe)</b> 2	0.74	0.65	0.75	0.62	-	-	-	-	0.10	0.20	

Com a FMR, obtivemos o campo de anisotropia efetivo para cada uma das amostras depositadas em Si e em vidro, considerando o modo de campo mais alto na configuração perpendicular. Usamos também a magnetometria de amostra vibrante (VSM) na determinação de  $H_{kef}$  apenas para algumas das amostras depositadas em Si. A partir de  $H_{kef}$  e usando o valor de 1420 emu/cm<sup>3</sup> para  $M_s$ , determinamos a anisotropia efetiva para cada caso. Na tabela 4.4 são mostrados os valores de  $H_{kef}$  e  $K_{ef} \times t_{Co}$ . As diferenças encontradas entre os valores de  $H_{kef}$  para uma mesma amostra medida por FMR ou VSM é comum na literatura [7,22,86], sendo às vezes atribuída ao fato de a FMR, na configuração perpendicular, ser sensível apenas à anisotropia de primeira ordem (veja equação 2.38b), em contraste com a técnica de VSM que é sensível a todas as anisotropias de ordens mais altas [86].

Na figura 4.17, plotamos  $K_{ef} \times t_{C0}$  versus  $t_{C0}$  e fizemos um ajuste linear com a relação fenomenológica,  $K_{ef} \cdot t_{C0} = K_V \cdot t_{C0} + 2K_S$ . A linha tracejada mostrada na figura é o resultado deste ajuste para os pontos obtidos por FMR nas amostras em Si. O ponto indicado por uma seta refere-se à amostra CP6 (4/15 Å), com eixo fácil perpendicular ao plano, e não foi considerado no ajuste pois para esta espessura de Co, como dissemos na seção 1.2, as contribuições de volume para a anisotropia dependem da espessura da camada magnética. Esta amostra é tratada na seção 4.6. Os ajustes para os pontos obtidos por VSM, nas mesmas amostras, e por FMR nas amostras depositadas em vidro, não estão mostrado no gráfico. O coeficiente angular negativo -1.16 x 10<sup>7</sup> erg/cm<sup>3</sup> indica uma anisotropia de volume negativa que favorece um eixo fácil de magnetização no plano do filme. A magnetização de saturação à temperatura ambiente para filmes com camadas de Co cujas espessuras sejam maiores que 3 monocamadas é muito próxima do valor medido de 1420 emu/cm<sup>3</sup>, à temperatura ambiente, para o Co em sua forma volumar [81]. Portanto, usando-se este valor para o cálculo da energia magnetostática  $-2\pi M_s^2$ , temos o valor de  $-1.27 \times 10^7$  erg/cm<sup>3</sup>. Ou seja, a contribuição das energias magnetocristalina e magnetoelástica, de  $1.1 \times 10^6$  erg/cm<sup>3</sup>, para a anisotropia de volume, nestas multicamadas é muito pequena. Este resultado é próximo do valor de 0.8 x  $10^6$  erg/cm<sup>3</sup> obtido para o filme de Co sobre Si(111) na seção 2.6.1. O coeficiente linear fornece o valor de 0.4 erg/cm<sup>2</sup> para a anisotropia de interface, o qual é positivo pois esta anisotropia favorece um eixo fácil para a magnetização perpendicular à superfície da multicamada. Estes valores estão em acordo com valores da literatura para multicamadas de Co/Pd com estruturas características similares [3,7,21,81,87]. A espessura crítica  $t_c$  abaixo da qual a magnetização passa a se orientar preferencialmente perpendicular à camada pode ser obtida fazendo-se  $t_c = 2K_S/K_V$  e neste caso é em torno de 7 Å.

Os valores de  $K_S$  e  $K_V$  obtidos para as mesmas amostras com VSM foram 0.4 (± 0.1) erg/cm<sup>2</sup> e -1.0 (± 0.1) x 10<sup>7</sup> erg/cm<sup>3</sup>, respectivamente. Para as amostras em vidro, o resultado para  $K_S$  foi de 0.3 (± 0.1) erg/cm<sup>2</sup> e para  $K_V$  foi obtido -1.0 (± 0.1) x 10<sup>7</sup> erg/cm<sup>3</sup>. Percebe-se que os resultados estão bem próximos e, dentro do erro experimental, pode-se dizer que são os mesmos.

		$H_{Kef}$ (kOe)			$K_{efx} \; t_{Co}$	(erg/cm <sup>2</sup> )
Espessura	Si(111)	Si(111)	vidro	Si(111)	Si(111)	vidro
(Å)	FMR	VSM	FMR	FMR	VSM	FMR
9.7	-6.65	-4.4	-9.44	-0.46	-0.30	-0.65
12.1	-5.00	-	-	-0.43	-	-
13.2	-7.31	-4.9	-6.10	-0.67	-0.45	-0.57
19.2	-10.57	-8.5	-10.95	-1.47	-1.16	-1.49
23.0	-10.80	-10.0	-11.00	-1.76	-1.63	-1.79
38.4	-12.87	-	-12.60	-3.70	-	-3.44

<u>Tabela 4.4</u>: Valores de  $H_{kef}$  e de  $K_{ef x}$  t<sub>Co</sub>, em função da espessura da camada de Co, obtidos por FMR, para as amostras depositadas em Si e em vidro, e por VSM para as amostras em Si.



<u>Figura 4.17</u>: Valores de  $K_{g} \times t_{C_{\theta}}$  em função da espessura da camada de Co. Os valores da anisotropia efetiva foram obtidos experimentalmente por FMR e VSM. Os valores de  $K_{V}$  e  $K_{s}$  indicados no gráfico foram obtidos ajustando-se os dados de FMR, para as amostras em Si, com a relação fenomenológica indicada no texto.

Em resumo, nesta seção determinamos as contribuições de volume e de superfície para energia de anisotropia, pela FMR e por VSM, em multicamadas de Co/Pd sobre Si (111) e sobre vidro. As diferenças encontradas para os valores da anisotropia, em relação aos dois tipos de substratos utilizados, é próxima ao erro experimental. Os resultados obtidos estão de acordo com a literatura. O comportamento linear de K<sub>ef</sub>.t versus t confirma a independência da anisotropia efetiva com a espessura de Pd.

Ainda é necessário um comentário final com relação aos valores obtidos de  $K_V$ . Nestes sistemas de multicamadas tanto a fase hcp quanto a fcc para o Co, à temperatura ambiente, podem ser estáveis [32]. Nos dois casos, a contribuição para a anisotropia de forma é de -1.27 x 10<sup>7</sup> erg/cm<sup>3</sup>. Já, a anisotropia magnetocristalina para o Co fcc volumar é negligenciável e para o hcp volumar é de 4.1 x 10<sup>6</sup> erg/cm<sup>3</sup> (considerando apenas o termo de primeira ordem). Portanto, a contribuição de volume para a anisotropia total, desprezando-se efeitos magnetoelásticos, é de 0.8 x 10<sup>7</sup> erg/cm<sup>3</sup>, considerando-se o Co hcp e de  $-1.27 \times 10^7$  erg/cm<sup>3</sup> para o Co fcc. A diferença entre este valor de  $K_V$  e aqueles medidos em nossas amostras deve-se, portanto, a efeitos de tensões ou misturas entre as fases hcp e fcc.

#### 4.3 Discussão sobre a largura de linha dos espectros de FMR

A largura de linha de absorção nos espectros de FMR é causada por processos de relaxação, os quais, por sua vez, estão relacionados a inomogeneidades, defeitos, difusão nas interfaces, e ainda ao acoplamento entre as camadas magnéticas. Em materiais policristalinos, a largura de linha pode ser algumas ordens de grandeza maior que em monocristais, pois cada pequeno cristal na amostra apresenta uma ressonância deslocada em relação aos outros. O fato de a largura de linha observada em estruturas multicamadas ser, em geral, consideravelmente maior que aquela observada em estruturas do tipo *sanduíche*, é atribuído, normalmente, a imperfeições estruturais [7].

O efeito da espessura da camada magnética na largura de linha, em estruturas multicamadas, já é razoavelmente conhecido. Sabe-se que com a diminuição da espessura, o efeito de interdifusão nas interfaces passa a ser mais relevante, podendo levar a mudanças de campos internos e, como conseqüência, ao alargamento da linha [7,8,75]. Há também o efeito da espessura de Pd sobre a largura de linha. Se a espessura do espaçador for fina o suficiente a ponto de permitir uma forte interação entre as camadas de Co, a precessão entre os momentos magnéticos de cada camada será mais uniforme estreitando a largura de linha. Por outro lado, se não houver interação, ou se esta for fraca, pode haver uma pequena diferença entre a precessão dos momentos magnéticos de cada camada acarretando em um alargamento da linha [90].

O efeito da interação na largura de linha pode ser observado na figura 4.18 onde temos um conjunto de amostras com espessuras de Pd superiores a 25 Å, e portanto interação fraca ou negligenciável, e outro com espessuras inferiores a 25 Å. Pode-se notar claramente a diferença da largura de linha, em torno de uma ordem de grandeza, entre os dois conjuntos.

Pode-se observar também, nos dois grupos de amostras, um aumento considerável da largura com a diminuição da espessura de Co causado provavelmente pela interdifusão nas interfaces, cuja contribuição é maior na medida que se diminui espessura. Este fato deve ser analisado com mais cuidado no caso da figura (a), pois a largura observada na amostra CP2 (12/44 Å) é consideravelmente maior que para as amostras CP10 (13/29 Å) e CP3 (19/44 Å). Aqui, além do fato da espessura de Co da CP2 ser menor, há que se considerar que a interação entre as camadas de Co para a amostra CP10 é maior, uma vez que a espessura de Pd é razoavelmente menor.

Conforme o que foi dito acima, no caso da amostra CP2 temos então dois efeitos que contribuem para o aumento da largura de linha: a fina espessura de Co, que pode ressaltar os efeitos de interdifusão nas interfaces, e a grossa espessura de Pd, que faz com que a precessão dos momentos magnéticos das camadas de Co seja menos uniforme. Ainda assim, é necessário admitirmos a presença de inomogeneidades magnéticas advindas do processo de fabricação para justificar a largura observada.

Com relação ao efeito da implantação sobre a largura de linha, pode-se dizer que há uma tendência de homogeneização da multicamada com o aumento da dose de implantação. Isto pode ser verificado pela figura 4.19 onde vemos o comportamento da largura de linha em relação ao ângulo do campo externo antes e após a implantação da dose de 5 x 10<sup>14</sup> íons/cm<sup>2</sup>. O comportamento da implantada é muito similar àquele mostrado na figura 2.9 para o filme de Co e típico de um filme homogêneo [67]. Como já foi observado na seção 4.1, para esta dose de implantação consideramos apenas a linha mais intensa, daí a razão do gráfico se referir a apenas uma linha.



<u>Figura 4.18:</u> Comportamento da largura de linha pico-a-pico em função da espessura da camada de Co. (a) para as multicamadas de Co/Pd com espessuras de (12/44 Å), (13/29 Å) e (19/44 Å) e (b) no caso das espessuras (10/16 Å), (23/19 Å) e (38/21 Å).



<u>Figura 4.19</u>: Comportamento da largura de linha em função do ângulo  $\alpha$  para a amostra como preparada e a amostra implantada com dose 5 x 10<sup>14</sup> íons/cm<sup>2</sup>.

Nesta seção mostramos que a largura de linha, nos espectros de FMR, em multicamadas pode estar relacionada com a intensidade da interação entre as camadas magnéticas. Além da pequena espessura da camada de Co e da interação de troca fraca, ou nula, entre as camadas magnéticas, mecanismos inerentes ao processo de fabricação do filme também devem ser responsáveis pela excessiva largura de linha observada na amostra CP2.

Ainda, a análise do comportamento da largura de linha, em função do ângulo  $\alpha$ , na amostra implantada na dose de 5 x 10<sup>14</sup>, mostrou a tendência ao comportamento de um filme mais homogêneo, como aquele mostrado na figura 2.9 para o filme de Co. Ou seja, a análise da largura de linha também evidenciou a perda da assimetria entre os átomos da interface.

#### 4.4 Estudo da ressonância de baixo campo nas multicamadas de Co/Pd

A literatura tem relatado experiências de FMR em multicamadas de Co/Pd, Co/Pt e Co/Au onde observou-se o aparecimento de um modo adicional de ressonância cuja origem ainda permanece obscura [74,75,76,91]. Nesta seção, discutimos a origem deste modo, presente nas amostras com espessuras de Pd superior a 25 Å, o qual chamamos de linha 2.

Peng Chubing e co-autores [75] observaram um modo adicional em multicamadas de Co/Au preparadas por eletro-deposição em substrato de vidro e sugeriram que as duas camadas de Co externas (a primeira, em contato com o substrato, e a última) teriam uma anisotropia diferente das camadas internas. As amostras analisadas eram compostas de 20 bicamadas, sendo assim, dezoito seriam responsáveis pela ressonância em campo mais alto, enquanto que apenas as duas camadas de Co externas contribuiriam para a ressonância de campo mais baixo. Isto dificulta uma explicação para o fato de as intensidades dos dois modos, observados pelos autores, serem equivalentes.

Em multicamadas de Co/Pd depositadas por *sputtering* em substrato de vidro, Lesnick e Gontarz [74] observaram dois modos de ressonância muito semelhantes aos constatados em nossas amostras e atribuíram o modo de campo mais baixo a inomogeneidades na amostra que resultariam em regiões com anisotropias diferentes. Ainda Artman e co-autores também observaram esta ressonância em multicamadas de Co/Pt e atribuíram-na a regiões da amostra com diferentes anisotropias [76].

Com o objetivo de lançar alguma luz sobre esta questão, foram feitas medidas de FMR na amostra CP2 (12/44 Å) em função da temperatura. Antes, porém, é bom ressaltar que o comportamento dos dois modos em função do ângulo do campo externo, já mostrado na figura 4.6, pode obviamente indicar que a amostra possui regiões de diferente magnetização e/ou anisotropia, pois os cálculos apresentados na seção 4.1 mostraram uma boa concordância com os resultados experimentais também para a linha 2 e destes cálculos extraímos  $H_{Kef}$ , onde estão implícitos a magnetização e a anisotropia. Ainda devemos ressaltar que a variação angular do parâmetro  $H_{Kef}$ , dada pela equação 2.32, refere-se a um modo uniforme. Portanto, a concordância entre o resultado calculado e os valores experimentais, reforçam a idéia de que a linha 2 seja devido a um modo uniforme.

Com medidas de FMR em função da temperatura foi possível acompanhar o comportamento desses dois modos de ressonância. Na figura 4.20 são mostrados os espectros da amostra CP2 em função da temperatura, obtidos para a configuração de campo externo perpendicular ao plano da multicamada. O comportamento das posições das duas ressonâncias em função da temperatura pode ser observado na figura 4.21. O fato de os dois modos comportarem-se diferentemente com a temperatura pode indicar que provêm de entidades magnéticas distintas. Da literatura sabe-se que a magnetização de saturação do Co, no intervalo de temperatura considerado, praticamente não varia, uma vez que  $T_C$  do Co em sua forma volumar é em torno de 1400 K [77]. Nesta análise, supomos então que, uma eventual variação da posição de uma ressonância atribuída ao Co seria devida a uma mudança na anisotropia magnética com a temperatura e não de  $M_S$ .



<u>Figura 4.20</u> Espectros de FMR, para a configuração perpendicular, obtidos a diferentes temperaturas para a amostra CP2 (12/44 Å). A linha de pequena intensidade que aparece próxima de 3.0 kOe é devido ao suporte da amostra.

A ressonância em campo alto fica praticamente estacionada em 9.5 kOe, enquanto a de campo mais baixo desloca-se consideravelmente numa faixa de 100 a 300 K. Supondose que a magnetização se mantenha constante, calculamos a variação na anisotropia magnética efetiva relativa ao modo de campo mais baixo. O resultado é mostrado na figura 4.22 onde pode-se notar uma variação maior que 2x10<sup>6</sup> erg/cm<sup>3</sup> no intervalo de temperatura medido. Tanto o comportamento como os próprios valores encontrados para a anisotropia magnética estão muito próximos dos relatados na literatura para uma liga Co-Pd cuja composição é aproximadamente 1:1 [92]. Isto levanta a possibilidade deste modo de ressonância ser causado por átomos de Co nas interfaces que poderiam se comportar magneticamente como uma liga Co-Pd. Há vários relatos na literatura sobre a possibilidade de formação de liga nas interfaces [93,94]. Recentemente, T. Yang e co-autores estudaram, por microscopia eletrônica de transmissão, a microestrutura de multicamadas de Co/Pd, também policristalinas, com diferentes espessuras de Co e Pd, e consideraram fortemente esta possibilidade [93]. Também Aoki *et al.*, estudaram o efeito Hall em multicamadas de Co/Pd com eixo fácil perpendicular, e observaram, pela primeira vez, uma mudança no coeficiente Hall em função da espessura. Esta mudança ocorreu para a espessura de Co de 2 Å na temperatura de 4.2 K, e os autores explicaram o fenômeno assumindo a formação de uma liga nas intefaces [95].



<u>Figura 4.21</u> Campo de ressonância em função da temperatura para as duas linhas observadas na amostra CP2 (12/44 Å). A configuração do campo externo é perpendicular ao plano do filme.



<u>Figura 4.22</u>: Variação da anisotropia magnética efetiva com a temperatura para o modo de campo mais baixo para a amostra CP2 (12/44 Å). A linha cheia é apenas um guia para os olhos.

Atribuir o efeito observado na figura 4.22 à anisotropia magnetoelástica devido a estresses causados por diferenças entre os coeficientes de expansão térmica dos átomos de Co e de Pd seria muito precipitado, uma vez que estes coeficientes são 13.0 x 10<sup>-6</sup> e 11.8 x 10<sup>-6</sup> oC<sup>-1</sup>, respectivamente, no intervalo de temperatura considerado [96].

Com relação à hipótese deste modo ser resultante de uma interação de troca entre as camadas de Co, como já dissemos, a literatura está em acordo que no caso de camadas de Co separadas por camadas de Pd com espessuras superiores a 25 Å a interação de troca é negligenciável [81,82]. No presente caso, as amostras que apresentaram esta ressonância, CP2, CP3 e CP10, possuem camadas de Pd com espessuras superiores a 25 Å. Além disto, se sua origem fosse devido a uma fraca interação, sua intensidade não seria comparável a do outro modo [91] e, ainda, seu comportamento não seria similar ao comportamento de um modo uniforme. Os modos de menor intensidade que aparecem na amostra CP2, e são visíveis na figura 4.5, podem ser atribuídos a uma fraca interação. Estes, além de sua baixa intensidade, também desaparecem para ângulos do campo externo, em relação à normal ao plano do filme, maiores do que 6<sup>0</sup>.

A mesma amostra utilizada para o estudo com variação de temperatura, CP2 12/44 Å, foi submetida, após as medições mostradas acima, a um tratamento térmico a 550 K por 15 minutos. O resultado é mostrado na figura 4.23 discriminado pela curva 2. A curva 1 é referente à amostra como preparada e a de número 3, a mesma amostra com a máxima dose de implantação de Ar<sup>+</sup>, 7.5 x  $10^{14}$  íons/cm<sup>2</sup>. Todos os espectros foram obtidos à temperatura ambiente. As curvas 1 e 3 já foram mostradas anteriormente.



<u>Figura4.23</u>: Espectros da amostra CP2 (12/44 Å) obtidos à temperatura ambiente para a configuração de campo perpendicular ao plano da amostra. A curva 2 foi obtida após um tratamento térmico e a curva 3, após a implantação de 7.5 x  $10^{14}$  íons de Ar<sup>+</sup>/cm<sup>2</sup>.

Deste resultado pode-se ver claramente as diferenças causadas nas propriedades magnéticas entre o tratamento térmico e a implantação iônica. Enquanto com o primeiro há um aumento no campo de anisotropia magnética, com o segundo, como já demonstramos, ocorre o contrário. Para verificarmos se o aumento do campo de anisotropia, para a curva 2, é devido ao aumento da anisotropia, seria necessário conhecermos a magnetização da amostra após o tratamento. Isto não foi feito para esta amostra (CP2), mas o foi para a amostra CP9 (23/19 Å), na qual medimos também a magnetização antes e após o tratamento. É interessante notar que na CP2, a posição da ressonância, após o tratamento térmico, é a mesma da linha 2 à temperatura ambiente. Isto também pode favorecer a hipótese da linha ser resultante de regiões onde os átomos de Co e Pd estejam misturados.

## 4.5 Influência do tratamento térmico na anisotropia magnética em multicamadas de Co/Pd

Nesta seção estudamos a influência do tratamento térmico em multicamadas de Co/Pd. A amostra utilizada para esta análise foi a CP9 (23/19 Å) depositada sobre vidro. Foram utilizados vários pedaços da mesma amostra, para os quais foi medida a magnetização, por VSM, antes e após o tratamento térmico por ½ h, nas temperaturas de 453, 513, 619 e 673 K. O tratamento foi feito em atmosfera de argônio e à pressão atmosférica. Para todas as temperaturas de tratamento não foi observada variação na magnetização de saturação maior que a precisão do equipamento utilizado.

A figura 4.24 mostra os espectros de FMR, para a amostra como preparada e para as diferentes temperaturas de tratamento, para a configuração de campo externo paralelo ao plano da amostra. Na figura 4.25, são mostrados os espectros para a configuração paralela os espectros apresentam apenas uma linha, enquanto que para a amostra como preparada, na configuração perpendicular, aparecem três modos de ressonância, como pode ser visto em uma ampliação feita na figura 4.26. Para as temperaturas de tratamento de 513, 619 e 673 K, o segundo modo também pode ser visto com uma ampliação dos espectros mostrados na figura 4.25. Os dois modos de menor intensidade desaparecem para um pequeno desvio do campo em relação à normal ao plano do filme, o que é típico de modos de ondas de spin [83,85]. Abordaremos isto mais à frente. A análise, por ora, cabe apenas ao modo principal.



<u>Figura 4.24</u>: Espectros de FMR obtidos à temperatura ambiente para amostras submetidas a tratamento térmico nas temperaturas indicadas no gráfico, na configuração paralela ao plano da multicamada, para a amostra CP9 (Co/Pd 23/19 Å).



Figura 4.25: O mesmo da figura 4.20 só que para a configuração de campo externo perpendicular ao plano da amostra.

Até a temperatura de 673 K observa-se, na configuração perpendicular, o deslocamento do modo principal para campos mais baixos e, para a configuração paralela, observa-se justamente o oposto. Isto demonstra o aumento da anisotropia magnética com o aumento da temperatura de tratamento, uma vez que a magnetização se manteve constante. Na tabela 4.3, o comportamento dos parâmetros  $H_{res} e \Delta H_{pp}$ , do modo principal, em função da temperatura de tratamento, para configurações perpendicular e paralela, podem ser vistos com mais detalhes. Os valores do campo de anisotropia efetivo, para cada temperatura de tratamento, foram obtidos usando-se a equação  $H_{Kef} = -(H_{\perp} + H_{//}) + [H_{//} (H_{\perp} + 5/4H_{//})]^{1/2}$  deduzida na seção 2.6.1. Com o campo de anisotropia efetivo, obtém-se a anisotropia a partir da relação  $H_{Kef} = 2K_{ef}/M_s$ . O valor da magnetização utilizado foi de 1420 emu/cm<sup>3</sup>. Da tabela 4.5, pode-se constatar o aumento da anisotropia.

Tratamento térmico por ½ h (K)	H <sub>res⊥</sub> (kOe)	H <sub>res∜</sub> (kOe)	∆H <sub>pp⊥</sub> (kOe)	∆H <sub>pp//</sub> (kOe)	K <sub>ef</sub> (10 <sup>7</sup> erg/cm <sup>3</sup> )
como preparada	14.16	0.94	0.14	0.21	-1.54
453	13.70	0.95	0.20	0.20	-1.48
513	12.47	1.06	0.43	0.30	-1.30
619	11.34	1.14	0.30	0.28	-1.15
673	10.11	1.19	0.38	0.32	-0.99

<u>Tabela 4.5</u>: Parâmetros dos espectros de FMR em função do tratamento térmico, nas configurações paralela e perpendicular, para a amostra CP9 (23/19 Å). Para o cálculo de K<sub>ef</sub>, o valor de M<sub>S</sub> considerado foi o do Co em sua forma volumar.

O aumento da anisotropia magnética em multicamadas submetidas a um tratamento térmico já foi observado na literatura em multicamadas de Co/Pd [97] e Co/Au [98]. Enquanto que neste último caso o efeito foi atribuído a um aumento da anisotropia de interface devido a uma diminuição da rugosidade das interfaces, induzida pelo tratamento, no primeiro os autores levantaram a possibilidade do aumento da anisotropia ser causado por efeitos de tensões. Já foi observado também que o tratamento térmico provoca um aumento nos grãos que compõem as multicamadas de Co/Pd [99] e que isto produz um efeito na anisotropia magnética, porém, ainda não é claro como o tamanho dos grãos está conectado à anisotropia de interface [2]. No capítulo 5, damos idéias de alguns tipos de experimentos e procedimentos que podem ajudar nesta questão.

#### Análise dos modos em baixo campo da amostra CP9 (23/19 Å) como preparada

Na figura 4.22 é mostrado o espectro da amostra CP9 (23/19 Å) como preparada à temperatura ambiente na configuração perpendicular. Em uma ampliação do espectro podese ver bem resolvido um terceiro modo de ressonância. Supondo que estes modos adicionais sejam modos de ondas de spin, pode-se calcular a constante efetiva de acoplamento de troca dada pela equação 2.47:

$$D_{ef} = \frac{L^2}{\pi^2 n^2} (H_0 - H_n),$$

onde L é a espessura total do filme,  $H_0$  e  $H_n$  são o campo de ressonância relativo ao modo uniforme e o campo de ressonância do n-ésimo modo de onda de spin, respectivamente. O resultado é mostrado no gráfico inserido na figura 4.22. O fato de não serem visíveis os modos 1 e 2 é que estes podem estar sobrepostos ao modo principal e, devido ao acoplamento ser fraco, a separação entre o modo principal e estes dois modos pode ser tão pequena de forma que seja comparável com a largura de linha do modo principal.

Apenas para efeito de comparação, o valor da literatura para a constante efetiva de acoplamento de troca para o Co hcp em sua forma volumar é  $D_{ef} = 277 \times 10^{-10} \text{ Oe.cm}^2$  [100]. O valor obtido para a amostra CP9, de aproximadamente 4 x 10<sup>-10</sup> Oe.cm<sup>2</sup>, é muito menor devido a distância entre os momentos magnéticos das camadas interagentes. Há na literatura um relato de ondas de spin em multicamadas de Co/Pd (400/10 Å) onde os autores

encontraram o valor de 32 x 10<sup>-10</sup> Oe.cm<sup>2</sup> [101]. A espessura de Pd é menor e portanto o acoplamento mais forte.



<u>Figura 4.26</u>: Espectro da amostra CP9 depositada sobre vidro, como preparada, na configuração perpendicular. O gráfico inserido mostra o ajuste dos modos coma equação 2.47. O valor obtido para a constante de acoplamento foi de 4.16 x 10<sup>-10</sup> Oe.cm<sup>2</sup>.

# <u>4.6 Estudo da amostra CP6 (4.5/15 Å)<sub>50</sub></u>

A amostra CP6, pela sua fina espessura e de acordo com resultados citados da literatura, deve apresentar um eixo fácil de magnetização perpendicular ao plano do filme, ou seja, o campo de anisotropia  $H_{Kef}$  deve ser positivo. Neste caso, de acordo com as equações 2.35, o campo externo para a ressonância, na configuração perpendicular, deve se localizar em baixo campo enquanto que, para o campo externo no plano da amostra, a ressonância deve ocorrer em campo mais alto.

A análise dos espectros de FMR em filmes com eixo fácil perpendicular ao plano do filme não é trivial de se fazer, pois os processos de magnetização, nestas amostras, podem envolver nucleação de domínios e propagação das paredes dos domínios. Em nossa análise estas contribuições não são consideradas e, portanto, supomos que cada camada magnética constitui um monodomínio e sua magnetização se movimenta como um bloco de momentos magnéticos rigidamente acoplados. Este processo é chamado de rotação coerente da magnetização [88].

Nas medidas de FMR, com o campo externo crescente (de 0 a 19 kOe), a amostra não apresentou ressonância. Porém, com o campo decrescente observamos uma linha de ressonância muito diferente de uma linha usual. Na figura 4.27 são mostrados oito espectros obtidos para a configuração de campo externo perpendicular ao plano da muticamada. A começar pela linha superior, o campo inicial de cada uma foi: 2.5, 2.8, 3.1, 3.5, 4.0, 4.5, 5.0 e 5.2 kOe. As linhas foram obtidas nesta mesma ordem sendo que, após o registro de cada uma, na subida do campo, para a obtenção da linha seguinte, não houve nenhuma ressonância. Após o registro da última linha, que se iniciou em 8.2 kOe, tornamos a subir novamente o campo e nada se observou. Independente do campo inicial ao qual submetíamos a amostra, após reduzi-lo a zero poderíamos iniciar o espectro de qualquer um dos valores de campo apresentado na figura 4.27 e a linha se repetia. Ou seja, o fenômeno não é associado a algum tipo de remanência. Outro ponto importante é com relação à saturação na absorção. Na terceira linha (campo inicial de 3.1 kOe), pode-se ver uma pequena absorção que segue crescendo, na medida que aumenta-se o campo inicial, até sua saturação em 5.0 kOe. Esta saturação pode ser entendida observando-se o comportamento da magnetização obtido por efeito Kerr magneto-óptico mostrado na figura 4.28, para a configuração de campo externo perpendicular ao plano da amostra. Vemos que na subida do campo externo a magnetização de saturação se dá exatamente em 5.0 kOe. Ou seja, neste campo os momentos magnéticos de todas as camadas estão já completamente alinhados uns com os outros, de forma que a magnetização total é máxima e, portanto, a absorção também. Na descida do campo inicia-se uma queda abrupta da magnetização em 1.0 kOe, exatamente no ponto onde ocorre a ressonância. Este fato pode ser responsável pela assimetria observada na linha.



<u>Figura 4.27</u>: Espectros de FMR obtidos na descida do campo. Cada uma das linhas foi obtida com um valor de campo inicial diferente (veja texto).



<u>Figura 4.28</u>: Curva de magnetização obtida por efeito Kerr polar para a amostra CP6 (4.5/15 Å) na configuração de campo externo perpendicular ao plano da amostra.

Na medida em que diminuímos o ângulo do campo externo em relação ao plano do filme observamos exatamente o oposto do ocorrido nas outras amostras relatadas neste trabalho. Enquanto que para as amostras com  $H_{Kef} < 0$  o campo de ressonância diminui na medida que o campo externo se aproxima do plano, para  $H_{Kef} > 0$  ocorre justamente o contrário. Obviamente, isto já é previsto pelas equações 2.31 e 2.32. Este comportamento é mostrado na figura 4.29 até para o ângulo de 40°, onde podemos ver um aumento na largura de linha e, como conseqüência, aumenta-se o erro na determinação do campo de ressonância. Lembrando ainda que a determinação deste é também dificultada pela forma não usual da linha. Para ângulos menores que 40° a intensidade da linha diminui muito e não é possível extrair os parâmetros espectrais.

O valor do campo de anisotropia efetivo foi obtido com as equações 2.31 e 2.32, calculando-se a curva mostrada na figura 4.30. Deve-se lembrar aqui que as contribuições de volume e de interface para a energia de anisotropia, não são normalmente descritas pela relação fenomenológica (equação 1.1), uma vez que para espessuras de Co abaixo de 6 Å, o termo de volume pode depender da espessura.

O fato da linha não ser observada na subida do campo pode ser explicado com a hipótese de que os momentos magnéticos entre as camadas magnéticas interagem antiferromagneticamente e, portanto, a magnetização em baixo campo é muito pequena. Devemos ressaltar aqui que interação AFM entre camadas de Co foi observada usando como espaçadores Ru [102] e Cr [103]. O único sistema onde observou-se interação AFM entre as camadas magnéticas usando-se Pd como espaçador foi Fe/Pd/Fe [104]. Por isto, a hipótese de interação AFM em nossa amostra deve ainda ser melhor analisada. Na configuração perpendicular, a condição de ressonância é dada pela equação

$$\frac{\omega}{\gamma} = H_0 + H_{Kef} = H_0 + \frac{2}{M} \left( K_u - 2\pi M^2 \right)$$

onde em  $K_{\mu}$  estão incluídas as contribuições de volume e de superfície para a anisotropia e o termo  $2\pi M^2$  vem da energia desmagnetizante. Considerando-se os valores medidos da magnetização e o valor de  $K_{\mu}$  obtido de  $H_{Ke\ell}$  nesta equação, conclui-se que a soma do campo interno com o campo externo, durante toda a curva de subida da magnetização, excede o valor necessário para a ressonância. O mesmo não ocorre na descida do campo, sendo que neste caso a condição de ressonância é satisfeita para  $H_0$  em torno de 1.0 kOe, o que está de acordo com o resultado obtido experimentalmente.



Figura 4.29: Espectros de FMR obtidos na descida do campo para vários ângulos do campo externo em relação ao plano do filme.



<u>Figura 4.30</u>: Comportamento do campo de ressonância em função do ângulo  $\alpha$ . A linha cheia foi obtida com as equações 2.31 e 2.32 considerando H<sub>kef</sub> = 2.1 kOe e  $\omega/\gamma$  = 3.3 kOe.

Dentro da hipótese considerada, podemos supor, baseado na figura 4.28, que na subida do campo a transição de *spin-flop up* ocorre para um campo de aproximadamente 3.5 kOe (H<sub>SFU</sub>  $\approx$  3.5 kOe), que é o ponto onde ocorre a mudança de concavidade na curva. Este campo corresponde ao valor necessário para que o momento magnético de cada camada se alinhe ferromagneticamente. De acordo com os modelos apresentados nas referências 88 e 89, onde são considerados interação antiferro entre as camadas magnéticas e rotação coerente da magnetização, pode-se escrever que:

$$H_{SFU} = \sqrt{H_{Kef} \left( H_{Kef} - H_J \right)} \tag{4.1a}$$

$$E_{S} = -\frac{3}{2}\lambda_{S}\sigma \, \mathrm{sen}^{2} \, \theta \tag{4.1b}$$

onde  $H_J = 4J_{AF}/M_S$ . O termo  $J_{AF}$  representa a constante de acoplamento antiferro e, portanto, é menor que zero. Da equação 4.1a pode-se deduzir que  $H_J \approx -3.7$  kOe. Utilizandose este valor na equação 4.1b deduz-se que  $H_{SFD} \approx 0.9$  kOe, que é justamente o valor de campo no qual ocorre um queda abrupta da magnetização na figura 4.28. O valor da constante de acoplamento de troca por unidade de área  $J_{AF} \ge t_{C_0}$  é de -0.2 erg/cm<sup>2</sup>, onde consideramos  $M_S = 1420$  emu/cm<sup>3</sup>. Sabe-se, porém, que para espessuras de Co de uma ou duas camadas atômicas, em multicamadas de Co/Pd, a magnetização de saturação, na temperatura ambiente, pode ser em torno de 20% menor que este valor [80].

Com relação aos espectros de FMR serem diferentes na subida e descida do campo, há na literatura apenas um caso semelhante a este observado em multicamadas de Co/Ru [102], onde os autores encontraram valores de mesma ordem do relatado aqui para a constante de acoplamento de troca.

# Capítulo 5:

# Conclusões finais e sugestões para trabalhos futuros

Com a técnica da FMR conseguimos determinar a anisotropia magnética efetiva de diferentes sistemas de multicamadas de Co/Pd. Conseguimos ainda determinar as contribuições de volume e de superfície para a energia de anisotropia, cujos valores encontrados estão de acordo com os resultados encontrados na literatura. Com relação ao tipo de substrato, vidro ou silício, os parâmetros espectrais da FMR indicaram uma pequena diferença de melhor homogeneidade, em relação à textura, para as amostras depositadas em Si.

Pudemos ainda acompanhar passo-a-passo a diminuição da anisotropia magnética nas amostras devido às mudanças nas interfaces (aumento da rugosidade e interdifusão entre os átomos) causadas pela implantação gradativa de Ar<sup>+</sup>. Os resultados de FMR, aliados aos dados de raios-X, indicam que as mudanças nas propriedades magnéticas foram causadas pela modificação das interfaces.

Os dois conjuntos principais de amostras estudadas com espessuras de Pd maiores que 25 Å e menores, apresentaram diferenças, de praticamente uma ordem de grandeza na largura de linha dos espectros, as quais podem ser justificadas pela diferença na intensidade da interação entre as camadas magnéticas nos dois casos.

A análise do modo de ressonância referente à linha 2 mostrou ser este proveniente de regiões da amostra com magnetização e/ou anisotropias diferentes. Ainda, o comportamento da anisotropia magnética, em função da temperatura, relativo a esta linha, levanta a possibilidade desta ser causada por átomos de Co nas interfaces que, devido a interdifusão, podem se comportar como uma liga Co<sub>0.5</sub>Pd<sub>0.5</sub>.

Com relação ao tratamento térmico, mostramos que a anisotropia magnética efetiva aumenta com o aumento da temperatura de tratamento até, pelo menos, 400 °C. Medidas em outras amostras são necessárias para sabermos se o aumento deve-se à anisotropia de interface ou de volume. Uma idéia é submetermos a um tratamento térmico um conjunto de amostras com diferentes espessuras de Co, e medirmos novamente  $K_V$  e  $K_S$ . Isto pode ser feito para mais duas ou três temperaturas, medindo-se também a magnetização antes e após o tratamento. Desta forma, através da análise de  $K_V$  e  $K_S$ , para cada temperatura de tratamento, pode-se determinar qual a maior contribuição para o aumento da anisotropia efetiva. Se for devido à anisotropia de interface, uma análise através de difração por raio-X pode informar se é devido a uma melhor definição das interfaces causada pelo tratamento térmico.

Estudos envolvendo tratamento térmico de multicamadas e também medidas do comportamento da anisotropia magnética com a temperatura é de particular interesse em pesquisas direcionadas a aplicações tecnológicas e têm recebido pouca atenção na literatura.
## Referências

- M. T. Johnson, R. Jungblut, P. J. Kelly, F. J. A. den Broeder, J. Magn. Magn. Mater. <u>148</u> (1995) 118-124.
- [2] F.J.A. den Broeder, W. Hoving e P.J.H. Bloemen, J. Magn. Magn. Mat. <u>93</u> (1991) 562-570.
- [3] Jae-Geun Ha, Kentaro Kyuno e Ryoichi Yamamoto, J. Phys.: Condens. Matter <u>8</u> (1996) 677-684.
- [4] K. Kyuno, J-G. Ha, R. Yamamoto e S. Asano, J. Phys.: Condens. Matter <u>8</u> (1996) 3297-3303
- [5] E.C. da Silva, R. Meckenstock, O. von Geisau, R. Kordecki, J. Pelzl, J.A. Wolf e P. Grünberg, J. Magn. Magn. Mat. <u>121</u> (1993) 528-531.
- [6] B. Heinrich, *Ferromagnetic resonance* em: "Ultrathin Magnetic Structures II", editado por B. Heinrich e J. A. C. Bland, Springer Berlin 1994
- [7] H.A.M. de Gronckel, C.H.W. Swüste, K. Kopinga e W.J.M. de Jonge, Appl. Phys. A <u>49</u> (1989) 467.
- [8] A. Soliman, F. Schreiber, R. Meckenstock, P. Bödeker, K. Bröhl e J. Pelzl, Phys. Stat. Sol. (b) <u>186</u> (1994) 437.
- [9] F. Schreiber, J. Pflaum, Z. Frait, Th. Muhge e J. Pelzl, Solid State Comun 223 (1995) 563.
- [10] S. M. Rezende, J. A. S. Moura, F. M. Aguiar, C. A. dos Santos, W. R. Schreiner e S. R. Teixeira, J. Appl. Phys. <u>73</u> (10) (1993) 6341.
- [11] A. Layadi e J. O. Artman, J. Magn. Magn. Mater. <u>92</u> (1990) 143-154.
- [12] B Heinrich, J. F. Cochran, M. Kowalewski, J. Kirschner, Z. Celinski. A. S. Arrot, e
   K. Myrtle, Phys. Rev. B <u>44</u> (1991) 9348-9361.
- [13] B Heinrich, S. T. Purcell, J. R. Dutcher, K. B. Urquhart, J. F. Cochran, e A. S. Arrot, Phys. Rev. B <u>38</u> (1988) 12879-12896.
- [14] J. Dubowik e F. Stobiecki, Proceedings of the European Conference "Physics of Magnetism 93", Acta Phys. Polonica A, 85 (1994) 449-453.
- [15] S.T. Purcell et al., J. Appl. Phys <u>69</u>(8) (1991) 5640-5642.

- [16] H.J.G. Draaisma, W.J.M. de Jonge e F.J.A. den Broeder, J. Magn. Magn. Mat. <u>66</u> (1987) 351-355.
- [17] B.N. Engel et al., Phys. Rev. Lett. 67 (1991) 1910-1913.
- [18] P.F. Carcia, A.D. Meinhaldt e A. Suna, Appl. Phys. Lett. <u>47</u> (1985) 178.
- [19] J. V. Harzer, B. Hillebrands, R. L. Stamps, G. Guntherodt, C. D. England e C. M. Falco, J. Appl. Phys. <u>68</u> (4) (1991) 2448-2454.
- [20] V. C. dos Santos, "Ressonância Ferromagnética em filmes finos magnéticos de Fe de Co e em multicamadas de Fe/Cr", Tese de Doutorado apresentada no Instituto Militar de Engenharia - Rio de Janeiro - maio de 1997.
- [21] P.de Haan, Q. Meng, T. Katayama e J.C. Lodder, J. Magn. Magn. Mat., <u>113</u> (1992) 29-35.
- [22] M. P. M. Luykx, C. H. W. Swuste, H. J. G. Draaisma e W. J. M. de Jonge, J. de Phys. <u>12</u> C8 (1988) 1769.
- [23] Revue "Le Haut-Parleur" <u>1808</u> (1993) 13; E. Ikeda, T. Tanaka, T. Chiba e H. Yoshimura, MORIS 92 Proc., J. Magn. Soc. Jpn. <u>17</u> (S1) (1993) 335.
- [24] J. Daval e B. Bechevet, J. Magn. Magn. Mater. <u>129</u> (1994) 98-107.
- [25] S. Uchiyama, MORIS 92 Proc., J. Magn. Soc. Jpn. <u>17</u> (S1) (1993) 1.
- [26] Mark H. Kryder, "Magneto-optic recording technology", J. Appl. Phys. <u>57</u> (1) (1985) 3913-3919.
- [27] Y. Ochiai, S. Hashimoto e K. Aso, IEE Trans. Mag. 25 (5) (1989) 3755.
- [28] J. H. van Vleck, Phys. Rev. <u>52</u> (1937) 1178.
- [29] L. Néel, J. Phys. Rad. <u>15</u> (1954) 225.
- [30] G. H. O. Daalderop, P. J. Kelly e M. F. H. Schuurmans, "Magnetic Anisotropy from First Priciples", em: Ultrathin Magnetic Structures II, editado por B. Heinrich e J. A. C. Bland, Springer - Berlin 1994.
- [31] G. H. O. Daalderop, P. J. Kelly e M. F. H. Schuurmans, Phys. Rev. B <u>42</u> (1990) 7270.
- [32] W. J. M. deJonge, P. J. H. Bloemen, e F. J. A. den Broeder, "Experimental Investigations of Magnetic Anisotropy", em: Ultrathin Magnetic Structures II, editado por B. Heinrich e J. A. C. Bland, Springer - Berlin 1994.
- [33] C. Chappert e P. Bruno, J. Appl. Phys. <u>64</u> (1988) 5736.
- [34] P. Bruno, J. Appl. Phys. <u>64</u> (1988) 3153.

- [35] V. K. Arkad'yev, J. Russ. Phys. Chem. Soc., Phys. Part <u>44</u> (1912) 165.
- [36] V. K. Arkad'yev, J. Russ. Phys. Chem. Soc. <u>45</u> (1913) 103,312.
- [37] Ya. G. Dorfman, Zs. f. Phys <u>17</u> (1923) 98.
- [38] L. D. Landau e E. M. Lifshitz, Phys. Zs. Soviet Union, <u>8</u> (1935) 153.
- [39] J. H. E. Griffths, Nature, <u>158</u> (1946) 670.
- [40] E. K. Zavoiskii, J. Phys. USSR <u>10</u> (1946) 197.
- [41] E. K. Zavoiskii, Tese de Doutorado (em russo), Physical Inst., Akad Nauk SSSR 1944.
- [42] C. Kittel, Phys. Rev., <u>71</u> (1947) 270.
- [43] J. H. van Vleck, Phys. Rev., <u>78</u> (1950) 266.
- [44] G. T. Rado, Adv. in Electr., <u>2</u> (1950) 251.
- [45] J. H. van Vleck, Physica, <u>17</u> (1951) 234.
- [46] C. Kittel, J. de Phys. et Rad., <u>12</u> (1951) 291.
- [47] J. Smit e H. P. J. Wijin, Adv. in Electr., <u>6</u> (1954) 70.
- [48] N. Bloembergen, Proc. I.R.E., <u>44</u> (1956) 1259.
- [49] S. V. Vonsovskii, "Magnetic Resonances in Ferromagnetics" em "Ferromagnetic Resonance", editado por S. V. Vonsovskii, Pergamon Press Ltd., Oxford 1966.
- [50] T. L. Gilbert, Phys. Rev., <u>100</u> (1955) 1243.
- [51] G. V. Skrotskii e L. V. Kurbatov, "Phenomenological Theory of Ferromagnetic Resonance" em "Ferromagnetic Resonance", editado por S. V. Vonsovskii, Pergamon Press Ltd., Oxford 1966.
- [52] H. Suhl, Proc. I.R.E., <u>44</u> (1956) 1270; Phys. Chem. Solids, <u>1</u> (1957) 209.
- [53] R. F. Soohoo, "Theory and Application of Ferrites", Prentice-Hall, New Jersey 1960.
- [54] G. V. Skrotskii e L. V. Kurbatov, Soviet Phys. JETP, <u>8</u> (1958) 148.
- [55] G. H. O. Daalderop, P. J. Kelly e M. F. H. Schuurmans, Phys. Rev. B <u>41</u> (1990) 11919.
- [56] S. Chikazumi, "Physics of Magnetism", editado por John Wiley & Sons, New York 1964.
- [57] H. Awano, Y. Suzuki, T. Yamazaki, T. Katayama, e A. Itoh, IEEE Trans. Mag. <u>26</u> (1990) 2742.
- [58] H. J. G. Draaisma e W. J. M. de Jonge, J. Appl. Phys. <u>64</u> (7) (1988) 3610.
- [59] C. Kittel, Phys. Rev. <u>110</u> (1958) 1295.

- [60] C. Kittel, Phys. Rev. <u>112</u> (1958) 2139.
- [61] M. Okochi e H. Nosé, J. Phys. Soc. Japan <u>25</u> (1968) 1017.
- [62] R. Kordecki, R. Meckenstock, J. Pelzl e S. Nikitov, J. Appl. Phys. <u>73</u> (10) (1993) 6359.
- [63] P. E. Wigen, Thin Solid Films <u>114</u> (1984) 135-186.
- [64] M. Okochi e H. Nosé, J. Phys. Soc. Japan <u>27</u> (1969) 312.
- [65] B Heinrich, J. F. Cochran, M. Kowalewski, J. Kirschner, Z. Celinski. A. S. Arrot, e K. Myrtle, Phys. Rev. B <u>44</u> (1991) 9348-9361.
- [66] E. A. M. van Alphen, H. A. M. Gronckel, P. J. Bloemen, A. S. van Steenbergen e W. J. M. de Jonge, J. Magn. Magn. Mater. <u>121</u> (1993) 77.
- [67] C. Chappert at al., Phys. Rev. B <u>34</u> (1986) 3192-3197.
- [68] J. D. Jackson, "Eletrodinâmica Clássica", Editora Guanabara Dois, Rio de Janeiro
  1983.
- [69] R. S. Biasi e A. A. R. Fernandes, Phys. Rev. B <u>42</u> (1990) 11946.
- [70] L. F. Schelp, M. Carara, A. D. C. Viegas, M. A. Z. Vasconcelos, e J. E. Schmidt, J. Appl. Phys. <u>75</u> (10) (1994) 5262-5266.
- [71] John Q. Xiao, K. Liu, C. L. Chien, L. F. Schelp e J. E. Schmidt, J. Appl. Phys. <u>76</u> (10) (1994) 6081-6083.
- [72] L. F. Schelp, Efeitos da anisotropia e da interdifusão nas interfaces sobre a magnetostricção em multicamdas de Co/Pd, Tese de Doutoramento, IF - UFRGS (1994).
- [73] C. P. Poole, Jr., "Electron spin Resonance" editado por Wiley New York, 1983.
- [74] N. A. Lesnik e R. Gontarz, J. Magn. Magn. Mater. <u>140</u> (1995) 607-608.
- [75] Peng Chubing, Daí Daosheng, e Fang Ruiyi, Phys. Rev. B 46 (1992) 12022.
- [76] J. O. Artman et al., J. Appl. Phys. 70 (1991) 6038-6040.
- [77] E.P. Wohlfarth, Ferromagnetic Materials, vol.1, Editora North-Holland, 1980.
- [78] Soon C. Hong, T. H. Rho e Jae Il Lee, J. Magn. Magn Mater. <u>140</u> (1995) 697.
- [79] R. M. Bozorth, P. A. Wolfe, D. D. Davis, V. B. Compton, e J. H. Wernick, Phys. Rev. <u>122</u> (1961) 1157.
- [80] H. J. G. Draaisma, F. J. A. den Broeder e W. J. M. de Jonge, J. Appl. Phys. <u>63</u> (1988) 3479.

- [81] W. R. Bennett, C. D. England, D. C. Person e C. M. Falco, J. Appl. Phys. <u>69</u> (8) (1991) 4384-4390.
- [82] P. J. H. Bloemen, N. J. M. de Jonge e H. C. Donkersloot, J. Magn. Magn. Mater. <u>121</u> (1993) 279.
- [83] S. M. Zhou, H. R. Zhai, H. Y. Zhang, A. Hu, R. W. Peng, G. Feng, Y. H. Liu, X. D.
   Ma, L. Y. Chen, e H. B. Huang, Phys. Stat. Sol. (a) <u>143</u> (1994) 405.
- [84] Yi-hua Liu et al., Phys. Rev. B 50 (1994) 6137.
- [85] Shi-shen Yan, Yi-hua Liu, e Liang-mo Mei, Phys. Rev. B <u>52</u> (2) (1995) 1107.
- [86] M. J. Pechan e I. K. Schuller, Phys. Rev. Lett. <u>59</u> (1987) 132-135.
- [87] M. Sakurai, T. Takahata e I. Moritani, J. Magn. Soc. Jpn. <u>15</u> (1991) 411.
- [88] J. Dieny, J. P. Gavigan e J. P. Rebouillat, J. Phys.: Condens. Matter 2 (1990) 159-185.
- [89] W. Folkerts, J. Magn. Magn. Mater. <u>94</u> (1991) 302-310.
- [90] Shi-Ming Zhou, Liang-Yao Chen, Yi Su, You-Hua qian, Zhi-Hong Jiang, e De-Fang Shen, J. Magn. Magn. Mater. <u>132</u> (1994) 219.
- [91] Z. Zhang, P. E. Wigen e S. S. P. Parkin, J. Appl. Phys. <u>69</u> (1991) 5649.
- [92] R. Gontarz, L. Smardz, B. Symanski e P. Juzikis, J. Magn. Magn. Mater. <u>120</u> (1993) 278.
- [93] T. Yang, F. Pan, e B. X. Liu, Phys. Stat. Sol. (a) <u>142</u> (1994) 443.
- [94] Ping He, Z. S. Shan, J. A. Woollam, e D. J. Sellmyer, J. Appl. Phys. <u>73</u> (1993) 5954.
- [95] Y. Aoki, K. Honda, H. Sato, Y. Kobayashi, T. Ykoyama, e T. Hanyu, J. Magn. Magn. Mater. <u>162</u> (1996) 1-6.
- [96] HandBook of Chemistry and Physics, editado por David R. Lide, 72<sup>a</sup>. edição 1991 -1992, CRC Press - Boston.
- [97] K. Spörl e D. Weller, J. Magn. Magn. Mater. <u>93</u> (1991) 379-385.
- [98] F. J. den Broeder, D. Kuiper, A. P. van de Mosselaer e W. Hoving, Phys. Rev. Lett. <u>60</u> (1988) 2769.
- [99] H. Yamane, Y. Maeno, e M. Kobayashi, J. Appl. Phys. 73 (1993) 334.
- [100] C. Kittel, "Introdução à Física do Estado Sólido", Guanabara Dois, Rio de Janeiro RJ - 1978.
- [101] R. S. Iskhakov, I. V. Gavrishin e L. A. Chekanova, JETP Lett. 63 (1996) 989.

- [102] K. Ounadjela, D. Muller, A. Dinia, A. Arbaoui, P. Panissod e G. Suran, Phys. Rev. B <u>45</u>
   (14) (1992) 7768-7771.
- [103] S. S. P. Parkin, N. More, e K. P. Roche, Phys. Rev. Lett. <u>64</u> (1990) 2304.
- [104] Z. Celinski, B. Heinrich, J. F. Cochran, W. B. Muir, e A. S. Arrot, Phys. Rev. Lett. <u>65</u> (1990) 1156.