



UNIVERSIDADE FEDERAL DE PERNAMBUCO
CENTRO DE CIÊNCIAS EXATAS E DA NATUREZA
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM CIÊNCIA DE MATERIAIS

FREDERICO ALVES REVOREDO JÚNIOR

Estudo da reversão da magnetização em arranjos bidimensionais de nanocascas semi-esféricas de Permalloy

Recife

2019

FREDERICO ALVES REVOREDO JÚNIOR

Estudo da reversão da magnetização em arranjos bidimensionais de nanocascas semi-esféricas de Permalloy

Tese submetida ao Programa de Pós-Graduação em Ciência de Materiais do centro de Ciências Exatas e da Natureza da Universidade Federal de Pernambuco como requisito para obtenção do grau de Doutor em Ciência de Materiais.

Área de concentração: Materiais Não Metálicos.

Orientador: Prof. Eduardo Padrón Hernández.

Co-orientador: Prof. André Galembeck

Recife

2019

Catalogação na fonte
Bibliotecária Arabelly Ascoli CRB4-2068

R454e Revoredo Júnior, Frederico Alves
Estudo da reversão da magnetização em arranjos bidimensionais de nanocascas semi-esféricas de Permalloy / Frederico Alves Revoredo Júnior. – 2019.
93 f.: il., fig., tab.

Orientador: Eduardo Padrón Hernández
Tese (Doutorado) – Universidade Federal de Pernambuco.
CCEN. Ciência de materiais. Recife, 2019.
Inclui referências.

1. Nanoesferas de sílica. 2. Arranjos bidimensionais. 3. Nanocapas magnéticas. 4. Reversão magnetização. I. Padrón Hernández, Eduardo (orientador). II. Título.

620.5 CDD (22. ed.) UFPE-FQ 2019-75

FREDERICO ALVES REVOREDO JUNIOR

**ESTUDO DA REVERSÃO DA MAGNETIZAÇÃO EM ARRANJOS
BIDIMENSIONAIS DE NANOCASCAS SEMI-ESFÉRICAS DE PERMALLOY**

Tese apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Ciência de Materiais da Universidade Federal de Pernambuco, como requisito parcial para a obtenção do título de Doutor em Ciência de Materiais.

Aprovada em: 09/08/2019.

BANCA EXAMINADORA

Profº. Dr. Eduardo Padrón Hernández (Orientador)
Universidade Federal de Pernambuco

Profº. Dr. Edilson Lucena Falcão Filho (Examinador Interno)
Universidade Federal de Pernambuco

Profº. Dr. Joaquim Bonfim Santos Mendes (Examinador Externo)
Universidade Federal de Viçosa

Profª. Dra. Ana Cláudia Vaz de Araújo (Examinadora Externa)
Universidade Federal Rural de Pernambuco

Profº. Dr. Luis Henrique Vilela Leão (Examinador Externo)
Universidade Federal de Pernambuco

AGRADECIMENTOS

Meus sinceros agradecimentos são para meu orientador Eduardo Padrón por toda ajuda, amizade, ensinamentos e oportunidade de participar do grupo de pesquisa. Aos amigos do laboratório, Jurandi, Von, Raudel (manolin), Yuset, Ariel, Claudinho e tantos outros que passaram por aqui e deixaram lembranças, boas lembranças. Agradeço à Virginia, pela atenção, paciência, viderias e reagentes. Agradeço muito ao amigo Sérgio Santos, O microscopista, pela amizade, pela paciência e por todas as medidas. Não posso esquecer dos alunos do departamento de Química fundamental e do Programa de Pós-graduação em Ciências de Materiais, por toda ajuda e reagentes “emprestados”.

Agradeço à agência CAPES por todo apoio financeiro e às agências CNPq, FACEPE e FINEP, que ajudam nosso laboratório para que se mantenham em funcionamento. Agradeço ao Programa de Pós-Graduação em Ciências de Materiais da UFPE. Serei eternamente grato à minha família, nada disso seria possível sem eles.

RESUMO

Nesta Tese, são apresentados resultados experimentais e computacionais acerca das propriedades magnéticas de arranjos de nanocapas hemisféricas de *Permalloy* (*Py*), obtidas usando nanoesferas de sílica como molde. As nanoesferas foram produzidas pelo método de Stöber e os arranjos destas foram obtidos por sedimentação gravimétrica, sobre substrato de vidro. Foram analisados três tipos de amostras com espessuras da capa de *Py* de, 5 nm, 10 nm e 20 nm. A deposição de *Py*, foi realizada por pulverização catódica usando *magnetron Sputtering* sobre as matrizes de nanoesferas de sílica. Com o intuito de se observar a influência da organização das capas sobre suas propriedades magnéticas, foram separados dois grupos: organizado com simetria hexagonal e, desorganizado sem configuração definida. Para todas as amostras foram utilizadas técnicas de caracterização estrutural, magnética e morfológica. A caracterização estrutural de todas as amostras confirmou a fase cristalográfica correspondente à liga Fe-Ni (*Permalloy*). A morfologia das capas foi determinada utilizando a técnica de microscopia eletrônica de varredura, confirmando seus formatos esféricos e a organização das matrizes de nanoesferas de sílica. Picos característicos de Ni e Fe foram observados nos resultados de Espectroscopia de Energia Dispersiva, corroborando com os resultados obtidos por DRX. As medidas magnéticas, obtidas por meio de um magnetômetro de amostra vibrante, mostraram que os laços de histereses variam conforme a espessura de cada amostra. Estes resultados indicam a existência de um eixo de fácil magnetização na direção paralela ao plano do substrato e um eixo duro na direção perpendicular. Os estudos da dependência angular da coercividade mostraram um máximo em 70° medido em relação ao plano do arranjo. Este comportamento está relacionado à energia dipolar das nanocapas, gerando uma orientação intermediária em que se bloqueiam os momentos magnéticos. A reversão da magnetização mostrou que para as duas configurações de arranjos (ordenado e desordenado) há uma dependência com a direção do campo externo e os modos de reversão são um resultado das interações de troca e dipolares. Todos os resultados experimentais estão em concordância com os obtidos por simulação micromagnética.

Palavras-chave: Nanoesferas de sílica. Arranjos bidimensionais. Nanocapas magnéticas. Reversão da magnetização.

ABSTRACT

In this thesis, experimental and computational results are presented on the magnetic properties of Permalloy (Py) hemispherical nanowire arrangements, to obtain the layers were used silica nanospheres as a template. The nanospheres were obtained by the Stöber method and the arrangements of these nanospheres were obtained by gravimetric settling on glass substrate. Three types of samples with layer thicknesses, 5 nm, 10 nm and 20 nm, were analyzed. Py deposition was performed by Sputtering magnetron sputtering on the silica nanospheres matrices. In order to observe the influence of the organization of the covers on their magnetic properties, two groups were separated: Organized with hexagonal symmetry and, disorganized without definite configuration. For all the samples, structural, magnetic and morphological characterization techniques were performed. The structural characterization of all samples confirmed the crystallographic phase corresponding to Fe-Ni alloy (Permalloy). The morphology of the layers was determined using the scanning electron microscopy technique, confirming the spherical shapes of the covers and the organization of silica nanosphere matrices. Peaks related to Ni and Fe ions were observed in results of Dispersive Energy Spectroscopy, corroborating with the results obtained by XRD. The magnetic results, obtained by a vibrating sample magnetometer, showed that the hysteresis loops vary as the thickness of each sample increases, indicating the existence of an axis of easy magnetization in the direction parallel to the plane of the substrate and a axis of difficult magnetization in the perpendicular direction. The studies of the angular dependence of the coercivity showed maximum value in 70 ° in relation to the plane, behavior related to dipole energy, of the nanocapas generating an intermediate orientation in which it blocks the magnetic moments. The magnetization reversal showed that for two arrangement configurations there is a dependence with angular orientation of external field. With the reversion modes being a result of the exchange an dipole interactions. All the experimental results are in agreement with the results obtained by micromagnetic simulation.

Keywords: Silica nanospheres. Two-dimensional arrays. Magnetic nanocaps. Magnetization reversal.

LISTA DE FIGURAS

Figura 1-	Esquema do estado de vórtice em capa ferromagnética submetida a campo magnético externo na direção do plano.	15
Figura 2-	Exemplo de curva de histerese de amostra magnética. São representados campo coercitivo (H_c), magnetização de saturação (M_s) e magnetização remanente (M_r). A distribuição de campo de comutação (SFD - switching field distribution) é definida pela região entre campos em que a magnetização é reduzida a 90% e -90%.	20
Figura 3-	Representação gráfica de parede de domínio tipo Néel. a) sem campo externo. b) com campo externo na direção do plano. c) com campo externo aplicado na direção perpendicular à superfície. H_i é a representação do campo intrínseco.	21
Figura 4-	Curva de magnetização com campo externo aplicado na direção de fácil magnetização a) e de difícil magnetização b)	21
Figura 5-	Representação esquemática da rotação coerente resultante de um campo magnético aplicado com ângulo α em relação ao eixo E. Quando campo externo é nulo a orientação da magnetização M retorna à direção do eixo E.	23
Figura 6-	Representação esquemática do mecanismo de comutação da magnetização para campo externo aplicado ao longo do eixo E.	24
Figura 7-	Formação de domínios provocados pela energia magnetostática. Em (a), há formação uniforme da magnetização com grandes campos dispersos. (b) estado de magnetização de duplo domínio e menos campos dispersos. (c) estrutura de domínio de fechamento de Landau.	25
Figura 8-	Representação da variação angular do campo coercitivo com rotação coerente da magnetização (a) e a variação angular representada pelo modelo Kondorsky (b).	26
Figura 9-	Dependência angular do campo de nucleação e campo coercitivo normalizados para o campo $H_c(0^\circ)$ de nanoesferas de $Nd_2Fe_{14}B$. A	

discrepância com os modelos é influência por fatores considerados por Kronmuller [43].....	28
Figura 10- Processo de catálise básica do TEOS com mecanismos de condensação em meio alcalino.	32
Figura 11- Processo de síntese de nanoesferas de sílica.	33
Figura 12- Tratamento de nanoesferas de sílica suspensas	34
Figura 13- Tratamento de nanoesferas de sílica sedimentada	34
Figura 14- Preparação do substrato	35
Figura 15- Representação esquemática do processo de deposição de nanoesferas de sílica sobre substrato de vidro. A formação das camadas de nanoesferas se inicia no topo do substrato, em decorrência do escoamento e taxa de evaporação de solvente.	36
Figura 16- Representação esquemática de arranjos ordenados (O) de nanoesferas de sílica com capas de <i>Permalloy (Magnetics caps)</i>	36
Figura 17- Representação esquemática de arranjos desordenados (D) de nanoesferas de sílica com capas de <i>Permalloy (Magnetics caps)</i>	37
Figura 18- Representação do espalhamento de raios-X nas camadas entre átomos de um material cristalino.....	38
Figura 19- Micrografias de arranjo ordenado de nanoesferas de sílica	42
Figura 20- micrografias de um arranjo de nanoesferas ordenadas “O” de sílica cobertas com <i>nanocapas</i> de 5 nm de <i>Py</i>	43
Figura 21- micrografias de: a) arranjo desordenado “D” de nanoesferas de sílica e de b) esferas recobertas com nanocapas de 5 nm de <i>Py</i>	43
Figura 22- Espectro de EDS para os arranjos de nanoesferas cobertas com camada de 5 nm de <i>Permalloy</i> . a) (esquerda) arranjo de esferas organizadas “O” e b) (direita) arranjo de esferas desordenadas “D”..	44
Figura 23- Resultados por DRX do conjunto de amostras de esferas ordenadas com espessuras de <i>Py</i> de 5, 10 e 20 nm (O05, O10 e O20). Os resultados sugerem uma dependência do tempo de deposição da liga Fe-Ni com o desaparecimento da fase cristalina FCC (530) e a diminuição da largura de meia altura (FWHM) do pico principal $\approx 44^\circ$ (110).	45
Figura 24- Resultados obtidos por DRX dos arranjos desordenadas (D05, D10 e D20). Resultados sugerem uma dependência forte entre o tempo de	

deposição da liga Fe-Ni com o desaparecimento da fase cristalina FCC (530) e com a diminuição da largura na meia altura do pico (110). ...	46
Figura 25- Intensidades de picos (110), (200), (530) e (211) em função do tempo de deposição da liga FeNi depositada sobre nanoesferas de sílica. .	47
Figura 26- Curvas de magnetização da amostra O5 (5 nm de espessura de <i>Py</i>) normalizada (M/M _s) em função da direção do campo externo aplicado (H). Os ângulos 0°, 30°, 60° e 90° são em relação ao plano do substrato.	48
Figura 27- Curvas de magnetização da amostra O10 (10 nm de espessura) normalizada (M/MS) em função do campo externo aplicado (H) para diferentes ângulos.	50
Figura 28- Curvas de magnetização da amostra O20 (20 nm de espessura) normalizada (M/MS) em função do campo externo aplicado (H) para diferentes ângulos. Os ângulos 0°, 30°, 60° e 90	51
Figura 29- Representação gráfica das intensidades dos campos de saturação (<i>H_s</i>) das amostras O5, O10 e O20. Destaque para amostra O20 com intensidades muitos superior às amostras com menor espessura de <i>Permalloy</i>	52
Figura 30- Curvas de magnetização das amostras O05, O10 e O20 para campo magnético externo aplicado paralelamente ao plano do substrato ($\theta=0^\circ$). As curvas evidenciam que nesta orientação as amostras magnetizam facilmente.	53
Figura 31- Curvas de magnetização das amostras O05, O10 e O20, com 5 nm, 10 nm e 20 nm de espessura de <i>Permalloy</i> , respectivamente. Campo magnético externo aplicado perpendicularmente ao plano do substrato ($\theta=90^\circ$).	55
Figura 32- Curvas de magnetização da amostra D05 (5 nm de espessura) normalizada (M/M _s) em função do campo externo aplicado (H) para diferentes ângulos. Os ângulos 0°, 30°, 60° e 90° são em relação ao plano do substrato.	57
Figura 33- Curvas de magnetização da amostra D10 (10 nm de espessura) normalizada (M/M _s) em função do campo externo aplicado (H) para diferentes ângulos medidos em relação ao plano do substrato.	58

Figura 34-	Curvas de magnetização da amostra D20 (20 nm de espessura) normalizada (M/M_s) em função do campo externo aplicado (H) para diferentes ângulos em relação ao plano do substrato.	60
Figura 35-	Curvas de magnetização das amostras D05, D10 e D20, com 5 nm, 10 nm e 20 nm de espessura de <i>Permalloy</i> com campo magnético aplicado paralelamente ao plano do substrato ($\theta=0^\circ$).....	61
Figura 36-	Curvas de magnetização das amostras D05, D10 e D20, com 5 nm, 10 nm e 20 nm de espessura de <i>Permalloy</i> com campo magnético externo aplicado perpendicularmente ao plano do substrato ($\theta=90^\circ$).....	63
Figura 37-	Dependência angular do campo coercitivo das amostras ordenadas “O”. O ângulo considerado entre o campo externo aplicado (H) e o plano do arranjo (0°).	65
Figura 38-	M_r em função do ângulo θ entre o campo externo aplicado e o plano do substrato (amostras ordenadas). resultados demonstram o eixo de fácil magnetização corresponde ao ângulo de 0°	66
Figura 39-	Dependência angular do campo coercitivo. O ângulo considerado entre o campo externo aplicado (H) e o eixo de fácil magnetização do sistema (0°). O resultado apresenta correspondências com o modelo teórico da coercividade de Kondorsky.	67
Figura 40-	M_r/M_s em função do ângulo θ entre o campo externo aplicado e o plano do substrato. Resultados corroboram a hipótese de que o eixo de fácil magnetização corresponde ao ângulo de 0°	69
Figura 41-	Distribuição do campo de comutação (SFD). Primeira derivada da curva de magnetização no segundo quadrante para ordenadas (O) de diferentes espessuras. Com campo magnético externo aplicado com ângulo de 0° com a superfície da amostra.	70
Figura 42-	Distribuição do campo de comutação (SFD). Primeira derivada da curva de desmagnetização no segundo quadrante para amostras ordenadas (O) de diferentes espessuras. Com campo magnético externo aplicado com ângulo de 90° em relação à superfície da amostra.	72
Figura 43-	Distribuição do campo de comutação (SFD) amostras desorganizadas “D”. Primeira derivada da curva de magnetização no segundo quadrante para amostras de diferentes espessuras. Com campo	

	magnético externo aplicado com ângulo de 0° com a superfície da amostra.....	73
Figura 44-	Distribuição do campo de comutação (SFD). Primeira derivada da curva de magnetização no segundo quadrante para ordenadas (O) de diferentes espessuras. Com campo magnético externo aplicado com ângulo de 90° com a superfície da amostra.	74
Figura 45-	Arranjo hexagonal bidimensional formado por dezesseis <i>nanocaps</i> de Py. Com campo magnético externo aplicado em diferentes direções em relação ao plano do arranjo.....	75
Figura 46-	Curvas de histereses para <i>nanocapas</i> de <i>Permalloy</i> ordenados, para campos aplicado na direção paralela ao plano do arranjo e perpendicular.	76
Figura 47-	Dependência angular da coercividade para arranjos de nanocapas hemisféricas de <i>Permalloy</i> . a) Resultados experimentais b) Simulação micromagnética.....	77
Figura 48-	Arranjo bidimensional com empacotamento hexagonal de nanocapas esférica de <i>Permalloy</i> . O campo magnético aplicado em diferentes direções em relação ao plano do arranjo com representação panorâmica (a) e vista lateral para raio de nanoesferas de 85 nm e espessuras das camadas magnética de 5 nm e 10 nm de espessura e a discretização da geometria representada na Figura 48(b).....	78
Figura 49-	Curvas de magnetização calculadas para arranjos de nanocapas de <i>Permalloy</i> em função do ângulo do campo. a) Curvas correspondentes a nanocapas hemisféricas de 5 nm de espessura. b) Curvas calculadas no arranjo de nanocapas de 10 nm de espessura.....	79
Figura 50-	Dependência angular da remanência em arranjos de nanocapas de permalloy com 5 nm e 10 nm de espessura.....	79
Figura 51-	Dependência angular da coercividade de nanocapas de 5 e 10 nm de espessura.	80

LISTA DE TABELAS

Tabela 1-	Nomenclatura dos arranjos ordenados (O) e desordenados (D) de nanoesferas de sílica recobertas com <i>Py</i>	37
Tabela 2-	Intensidade de campo de saturação e do campo coercitivo observados em ângulos de 0°, 30°, 60° e 90° para os arranjos ordenados de nanocascas de <i>Py</i>	49
Tabela 3-	Intensidades da magnetização de saturação (Ms), magnetização remanente (Mr), coeficiente de orientação (Co) e coercividade (Hc) das amostras O05, O10 e O20 para campo externo aplicado paralelamente à superfície do arranjo (0°).....	54
Tabela 4-	Intensidades da magnetização de saturação, campo de anisotropia, constante de anisotropia efetiva uniaxial e limite de interação de troca, das amostras O05, O10 e O20.....	56
Tabela 5-	Intensidade do campo de saturação e do campo coercitivo observados em ângulos de 0°, 30°, 60° e 90°. A comparação entre amostras indica aumento do campo de saturação com o crescimento da espessura de <i>Permalloy</i> , sugerindo o surgimento de forte anisotropia uniaxial a partir de D10 (90°) e D20 (0° a 90°) dando indícios de uma mudança no modo de reversão provocado pelo surgimento de novas paredes de domínio.	59
Tabela 6-	Intensidade da magnetização de saturação (Ms), magnetização remanente (Mr), coeficiente de orientação (Co) e coercividade (Hc) das amostras D05, D10 e D20 submetidas a campo externo aplicado paralelamente à superfície (0°)	62
Tabela 7-	Intensidades de magnetização de saturação, campo de anisotropia, constante de anisotropia efetiva uniaxial e limite de interação de troca das amostras D05, D10 e D20, respectivamente.	64
Tabela 8-	Variação percentual relativa entre valores de coercividade comparando as amostras organizadas (“O”) e desorganizadas (“D”) de mesma espessura.	68
Tabela 9-	Valores do campo de desmagnetização para o estado saturado obtido pela Ms para diferentes espessuras de nanocapas.	76

SUMÁRIO

1	INTRODUÇÃO.....	14
2	PROPRIEDADES MAGNÉTICAS DE MATERIAIS.....	17
3	MAGNETISMO DE SUPERFÍCIES ESFÉRICAS	29
4	MATERIAIS E MÉTODOS	33
4.1	SÍNTESE DE NANOESFERAS DE SÍLICA	33
4.2	FABRICAÇÃO DE ARRANJOS DE NANOESFERAS DE SÍLICA (MATRIZES 2D) DEPOSITADAS EM SUBSTRATO DE VIDRO.....	35
4.3	CARACTERIZAÇÃO POR DIFRAÇÃO DE RAIOS-X (DRX)	38
4.4	MICROSCOPIA ELETRÔNICA DE VARREDURA (MEV)	39
4.5	MAGNETOMETRIA DE AMOSTRA VIBRANTE (VSM).....	40
5	RESULTADOS E DISCUSSÃO.....	42
5.1	MICROSCOPIA ELETRÔNICA DE VARREDURA DE ARRANJOS 2D	42
5.2	CARACTERIZAÇÃO POR DRX DE ARRANJOS ORDENADOS E DESORDENADOS DE NANOCAPAS DE PY	44
5.3	ESTUDO MAGNÉTICO COMPARATIVO DE ARRANJOS ORDENADOS E DESORDENADOS DE NANOCAPAS DE PY	48
5.3.1	Curvas de magnetização em função do ângulo	48
5.3.2	Dependência angular da coercividade e da remanência	64
5.3.3	Switching Field (SFD) em função da espessura e do ordenamento.....	70
5.4	COMPARAÇÕES DE RESULTADOS EXPERIMENTAIS E CALCULADOS POR SIMULAÇÃO.....	74
6	CONCLUSÕES	81
7	PERSPECTIVAS	82
	REFERÊNCIAS	83

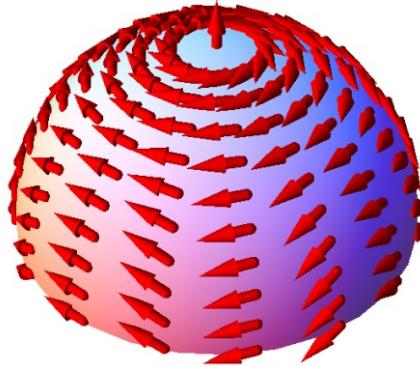
1 INTRODUÇÃO

As nanoestruturas são elementos presentes em diversas tecnologias atuais, aplicam-se em sistemas magnéticos microeletrônicos, spintrônicos e em gravação magnética [1] [2]. As propriedades únicas das nanoestruturas despertaram o interesse de todas as áreas da ciência e tecnologia, sendo possível atualmente a engenharia de sistemas nanoestruturados e o controle de suas propriedades físicas. Estes sistemas, são candidatos promissores na área de materiais, medicina, eletrônica e magnetismo [3]. Especificamente sistemas magnéticos de geometrias curvas despertaram interesse científico-tecnológico devido às suas aplicações em dispositivos de memória de acesso aleatório e mídias de gravação de alta densidade [2] [4]. Por isso, os efeitos topológicos passaram a determinar e ajustar as propriedades magnéticas dos materiais, sendo os vórtices magnéticos uma das características mais relevantes. Os vórtices magnéticos estáveis, em camadas magnéticas esféricas e estruturadas em arranjos compactados, são de maior interesse [5]. O vórtice magnético pode ser descrito por duas grandezas: a quiralidade, associada com o sentido da rotação e a polarização, associada com o sentido de magnetização no centro do vórtice. A Figura 1 mostra um esquema de um vórtice com as setas representando o sentido em que apontam os momentos magnéticos.

De modo geral, qualquer sistema tende a ocupar um mínimo de energia. Em sistemas ferromagnéticos, a energia livre se dá pela combinação de energia Zeeman, energia de troca, magnetostática e magnetocristalina [6]. O mínimo global simultaneamente para todos os termos energéticos é improvável, contudo, o sistema tende a apresentar um mínimo local de energia. Isto implica, por exemplo, em formações de domínios magnéticos para minimização da energia magnetostática (em sistemas ferromagnéticos). No entanto, se o tamanho da amostra for diminuído à escala nanométrica a formação de multidomínios torna-se inviável, resultando na formação de um único domínio [6]. Streubel et. al. [7] realizaram um estudo que envolve a influência da espessura e do raio de camadas de *Permalloy* depositado sobre nanoesferas não magnéticas. Nele, pode-se observar a forte dependência dos parâmetros do material, como o tamanho das nanoesferas e a geometria de toda a estrutura. Ainda pode-se observar que capas esféricas ferromagnéticas podem desenvolver estados de único domínio, de vórtice e estado “onion” [8].

Em sistemas nanoestruturados como matrizes magnéticas formadas por objetos de geometria esférica, interações de troca e dipolares têm sido objeto de numerosos estudos, em parte motivados pelos estados magnéticos “raros”. Alguns autores, por meio de estudos da reversão da magnetização, observaram que o modo magnético de vórtice é o mais estável nesta geometria [9]. A criação e controle da geometria é fundamental para aplicação em gravação magnética e memória, assim como portas lógica [2] [10].

Figura 1- Esquema do estado de vórtice em capa ferromagnética submetida a campo magnético externo na direção do plano.



Fonte: [11].

Foi observado, após diversos estudos, que o controle da orientação dos momentos magnéticos ao longo da superfície, e da polaridade dos vórtices, dependem do controle do campo [12] [8]. Ainda mais recente, foi ressaltada a influência da curvatura sobre a formação dos vórtices. Resultados mostraram que as interações magnéticas apresentam alterações significativas quando comparadas com inversões magnéticas em sistemas planares. Em sistemas magnéticos curvos os momentos magnéticos apresentam uma dinâmica diferente dos sistemas planares [7] [13] [8]. Mesmo com o recente interesse, existem poucos estudos experimentais sobre o magnetismo de arranjo de capas ferromagnéticas. A maior parte dos trabalhos utilizam simulação e estudos micromagnéticos analíticos. Streubel, et al [7], por exemplo, realizaram um estudo sobre o equilíbrio de estados magnéticos de capas de *Permalloy* com diversos diâmetros (50 nm a 800 nm). As matrizes utilizadas como moldes foram nanoesferas de sílica que receberam *Permalloy* pelo método *Sputtering* [14]. Estudos da dependência angular da magnetização são frequentemente utilizados para entender os modos de reversão da magnetização em diversas estruturas.

Esta tese foi organizada em duas partes. Sendo a primeira, a síntese de nanoesferas de sílica com diâmetro médio de 70 nm e 80 nm, usando o método de Stöber [15] e a posterior organização das nanoesferas sobre lamínulas de vidro por meio da técnica de auto-organização por *dip-coating*. Nanoesferas de sílica são utilizadas devido ao seu tamanho uniforme, alto controle de tamanhos e simplicidade na síntese [16] [17]. A rede bidimensional auto organizada de nanoesferas serviu como base para deposição da camada de *Permalloy*, sendo esta, a segunda etapa do trabalho. A deposição da camada magnética, pelo método *Sputtering* foi feita com espessuras de 5 nm, 10 nm e 20 nm. O intuito é estudar as modificações magnéticas sofridas pelas variações da espessura da camada ferromagnética de *Permalloy*. Além disso, também foi produzido um arranjo de nanoesferas sem uma ordem definida, a fim de se observar a influência da desordem das nanocapas ferromagnéticas nas propriedades magnéticas. A investigação magnética foi feita através de estudos experimentais e por simulação, baseados na análise da dependência angular da coercividade em arranjos de nanocapas ferromagnéticas.

Os resultados desta pesquisa serão apresentados em capítulos. O primeiro, mostra uma breve introdução sobre magnetismo de capas hemisféricas ferromagnéticas e suas propriedades, que serviram de base para a análise dos resultados. No segundo capítulo se faz uma revisão sobre as energias magnéticas e as influências sobre propriedades magnéticas de sistemas ferromagnéticos curvos e seus modos de reversão. Os capítulos 3 e 4 descrevem alguns modos de reversão de magnetização, suas origens e características assim como sua relevância na dependência angular da magnetização. Também são apresentados dois modelos teóricos: o modelo de *Kondorsky* e modelo de *Stoner-Wohlfarth*. No capítulo 5 são apresentados detalhes do método de preparação das amostras e da técnica de *Sputtering* utilizada para deposição do *Permalloy*. No capítulo 6, são discutidos os resultados da caracterização das nanocapas. Por fim, as conclusões gerais (capítulo 7) sobre os resultados obtidos e sugestões (perspectivas) para trabalhos posteriores (capítulo 8).

2 PROPRIEDADES MAGNÉTICAS DE MATERIAIS

Naturalmente, os sistemas tendem ao mínimo de energia. No caso de materiais magnéticos a energia livre está distribuída geralmente em energia de troca, energia Zeeman, energia magnetocristalina e energia magnetostática. Contudo, estas contribuições não atingem seus estados mínimos concomitantemente; o que se observa são mínimos locais que garantem um estado magnético estável, formado pelas contribuições energéticas mencionadas. Deste modo, é importante entender como os vários termos da energia estão influenciando o estado energético geral [18].

No entanto, não são todos os materiais que apresentam comportamentos iguais em todas as direções. Esta característica é conhecida como anisotropia e para o caso de interações magnéticas, anisotropia magnética. Fisicamente, a anisotropia magnética pode ser agrupada de duas formas, aquelas provocadas pelo acoplamento dipolar (anisotropia de forma e superfície) e as determinadas pelo acoplamento spin-órbita (anisotropia magnetocristalina e anisotropia magnetoelástica).

A energia de troca, segundo o modelo de Heisenberg, pode ser escrita como:

$$E_{trc} = -2 \sum_{i,j=1}^N J_{ij} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j, \quad (2-1)$$

onde J_{ij} é a integral de troca e \vec{S}_i, \vec{S}_j são os momentos de spin dos átomos i e j vizinhos, N é o número de spins que formam o sistema. Para valores de J_{ij} positivo, há tendência de alinhamento paralelo dos spins, característica de materiais ferromagnéticos, enquanto o alinhamento antiparalelo (J_{ij} negativo) é característica antiferromagnética e ferrimagnética. Deste modo, em modelos ferromagnéticos, a magnetização ocorre homogeneamente ao longo de uma direção, minimizando a energia de troca [19].

A equação (2-1) pode ser reescrita numa escala maior, substituindo os spins pela magnetização local \vec{M} em cada ponto e integrando-os no volume de toda amostra [6]:

$$E_{trc} = A \int_V \nabla M^2 dV. \quad (2-2)$$

Na equação (2-2), A é a constante de troca, definida pela equação (2-3):

$$A = \frac{JS^2c}{d}, \quad (2-3)$$

que é dependente da integral de troca J . Para o caso do *Permalloy*, o valor aproximado é $A = 1,3 \times 10^{-11}$ (J/m) [6], [20].

A energia magnetocristalina (E_k) é originada pela interação spin-órbita dos elétrons que originam o magnetismo no material com o campo cristalino. As órbitas dos

elétrons localizados estão ligadas à estrutura cristalina e a interação com os spins responsáveis pelo magnetismo, facilitando o alinhamento dos spins ao longo de eixos cristalinos bem definidos. Nesse sentido, a simetria da estrutura cristalina é determinante para esta contribuição. Fica claro que existem direções nas quais os materiais magnéticos cristalinos têm maior facilidade de se magnetizar, atingindo o menor nível de energia magnetocristalina. A dependência angular que define o tipo de simetria da rede cristalina pode ser descrita em forma genérica por $f(\theta, \phi)$ [6]. A energia magnetocristalina poderá então ser expressa na forma:

$$E_k = \int_V K f(\theta, \phi) dV, \quad (2-4)$$

onde K é a constante de anisotropia magnetocristalina do material (erg/cm^3) obtida empiricamente.

De maneira geral, a energia magnetocristalina pode ser apresentada por uma expansão em série de potência que leva em consideração a simetria da estrutura cristalina e fatores experimentais. Para sistemas cristalinos hexagonais, esta energia pode ser simplificada dependendo apenas do ângulo entre a magnetização do material e o eixo de simetria uniaxial da célula unitária, comumente chamado de eixo c . Como há simetria em relação à base da célula unitária, suas contribuições são pequenas e por isso estes termos são desprezados. Para estruturas com anisotropia magnetocristalina uniaxial a energia pode ser descrita por meio de [21]:

$$E_k = \int_V (K_{u1} \sin^2(\phi) + K_{u2} \sin^4(\phi) + \dots) dV, \quad (2-5)$$

onde ϕ é o ângulo entre a direção da magnetização e o eixo de fácil magnetização.

Para pequenos ângulos pode-se aproximar:

$$E_k = \int_V K_{u1} \sin^2 \phi dV \approx \int_V (K_{u1} \phi^2) dV. \quad (2-6)$$

Neste caso, a energia magnetocristalina tende a restituir a magnetização para a direção do eixo mais fácil, produzindo um torque que pode ser comparado ao imposto por um campo magnético efetivo aplicado à amostra, chamado de campo de anisotropia (H_k) [22]. Pode-se reescrever a equação agora na forma:

$$E_k = - \int_V M_s H_k \cos \phi dV \approx - M_s H_k \left(1 - \frac{1}{2} \phi^2\right), \quad (2-7)$$

onde M_s é a magnetização de saturação que pode ser atingida com campo magnético externo intenso. Comparando as equações (2-6) e (2-7) é possível escrever a constante de anisotropia uniaxial:

$$K_u = \frac{1}{2} M_s H_k. \quad (2-8)$$

Para materiais bidimensionais, como é o caso de filmes finos e superfícies nanométricas de geometria curva, costuma-se usar a constante de anisotropia efetiva, que é dependente das contribuições volumétrica e de superfície, K_V e K_s , respectivamente [23] [24]:

$$K_{ef} = K_V + \frac{2}{t} K_s, \quad (2-9)$$

com t sendo a espessura do filme. Para $K_{ef} > 0$ a anisotropia orienta os momentos para a direção perpendicular à superfície do filme e para $K_{ef} < 0$, a anisotropia favorece a direção paralela à superfície.

A energia Zeeman está diretamente ligada ao campo magnético externo aplicado e ao momento magnético total das amostras. A interação com o campo externo pode gerar curvas características para cada tipo de material. A energia associada à interação magnética das estruturas com o campo magnético externo pode ser apresentada da seguinte forma [25]:

$$E_Z = \int_V \vec{H}_{ext} \cdot \vec{M} dV. \quad (2-10)$$

O material ao ser magnetizado, passa a apresentar momentos magnéticos descompensados nas suas superfícies, dando lugar a um campo na direção oposta ao campo externo aplicado. Este novo campo é dependente do número de momentos descompensados por unidade de área e é denominado campo desmagnetizante (H_d) [23]. Para o caso de uma amostra com formato elipsoidal completamente saturada a energia desmagnetizante (E_d) é dada por [26]:

$$E_d = \frac{1}{2} \int_V \vec{M} \cdot \vec{H}_d dV = -\frac{1}{2} \mu_0 H_d M, \quad (2-11)$$

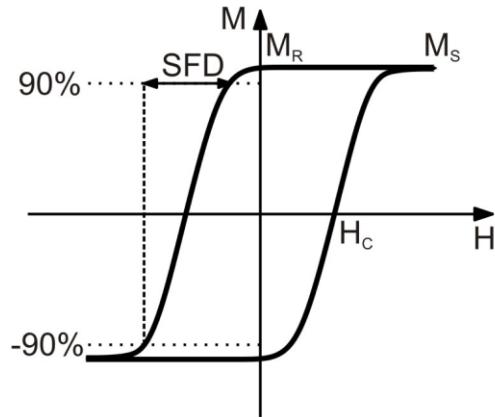
onde o fator $\frac{1}{2}$ garante que o resultado da energia desmagnetizante considere apenas uma vez a interação entre cada par de dipolos. Para amostras com formatos de baixa simetria a configuração dos momentos é complexa, sendo necessário o uso de métodos numéricos para calcular esta contribuição [27].

O processo de reversão de magnetização dar-se pela completa inversão da magnetização iniciando no estado de saturação. Geralmente ocorre ao aplicar campo magnético externo com intensidade suficiente para alinhar a magnetização na direção oposta à inicial. Quando o campo externo é aplicado, a resposta magnética do material ferromagnético em função do campo, apresenta um comportamento de histerese que é derivado da formação de múltiplos mínimos de energia.

As curvas de histereses magnéticas são exibidas em um gráfico de magnetização versus o campo magnético externo aplicado. A Figura 2 apresenta um exemplo de

curva de histerese. Quando o campo externo é aplicado com intensidade suficientemente forte, a magnetização tenderá a se alinhar a ponto de atingir a saturação (M_s). Com a diminuição do campo até zero poderá existir uma magnetização remanente (M_r) positiva, sendo necessário aplicar campo externo negativo para levar a magnetização a zero. Este campo é chamado de campo coercitivo (H_c), seu valor permite classificar materiais magnéticos. Em casos específicos, a magnetização pode apresentar um “salto”, ou mudança brusca na direção da magnetização, chamado de campo de comutação. Esta grandeza é definida pela derivada da magnetização (M) no intervalo de campo em que seu valor está entre 90% e -90% de M_s , como mostra a Figura 2.

Figura 2- Exemplo de curva de histerese de amostra magnética. São representados campo coercitivo (H_c), magnetização de saturação (M_s) e magnetização remanente (M_r). A distribuição de campo de comutação (SFD - switching field distribution) é definida pela região entre campos em que a magnetização é reduzida a 90% e -90%.

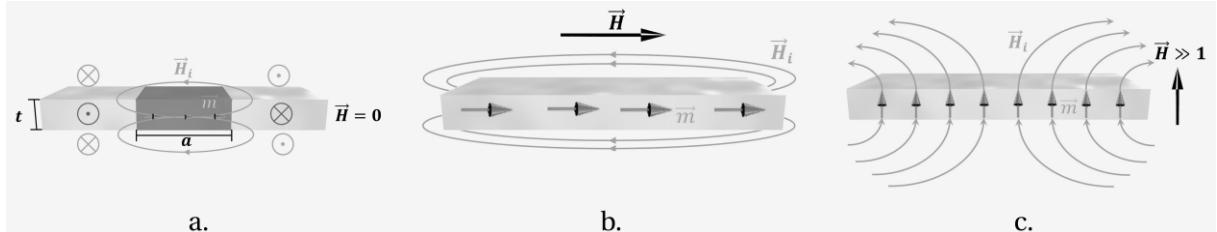


Fonte: [28]

O campo magnético aplicado a um filme ferromagnético, pode provocar mudanças nas direções da magnetização, nos domínios e também a movimentação de paredes. Em amostras de filmes finos com paredes de domínio do tipo Néel (vetor magnetização gira perpendicularmente à parede), um campo \vec{H} pouco intenso e paralelo à superfície, será suficiente para desfazer a estrutura de paredes e alinhar os momentos (Figura 3a e 3b). Contudo, aplicando um campo \vec{H} na direção perpendicular à superfície, será necessária maior intensidade portanto, mais energia Zeeman para

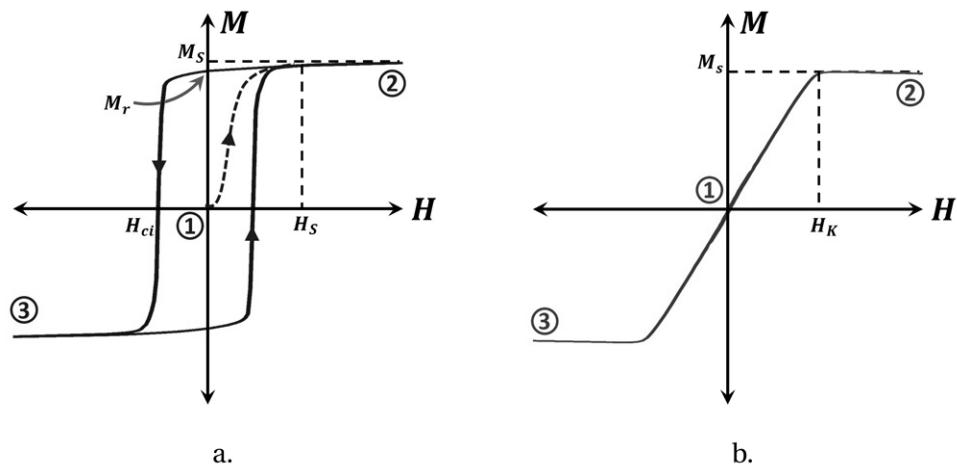
alinhar os momentos magnéticos na direção do campo. Por isso deve ser aplicado um campo com intensidade maior para provocar o alinhamento total (Figura 3c).

Figura 3- Representação gráfica de parede de domínio tipo Néel. a) sem campo externo. b) com campo externo na direção do plano. c) com campo externo aplicado na direção perpendicular à superfície. \vec{H}_i é a representação do campo intrínseco.



Fonte: [29]

Figura 4- Curva de magnetização com campo externo aplicado na direção de fácil magnetização a) e de difícil magnetização b)



Fonte: [29]

Como resultado do movimento de paredes de domínio obtém-se curvas de magnetização semelhantes às mostradas na Figura 4. Quando o campo externo é aplicado na direção do eixo de fácil magnetização, a saturação é atingida em campos relativamente baixos (H_s) (Figura 4a). No entanto, se o campo externo for aplicado perpendicularmente ao eixo de fácil magnetização, a saturação só será atingida em altos campos, cujo valor é denominado de campo de anisotropia (H_k) (Figura 4b). A intensidade de H_k é determinada experimentalmente e a partir dele pode-se

determinar, com boa aproximação, a constante de anisotropia uniaxial (K_u – equação (2-8)), bem como a constante de anisotropia efetiva definida por [30]:

$$K_{ef} = \frac{1}{2} M_s H_k - \frac{1}{2} M_s^2. \quad (2-12)$$

Em campos aplicados na direção do eixo de fácil magnetização, a amostra poderá manter a orientação da sua magnetização mesmo com $\vec{H} = \vec{0}$, mantendo o alinhamento dos momentos com o eixo de fácil. A rotação dos momentos magnéticos depende do ângulo entre M_r e M_s , ou seja, se há uma diferença na orientação da magnetização remanente e a orientação da magnetização máxima atingida pela amostra, os momentos magnéticos rotacionam ao passarem de M_r para M_s . Quanto maior for a diferença entre a direção da magnetização remanente e da magnetização de saturação maior será o ângulo, entre a direção do eixo de fácil magnetização e o campo externo aplicado. Portanto, é possível definir o coeficiente de orientação dos momentos, c_o , dado por [26]:

$$c_o = \frac{M_r}{M_s} = \cos \theta. \quad (2-13)$$

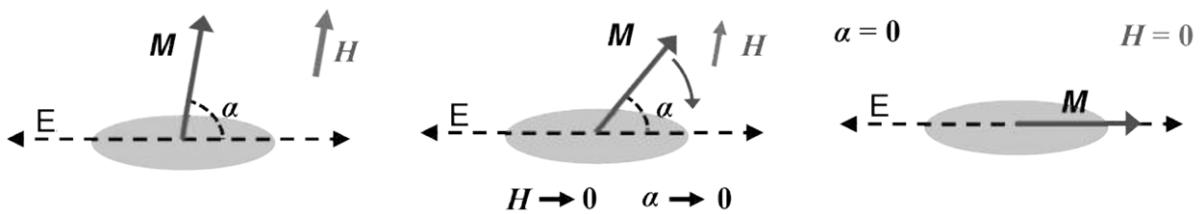
O valor de $c_o \leq 1$ sempre e representa o percentual de momentos magnéticos em remanência. Em casos de campos externos aplicados perpendicularmente ao plano de um filme, a remanência é nula e a amostra se desmagnetiza facilmente com a retirada do campo externo. Deste modo, o ciclo de histerese pode ser explicado com a visão voltada para a rotação dos momentos magnéticos. Lembrando que os filmes magnéticos só poderão ser desmagnetizados quando o campo externo for aplicado na direção contrária (H_c). Com valores maiores que H_c , a amostra se magnetiza em sentido oposto ao inicial, até atingir a saturação (negativa). Quando H é suficientemente alto o processo poderá ser repetido, invertendo novamente o sentido do campo aplicado (sentido positivo) fechando assim o ciclo de histerese, Figura 4 [31].

O ciclo de histerese pode ser resumido em duas partes. Primeiro, o campo externo provoca o movimento das paredes de domínios para as bordas da amostra, aumentando o tamanho do domínio com direção e sentido do campo aplicado. Segundo, caso existam domínios magnéticos desalinhados com o campo externo, os momentos se alinharão com o campo deixando o eixo de fácil magnetização. Em ambos os casos os momentos magnéticos não voltarão às configurações anteriores quando $\vec{H} = 0$. Apesar de que as curvas de histerese e o processo de inversão de

magnetização sejam parte de características importantes sobre as propriedades magnéticas dos materiais, na maioria dos casos é impossível prever macroscopicamente os movimentos dos domínios magnéticos e os processos de reversão. Por outro lado, o perfil da dependência angular de algumas grandezas pode dar indícios importantes sobre a forma como os momentos se movimentam dentro do material.

O mecanismo de rotação coerente pode ser descrito por um vetor de magnetização resultante rotacionando devido à competição entre as energias de anisotropia e Zeeman. A Figura 5 é uma representação esquemática do processo de rotação coerente da magnetização. Nesta figura o campo magnético externo é aplicado a $\beta=70^\circ$ em relação ao eixo E. Para campos de alta intensidade a magnetização se alinhará com o campo ($\alpha \approx \beta$). À medida que a intensidade do campo externo diminui, o torque do campo de anisotropia passará a ser cada vez maior que o torque provocado pelo campo aplicado, tornando a trazer a magnetização para a direção do eixo E.

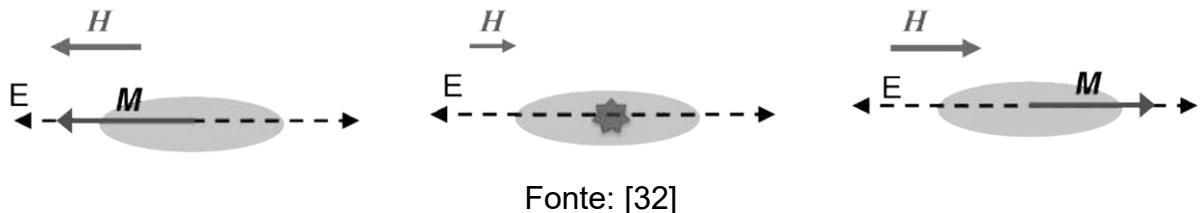
Figura 5- Representação esquemática da rotação coerente resultante de um campo magnético aplicado com ângulo α em relação ao eixo E. Quando campo externo é nulo a orientação da magnetização M retorna à direção do eixo E.



Fonte: [32]

A comutação ocorre pelo salto da magnetização de um mínimo local de energia para outro, em uma determinada intensidade de campo magnético aplicado. Neste processo a magnetização, passa por um mínimo, não passando por outras orientações intermediárias, levando a uma descontinuidade na dependência $M(H)$. Este mecanismo de reversão está representado graficamente Figura 6.

Figura 6- Representação esquemática do mecanismo de comutação da magnetização para campo externo aplicado ao longo do eixo E.



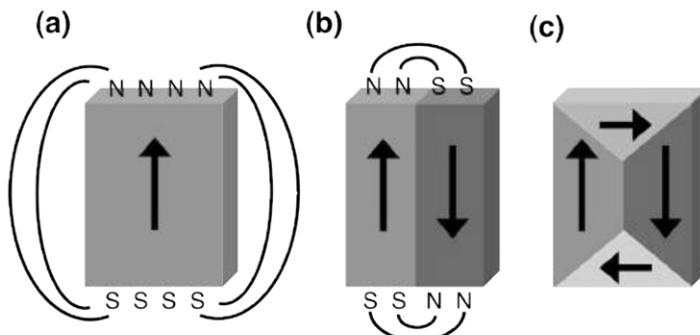
Observe na Figura 6 (de esquerda à direita) que em dado momento a magnetização está alinhada com o campo magnético externo (H) ao longo do eixo E. Em outro momento, quando o campo magnético é aplicado no sentido oposto com intensidade suficiente, a magnetização tem sua direção modificada abruptamente. Este modo de reversão da magnetização é irreversível e mesmo que o campo externo seja aplicado novamente na direção inicial a magnetização não retornará da mesma forma, para a direção inicial. Isto se dá porque a energia livre tem vários mínimos locais e por isso o sistema não alcança um equilíbrio até uma certa intensidade de campo aplicado.

Para materiais ferromagnéticos, a energia de troca garante que todos os momentos magnéticos estejam sempre alinhados na mesma direção. No entanto, há regiões com orientações diferentes da magnetização. As regiões com orientação magnética uniforme são chamadas de domínios magnéticos e estes são separados por fronteiras ou paredes de domínio. Em geral, os domínios são o resultado do efeito da energia magnetostática [33]. Se as energias de troca e de anisotropia fossem as únicas presentes nos materiais magnéticos, possivelmente, todos os momentos magnéticos estariam alinhados. A curta distância, a energia de troca domina e produz alinhamento paralelo da magnetização. A anisotropia provoca o efeito adicional de favorecer o alinhamento em direções preferenciais. Contudo, materiais ferromagnéticos têm regiões com diferentes orientações de magnetização coexistindo, os domínios magnéticos. A existência de domínios é devido à energia magnetostática que em larga escala favorece a formação de configurações de magnetização global próxima de zero.

A Figura 7a, representa determinado momento homogêneo, em que a magnetização é uniforme na direção de um determinado eixo E. Contudo, grande parte da energia magnética é perdida aumentando a contribuição da energia

magnetostática. A minimização desta energia ocorre quando há diminuição do campo perdido (dispersivo) para fora do material através da formação de domínios magnéticos com orientações opostas (Figura 7b). Ainda assim a configuração antiparalela exige energias de interação de troca e de anisotropia, pois o desalinhamento dos momentos magnéticos dentro das paredes de domínio requer um custo energético devido à interação de troca e à anisotropia. Uma maior diminuição da energia magnetostática pode ser alcançada (Figura 7c) com a formação de domínios com orientação que favorecem o fechamento das linhas de campo dentro do material. Neste caso as energias de troca e de anisotropia aumentam nas regiões em que se encontram as paredes de domínio. De modo geral, a formação de domínios durante uma reversão da magnetização é gerada por uma competição de energia de troca, energia de anisotropia, energia magnetostática e energia Zeeman. A energia total é dependente da geometria da amostra e do eixo de fácil magnetização, então a formação de domínios está ligada à geometria e estrutura cristalina do material [34].

Figura 7- Formação de domínios provocados pela energia magnetostática. Em (a), há formação uniforme da magnetização com grandes campos dispersos. (b) estado de magnetização de duplo domínio e menos campos dispersos. (c) estrutura de domínio de fechamento de Landau.

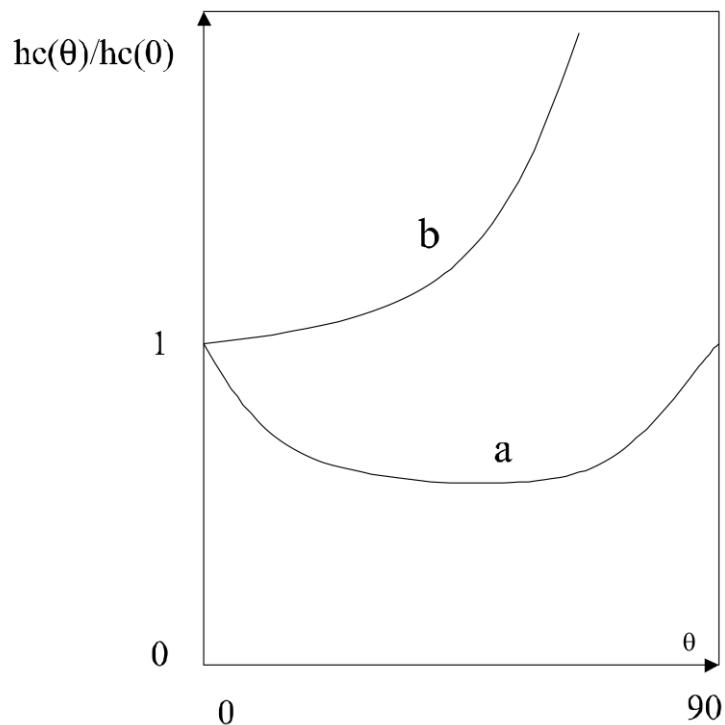


Fonte: [32]

O modelo de Kondorsky descreve a movimentação de domínios magnéticos que são “empurrados” por um campo externo. Sistemas com momentos confinados (nanoestruturas e filmes finos) podem apresentar propriedades magnéticas únicas que diferem de sistemas *bulk*. O modelo mais simples para esses casos é o mecanismo de rotação coerente (Figura 8a), em que a partícula monodomínio tem seu campo coercitivo controlado pela anisotropia magnetocrystalina [35]. Presume-se que a coercividade deveria ser igual ao campo de anisotropia, no entanto a

coercividade experimental é menor. Isto é explicado porque o processo de reversão de magnetização nunca ocorre pelo mecanismo de único domínio. Sempre existem defeitos microestruturais que provocam a formação de paredes de domínio que se propagam em campos menores que o campo de anisotropia, minimizando a energia do sistema [34].

Figura 8- Representação da variação angular do campo coercitivo com rotação coerente da magnetização (a) e a variação angular representada pelo modelo Kondorsky (b).



Fonte: [36].

O método de Kondorsky juntamente com a dependência angular do campo de nucleação permite prever o comportamento dos momentos magnéticos quando submetidos a campos externos em direções ainda não analisadas (Figura 8b). Isto é feito por meio da curva de magnetização no eixo fácil e considerando constante a susceptibilidade transversal. O modelo de Kondorsky juntamente com a dependência angular da coercividade, permite desenvolver um modelo que prevê o comportamento magnético do material para direções arbitrárias [36].

Dentre os modelos mais simples, o de Stoner-Wohlfarth pode ser considerado o mais relevante [37], isto porque descreve com boa aproximação a reversão da magnetização para um conjunto de partículas com magnetização uniforme. Torna-se ainda mais proeminente em partículas nanométricas, pois seu pequeno tamanho condiciona a configuração monodomínio. Deste modo, o modelo de Stoner-Wohlfarth (SW) descreve com ótima aproximação a reversão da magnetização de partículas pequenas. A partir da curva de histerese com campo magnético aplicado a 0° em relação ao eixo de fácil magnetização, o campo de nucleação, segundo o modelo de Stoner-Wohlfarth, é dado por:

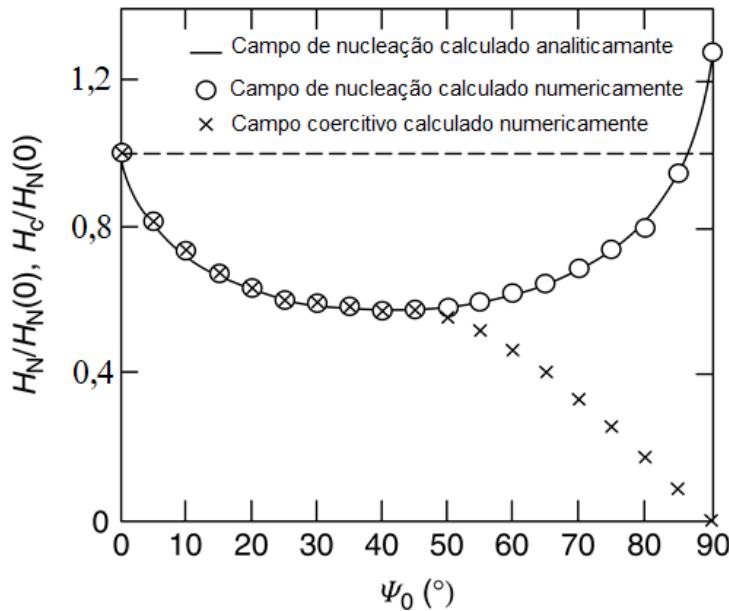
$$H_{ext} = H_N = \frac{2K_u}{\mu_0 M_S} + (N_{\perp} - N_{\parallel})M_S, \quad (2-14)$$

N_{\perp} e N_{\parallel} são os fatores desmagnetizantes perpendicular e paralelo de cada partícula elipsoidal, respectivamente. K_u é a constante de anisotropia uniaxial.

Mesmo com o bom ajuste das equações de Stoner-Wohlfarth, para diversos sistemas ainda há uma diferença com os resultados experimentais. O primeiro a relatar esta diferença, foi W. Brown (1945) [38], que percebeu incongruências, em relação aos campos de nucleação, em um fator de 3 a 4 vezes menor que o apontado nos modelos analíticos. Esta diferença só foi explicada 40 anos depois por Kronmuller, que percebeu que os campos de desmagnetização e as anisotropias são reduzidos nas superfícies das partículas gerando estas discrepâncias. Kronmuller, complementou o modelo de Stoner-Wohlfarth acrescentando uma segunda constante de anisotropia. Isto porque o modelo de Stoner-Wohlfarth toma como base um conjunto de partículas com único domínio, com modo de reversão por rotação coerente. Originalmente, foi considerado que não havia interações magnéticas entre as partículas e anisotropia uniaxial. Estas considerações podem ser ajustadas, como mostrou Kronmuller e outros [39], [38], [40], [41]. No entanto, introduzir interações acrescenta complexidade computacional.

A Figura 9 mostra a dependência angular do campo de nucleação para esferas de Nd₂Fe₁₄B conforme o modelo proposto por Kronmuller. No gráfico é possível ver a diferença entre o campo de nucleação e o campo coercitivo que coincide somente até 45°. Para campo aplicado acima desse ângulo a coercividade diminui enquanto o campo de nucleação aumenta. A curva H_N é devida ao segundo termo da constante de anisotropia [42].

Figura 9- Dependência angular do campo de nucleação e campo coercitivo normalizados para o campo $H_c(0^\circ)$ de nanoesferas de $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$. A discrepância com os modelos é influência por fatores considerados por Kronmuller [43].



Fonte: [42]

A queda do campo coercitivo e do campo de nucleação para amostra estudada é representada com o estudo da dependência angular na Figura 9 ocorrem até ângulos próximos a 40° . Com o aumento da inclinação do campo magnético aplicado, o campo de nucleação volta a aumentar até retornar ao seu valor inicial, enquanto o campo coercitivo diminui. Outros modelos de comutação da magnetização foram desenvolvidos: Modelo Becker-Doring [44], modelo Kersten-Néel [45] e muitos outros [46], [47], [48].

3 MAGNETISMO DE SUPERFÍCIES ESFÉRICAS

O avanço tecnológico das últimas décadas permitiu fabricar materiais nanoestruturados com geometrias diversas, tais como nanotubos ferromagnéticos [49], circuitos flexíveis [50] e nanocapas magnéticas (*magnetics nanocaps*) [51] [52]. Atualmente, muitos esforços são realizados no intuito de esclarecer a influência da curvatura na dinâmica dos momentos magnéticos na superfície de partículas com diferentes formatos [53] [54]. Estudos analíticos e usando simulação computacional acerca dos estados magnéticos de cascas cilíndricas [55] [56], elipsoidais [57] e esféricos [58] [52], mostram efeitos que são governados pela curvatura da estrutura. Por outro lado, sistemas formados por nanocapas magnéticas, apresentam grande importância em aplicações biológicas. Isto porque nanomateriais corretamente desenhadas apresentam estabilidade química, que permite o uso na administração direcionada de drogas e na hipertermia para tratamento de câncer [59] [60]. Embora sistemas magnéticos planares apresentem resultados promissores em diversas áreas da ciência de materiais, vale ressaltar que superfícies curvas permitem a alteração nas propriedades magnéticas ofertando novas aplicações. Manfred et al. [61] descreveram que para um arranjo monodisperso de nanoesferas recobertas por uma bicamada Co/Pd se apresenta a configuração de único domínio.

Sistemas de gravação magnética tem atingido densidades de armazenamento cada vez mais elevada, contudo, devido à diminuição do tamanho de grãos a instabilidade provocada por flutuações térmicas destrói a orientação da magnetização. Uma forma de diminuir o efeito é compensando a diminuição do tamanho das partículas com o aumento da anisotropia magnética. É neste sentido que sistemas bidimensionais de nanopartículas com alta anisotropia tornam-se promissores. Manfred et al. desenvolveram sistemas de matrizes bidimensionais formado por partículas esféricas (poliestireno de 50 a 300 nm). Estas matrizes organizadas serviram como substrato para a deposição de um filme magnético bicamada de Co/Pd, formando assim capas esféricas magnéticas na parte superior das esferas. Resultados revelaram que, em contraste com sistemas de filmes finos, nanoestruturas com simetria esférica têm elevada coercividade e larga distribuição do campo de comutação. Também podem apresentar anisotropia magnética perpendicular ao plano do substrato. Arranjos estruturados bidimensionais de nanoesferas têm potencial de

aplicações para gravação de alta densidade e produção de novos materiais fortemente dependentes da espessura tais como os supercondutores e materiais ópticos [61]. Chen et al. [62], desenvolveram superfícies auto organizadas de nanoesferas cobertas com Ga/Sb e os resultados mostraram uma diminuição da coercividade, provocado pela redução da anisotropia magnética efetiva. Esta diminuição, está associada à curvatura da superfície esférica que influencia na anisotropia do sistema.

Formando sistemas coloidais, capas magnéticas também apresentam resultados promissores, com potencial aplicação na biologia [63] [64] [65]. Principalmente pela possibilidade do controle do movimento das nanoesferas que tem camada ferromagnética e podem ser guiadas por meio de um campo magnético. Baraban et al. mostraram que é possível direcionar o movimento de nanoesferas de sílica recobertas com material ferromagnético. Para isso foi utilizada uma combinação de campos magnéticos homogêneo e alternado [66]. O movimento das esferas é acionado pela diferença de temperatura em torno da partícula, provocado pelo aquecimento das capas magnéticas ao sofrer a ação do campo magnético alternado. A direcionalidade do movimento é controlada pelo campo magnético homogêneo.

Alguns resultados revelaram que as capas magnéticas revertem seus momentos no estado de vórtice [67]. A geometria tem influências sobre a polaridade das nanoesferas, o sentido da magnetização do núcleo do vórtice e a diminuição do campo dispersivo. A estabilidade dos vórtices em superfícies esféricas foi largamente estudada por Robert Streubel. Em seu artigo “*Magnetic vortices on closely packed spherically curved surfaces*” (Streubel et al. [67]), foi feita uma análise da influência da curvatura sobre a estabilidade dos vórtices magnéticos. Foi observado também, que é possível construir matrizes bidimensionais de capas semiesféricas de *Permalloy* organizadas que podem reverter no estado magnético de vórtice. Streubel, em seu trabalho “*Equilibrium magnetic states in individual hemispherical Permalloy caps*” (Streubel et al. [68]), complementou o estudo apresentando distribuições de magnetização em capas magnéticas sobre nanoesferas de sílica e também por meio de resultados por simulação micromagnética. As simulações mostraram que variando a espessura entre 10 nm e 60 nm predominam o estado magnético estável de vórtice. Arranjos magnéticos de capas de *Permalloy* de espessuras diversas sobre nanoesferas com diâmetros inferiores a 300 nm ainda revelam questionamentos que estimulam estudos experimentais e por simulação computacional. Poucos estudos do

processo de reversão da magnetização foram realizados e comparados com resultados computacionais [56] [52] [58]. Dessa maneira, no presente trabalho, são estudados arranjos organizados de nanoesferas de sílica (70 nm a 80 nm) recobertas sobre o hemisfério superior com camadas magnéticas de *Permalloy* com espessura de 5 nm, 10 nm e 20 nm.

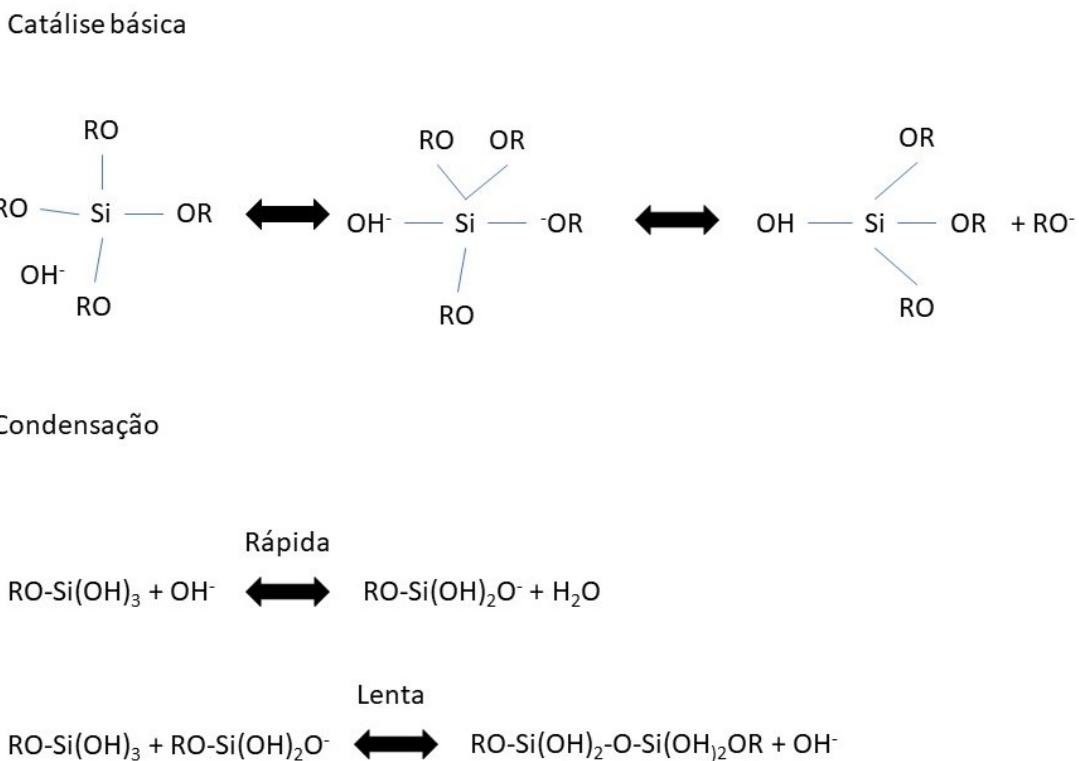
As ligas ferro-níquel, *Permalloy*, demonstram uma gama de particularidades magnéticas com aplicações dentre as quais se destacam a alta permeabilidade magnética e baixa coercividade. Contudo, propriedades como saturação e temperatura de Curie, são propriedades que não apresentam sensibilidade à estrutura, sendo dependentes apenas da composição e estrutura cristalina. Em contraponto, a permeabilidade magnética, coercividade e curvas de magnetização são sensíveis à concentração de níquel e ferro [69] [70]. Todas as propriedades magnéticas são fortemente influenciadas pela mobilidade das paredes de domínios, pelas tensões, inclusões intersticiais, tamanho de grão e textura [71]. Por estas características, o *Py* tem aplicações nas mais diversas áreas como bimetais termostáticos, cabeçotes de leitura magnética, gravação e armazenamento magnético, atuadores magnéticos, dentre outras [72].

O *Permalloy* pode ter estruturas CFC, CCC, hexagonal e até mesmo pode ser amorf. Esta liga formada por Fe e Ni fundamentalmente, apresenta algumas características que dependem da composição e de diferentes parâmetros externos, como temperatura, campo magnético e pressão. O *Py* apresenta expansão térmica próxima da temperatura ambiente, que depende da concentração de níquel. Tem magnetostrição volumétrica espontânea, com expansão de rede provocada pela característica ferromagnética do *Permalloy*, sendo o efeito maior que em outros materiais ferromagnéticos [73] [74] [75]. O *Py* apresenta alta susceptibilidade, que é cerca de dez vezes maior que a do ferro e do níquel [74].

Na fabricação de capas semiesféricas de *Py* é de grande utilidade o uso de esferas de sílica em qualidade de molde. A sílica de Stöber [15] são nanopartículas produzidas por um método que permite a obtenção de nanoesferas com distribuição de tamanho estreita. O processo reacional é baseado na hidrólise em meio básico que proporciona alta pureza e homogeneidade do material resultante. A síntese também permite controlar, em temperatura ambiente, a obtenção de nanoesferas monodispersas com diâmetro entre 40 nm e 1 μ m [15]. O TEOS (Tetraetilortossilicato) é um composto metalorgânico com ligação entre um ou mais átomos de carbono (pertencentes a um

grupo orgânico) e um ou mais átomos metálicos (metais, metais de transição, lantanídeos, actínídeos) [76]. Na reação de hidrólise em meio básico, os átomos de silício do TEOS ($\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$) sofrem ataque nucleofílico dos ânions OH^- , conduzindo à formação de grupos $\equiv\text{Si}-\text{OH}$. No processo de condensação, o grupo hidrolisado sofre outro ataque de ânions OH^- gerando os grupos silanos desprotonados $\equiv\text{Si}-\text{OH}^-$, que por sua vez atacam outros grupos hidrolisados formando ligações $\text{Si}-\text{O}-\text{Si}$, Figura 10. A catálise básica forma clusters altamente ramificados. Com o tempo de reação os clusters se ligam aos grupos condensados de sílica, formando as nanopartículas de sílica. O método mais simples e eficiente de cessar o crescimento das nanoesferas de sílica é removendo o catalisador básico da reação.

Figura 10- Processo de catálise básica do TEOS com mecanismos de condensação em meio alcalino.



Fonte: Produzido pelo autor

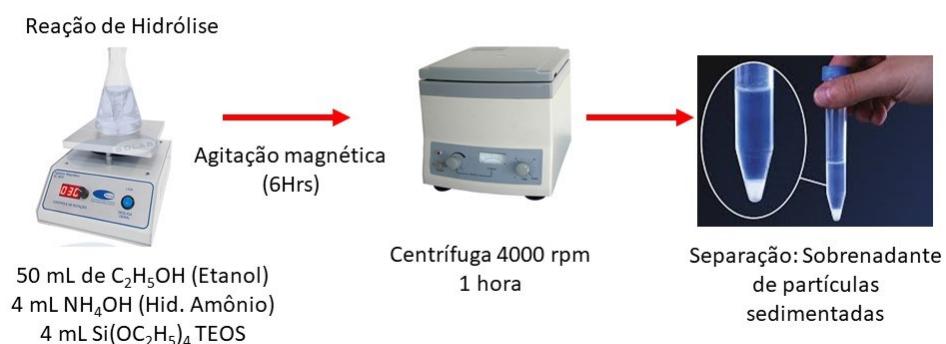
4 MATERIAIS E MÉTODOS

4.1 SÍNTESE DE NANOESFERAS DE SÍLICA

As nanoesferas de sílica não porosas foram obtidas pelo método de síntese de Stöber [15]. Neste método, objetiva-se produzir nanopartículas com diâmetro de 50 nm a 100 nm. Na síntese, foram utilizados 50 mL de etanol (98%), 4 mL de água deionizada, 4 mL de hidróxido de amônio (99%) e 4 mL de TEOS (99%) (Tetraetilortossilicato). A solução foi vedada e os reagentes misturados sob agitação magnética por 6 horas. Após o processo reacional, as nanoesferas de sílica foram coletadas e centrifugadas a 4000 rpm por 1 h. Depois, foram lavadas com etanol e água (Figura 11).

Figura 11- processo de síntese de nanoesferas de sílica.

Síntese de nanoesferas de sílica – Método de Stöber



Fonte: Produzido pelo autor

Como resultado forma obtidas nanoesferas sedimentadas e nanoesferas suspensas (sobrenadante). O líquido resultante da centrifugação (sobrenadante) das nanopartículas, foi aproveitado para a obtenção de um Grupo 1 de nanoesferas de sílica. O líquido foi separado em placa de Petri para eliminar a amônia residual e posteriormente foi resfriado a 2 °C (Figura 12). Esta etapa se justifica devido ao fato de ainda existir hidróxido de amônio no sobrenadante, que atua como um catalisador nas reações de hidrólise e condensação da rede de sílica. Posteriormente o líquido foi usado na produção de matrizes de nanoesferas de sílica sobre substrato de vidro.

O objetivo da utilização do sobrenadante foi devido a possibilidade de existência de nanopartículas de sílica ainda dispersas no coloide [77]. As nanoesferas sedimentadas durante a centrifugação (Grupo 2) foram tratadas a 60 °C por 4 horas para eliminar a amônia residual e em seguida aquecidas a 100 °C por 8 h para eliminar a água e o etanol (Figura 13).

Figura 12- Tratamento de nanoesferas de sílica suspensas

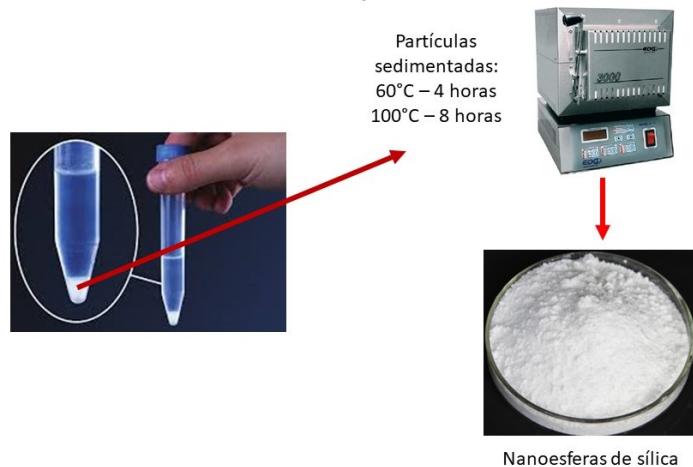
Síntese de nanoesferas de sílica – Grupo 1



Fonte: Produzido pelo autor

Figura 13- Tratamento de nanoesferas de sílica sedimentada

Síntese de nanoesferas de sílica – Grupo 2



Fonte: Produzido pelo autor

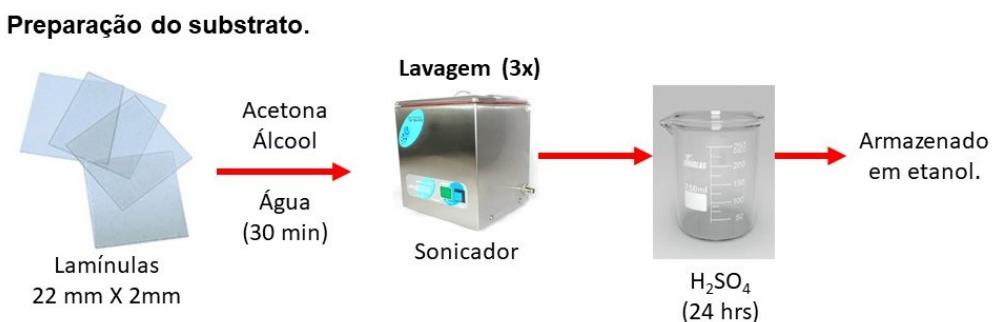
Como resultado de todo o procedimento acima explicado resultam dois grupos de esferas. O Grupo 1 de esferas menores que permanecem suspensas no sobrenadante

(Figura 12) [78] e o Grupo 2 de nanoesferas maiores que sedimentaram devido às forças atrativas (Figura 13).

4.2 FABRICAÇÃO DE ARRANJOS DE NANOESFERAS DE SÍLICA (MATRIZES 2D) DEPOSITADAS EM SUBSTRATO DE VIDRO

O ordenamento bidimensional de nanoesferas de sílica foi realizado pelo processo de sedimentação gravitométrica sobre substrato de vidro [79]. O procedimento foi separado em três etapas: a preparação da suspensão de sílica, a preparação e tratamento do substrato de vidro e a deposição das nanoesferas de sílica no substrato de vidro (lamínulas). A preparação da suspensão das nanoesferas de sílica do Grupo 1, ocorreu por meio da utilização da suspensão resultante da centrifugação (o sobrenadante). As nanoesferas sedimentadas obtidas da centrifugação (Grupo 2), foram preparadas baseado no modelo realizado por Dimitrov e Kuniaki [80]. Foi preparada uma suspenção em etanol P.A. numa proporção de 1% em massa, das nanoesferas de sílica em relação ao etanol. O resultante foi mantido sob agitação magnética por 2 horas.

Figura 14- Preparação do substrato

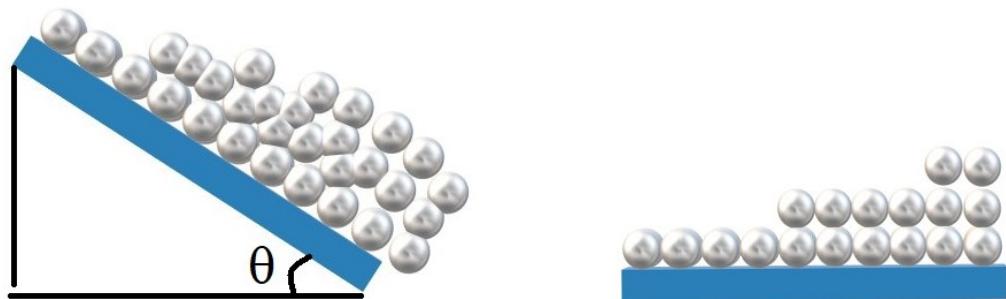


Fonte: Produzido pelo autor.

Os substratos (lamínulas de vidro silicato 22 mm x 22 mm) foram submersos em acetona e lavados em ultrassom (*Eco-sonics* – 40kHz) repetindo 3 vezes por 30 minutos. A lavagem foi repetida usando álcool etílico e por fim, água deionizada. Após as lavagens, os substratos foram tratados com ácido sulfúrico, submersos por 24 horas, no intuito de se obter uma superfície limpa e hidrofílica [81]. Após o tratamento com ácido, as lamínulas foram colocadas novamente em etanol até serem usadas para a deposição (Figura 14). A deposição das nanoesferas de sílica sobre o substrato foi realizada por sedimentação gravitométrica [79] (Figura 15). O substrato foi imerso

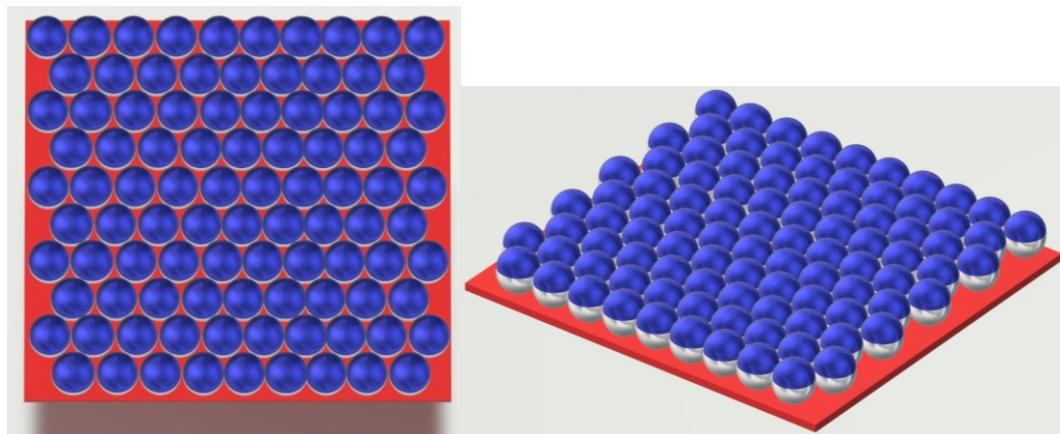
(90°) em solução contendo as nanoesferas de sílica e submetido à temperatura controlada de 40°, em forno (Mufla – EDG 3000).

Figura 15- Representação esquemática do processo de deposição de nanoesferas de sílica sobre substrato de vidro. A formação das camadas de nanoesferas se inicia no topo do substrato, em decorrência do escoamento e taxa de evaporação de solvente.



Fonte: Produzido pelo autor.

Figura 16- Representação esquemática de arranjos ordenados (O) de nanoesferas de sílica com capas de *Permalloy* (*Magnetics caps*).

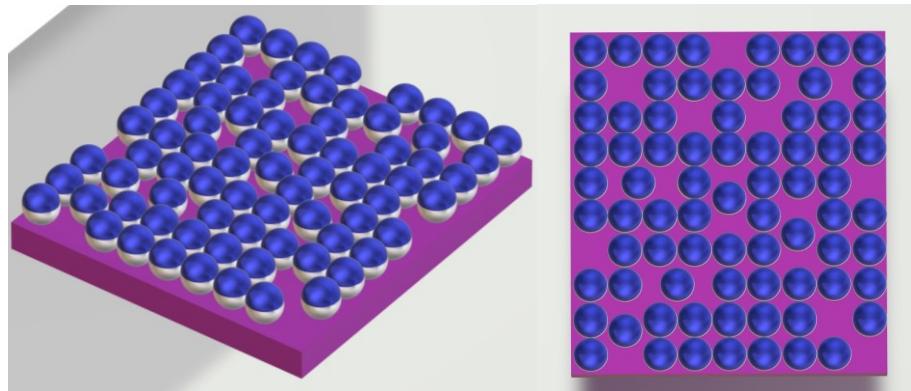


Fonte: Produzida pelo autor.

Finalmente foi feita a deposição do *Permalloy* sobre as nanoesferas de sílica. Para isso foram separadas 3 amostras de cada grupo (Grupo 1 e Grupo 2), que foram utilizadas como base para deposição do *Py*. Os arranjos dos dois grupos apresentaram características distintas que serão mostradas nas imagens de microscopia. Baseado nisso, os dois grupos de amostras foram reclassificados pela organização das esferas no substrato. Foram com isso obtidas 3 amostras com

esferas organizadas, representadas na Figura 16 (“O”) e 3 amostras com nanoesferas desorganizadas (“D”), representadas pela Figura 17. Nos próximos capítulos as amostras são referidas como organizadas e desorganizadas.

Figura 17- Representação esquemática de arranjos desordenados (D) de nanoesferas de sílica com capas de *Permalloy* (*Magnetics caps*).



Fonte: Produzida pelo autor.

Tabela 1- Nomenclatura dos arranjos ordenados (O) e desordenados (D) de nanoesferas de sílica recobertas com *Py*.

Nome das amostras	Espessura Py (nm)
O5	5
O10	10
O20	20
D5	5
D10	10
D20	20

Fonte: Elaborada pelo autor.

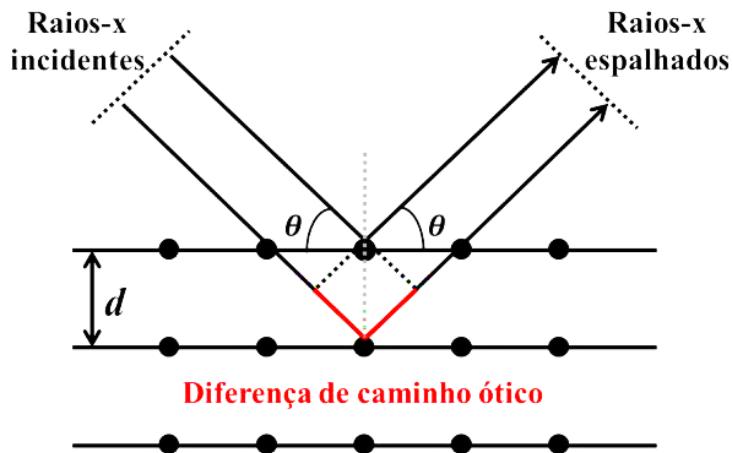
Para depositar *Permalloy*, foi utilizado um magnetron sputtering modelo PLS-500, BALZERS-PFEIFFER (DF-UFPE), em modo DC à temperatura ambiente. Usou-se a pressão base de $4,2 \cdot 10^{-7}$ Torr e pressão do argônio de $7,5 \cdot 10^{-4}$ Torr a uma taxa de deposição de 0,1 nm/s baseado em calibração prévia. Tanto para substratos com esferas ordenadas como para substratos com esferas desordenadas, foram depositadas espessuras de *Py* com espessura de 5 nm, 10 nm e 20 nm. As nomenclaturas e características das amostras são descritas na Tabela 1.

4.3 CARACTERIZAÇÃO POR DIFRAÇÃO DE RAIOS-X (DRX)

A difratometria de raios-X é uma das principais técnicas de caracterização microestrutural. Os raios-X ao atingirem um material podem ser espalhados sem perda de energia pelos elétrons dos átomos. Se os átomos que geram este espalhamento estiverem arranjados periodicamente, com distâncias próximas à do comprimento de onda incidente, pode-se verificar que as relações de fase tornam-se periódicas e efeitos de interferência podem ser observados em vários ângulos [82] [83]. Supondo que em dois ou mais planos paralelos de uma estrutura, as condições para uma interferência construtiva sejam válidas, a difração de raios-X dependerá da diferença de caminho percorrida pelos múltiplos raios e do comprimento de onda da radiação incidente Figura 18 [82] [83]. A condição necessária para máximo de interferência é definida pela lei de Bragg (equação(5-1)) e é muito utilizada na difração de raios-X para caracterizar materiais.

$$n\lambda = 2d \sin\theta \quad (4-1)$$

Figura 18- Representação do espalhamento de raios-X nas camadas entre átomos de um material cristalino.



Fonte: [21].

Na equação 5-1, λ refere-se ao comprimento de onda da radiação incidente, n é um número inteiro, d é a distância entre os planos de átomos do material com índices de Miller (hkl) e por último θ é o ângulo de incidência. A intensidade difratada também dependente do número e de elétrons no átomo espalhador e da distribuição atômica

dentre os vários planos da estrutura. Isto faz com que as intensidades difratadas sejam distintas para os diversos planos [82] [83]. O tamanho médio de cristalito pode ser obtido pela medida da largura na meia altura (FWHM), dos picos de difração. Há diversos modelos matemáticos nos quais o perfil de difração pode ser ajustado, como Lorentziano, Gaussiano, etc. Após o ajuste dos resultados, o tamanho do cristalito pode ser calculado pela equação de Scherrer:

$$D = \frac{k\lambda}{\beta \cdot \cos\theta}, \quad (4-2)$$

onde, k é uma constante que se refere ao formato do cristal, λ é o comprimento de onda da radiação incidente, θ é o ângulo de difração de Bragg, β é a largura na meia altura do pico analisado. Para o estudo aqui apresentado, as medidas de difração de raios-X foram realizadas usando um difratômetro de raios-X *Bruker*, modelo D8 *Advance*, na geometria $\theta - 2\theta$. Foi usada radiação Cu-K α com comprimento de onda $\lambda = 1,542 \text{ \AA}$, aplicado a um ângulo rasante de $\theta \approx 1^\circ$ sobre a superfície das capas de *Permalloy*. Uma descrição detalhada sobre a técnica pode ser encontrada em Cullity et. al. [84].

4.4 MICROSCOPIA ELETRÔNICA DE VARREDURA (MEV)

A microscopia eletrônica de varredura, possibilita obter imagens de alta resolução da topografia e morfologia das amostras [85]. Após a interação entre um feixe de elétrons e a amostra, vários processos de espalhamento podem ocorrer; dentre eles a emissão de Auger, elétrons retro espalhados, elétrons secundários e raios-X. Os sinais maiormente utilizados são os que resultam de elétrons secundários, que são sensíveis à topografia da amostra, pois são gerados na superfície e o detector de elétrons secundários se localiza de forma tal que as imagens tenham perspectiva tridimensional. Os elétrons retro espalhados, também são utilizados para analisar a topografia, e servem para identificar a diferença de composição média de uma região para outra. Para obter boas imagens de elétrons retro espalhados é necessário acelerar o feixe incidente aumentando assim, o volume de interação o que compromete a resolução lateral. De outra forma, no estudo da composição das amostras são mais utilizados, pois os elétrons retro espalhados são sensíveis ao raio atômico médio da região observada. Deste modo, uma camada magnética sobre nanoesferas de sílica com número atômico muito diferente geraria um contraste da interface magnética e a sílica [82] [83].

Quando um microscópico eletrônico de varredura tem detectores de raios-X, há a possibilidade da realização da análise elementar da amostra. A captação de raios-X característicos emitidos pela amostra, torna possível observar informações qualitativas e quantitativas da composição na região da incidência do feixe de elétrons. Para estes fins é muito comum o uso do detector de energia dispersiva (EDS) [86], cujo princípio de funcionamento é a excitação e emissão de fótons característicos do material. O detector instalado no MEV mede a energia associada a esse raio-X característico e já que as transições eletrônicas de cada átomo possuem energias conhecidas e bem definidas, é possível determinar quais são os elementos químicos que estão presentes na região observada da amostra [84] [86]. As imagens obtidas por microscopia eletrônica de varredura neste trabalho foram realizadas usando um microscópio modelo Mira 3 *Tescan*. As amostras foram fixadas por meio de fita de carbono sobre o porta amostra e foi depositada uma fina camada de ouro (< 5 nm) por meio de metalizadora Bal-Tec, modelo SCD-050.

4.5 MAGNETOMETRIA DE AMOSTRA VIBRANTE (VSM)

A magnetometria de amostra vibrante é baseada na lei da indução de Faraday, que permite coletar informações sobre o comportamento magnético de um material. Esta técnica é muito difundida como ferramenta fundamental para a investigação magnética de sistemas macroscópicos. A sensibilidade, pode chegar a 10^{-6} emu, com qualidade melhorada usando amplificador lock-in e alta rigidez da haste para evitar movimentação adicional da amostra [87]. O magnetômetro de amostra vibrante funciona com a vibração da amostra em torno de sua posição de equilíbrio em frequências que variam entre 30 Hz e 80 Hz. Isto provoca a variação do fluxo magnético em bobinas, gerando uma força eletromotriz que é proporcional ao momento magnético da amostra. A haste é presa a um cabeçote que gera o movimento e a amostra é posta na outra extremidade da haste ficando no centro das bobinas de detecção [88].

As propriedades magnéticas do *Py* depositado sobre as nanoesferas de sílica foram medidas por magnetometria de amostra vibrante (VSM) à temperatura ambiente e campo máximo de 10 kOe, com o intuito de analisar a dependência angular da coercividade. As medidas da magnetização foram realizadas para diferentes ângulos do campo magnético externo, medido em relação ao plano do substrato. Os resultados das medidas magnéticas foram obtidos pelo magnetômetro de amostra vibrante

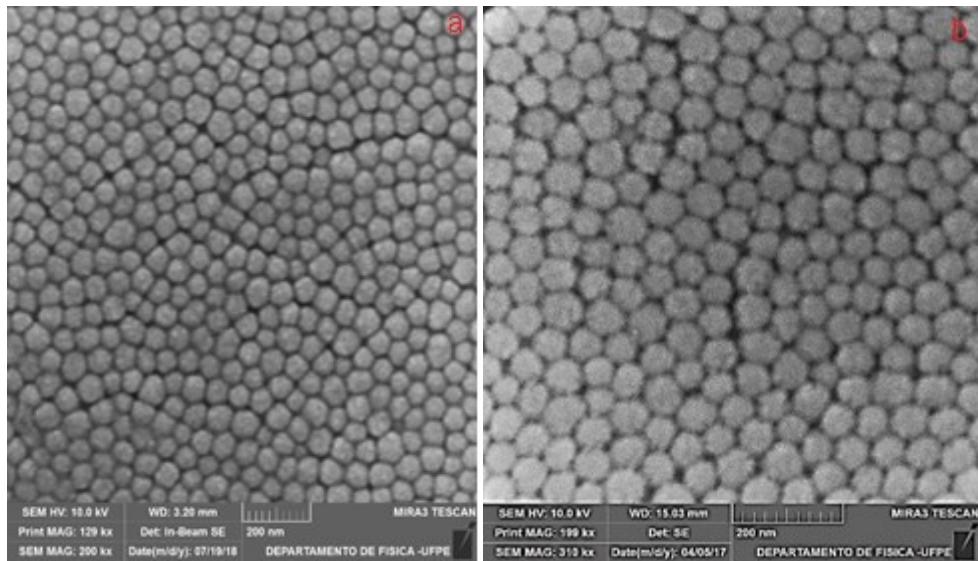
modelo AV7 da *Microsystem*, com sensibilidade de 10^{-6} emu, instalado no DF-UFPE com 10 kOe de campo magnético máximo aplicado às amostras e variação angular de 0° a 90°.

5 RESULTADOS E DISCUSSÃO

5.1 MICROSCOPIA ELETRÔNICA DE VARREDURA DE ARRANJOS 2D

Ao depositar *Permalloy* no topo de um arranjo de nanoesferas de sílica, é possível obter nanocapas magnéticas (*magnetics caps*) que, a depender das suas características, revertem seu o magnético na configuração de vórtice [7] [8] [67] [89] [90]. Neste trabalho, as matrizes de nanoesferas de sílica foram produzidas pelo método *dip-coating*, como relatado no capítulo anterior. As Figura 19 (a e b) mostram imagens obtidas por microscopia eletrônica de varredura, das nanoesferas (80 nm) de sílica ordenadas “O” em diferentes aumentos para ter detalhes das características destes objetos.

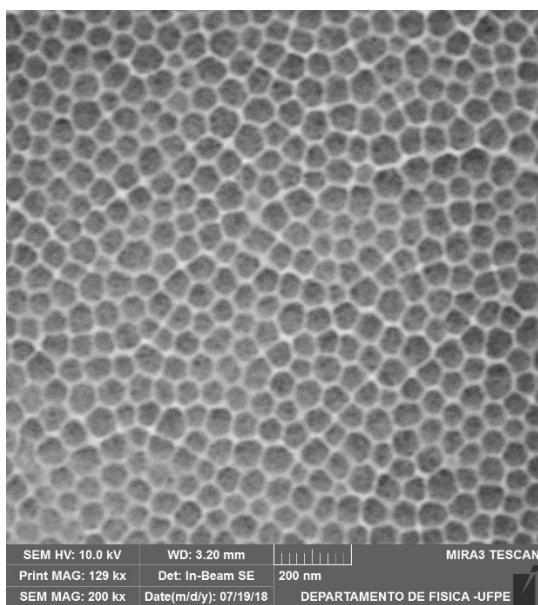
Figura 19- Micrografias de arranjo ordenado de nanoesferas de sílica



Fonte: Produzido pelo autor.

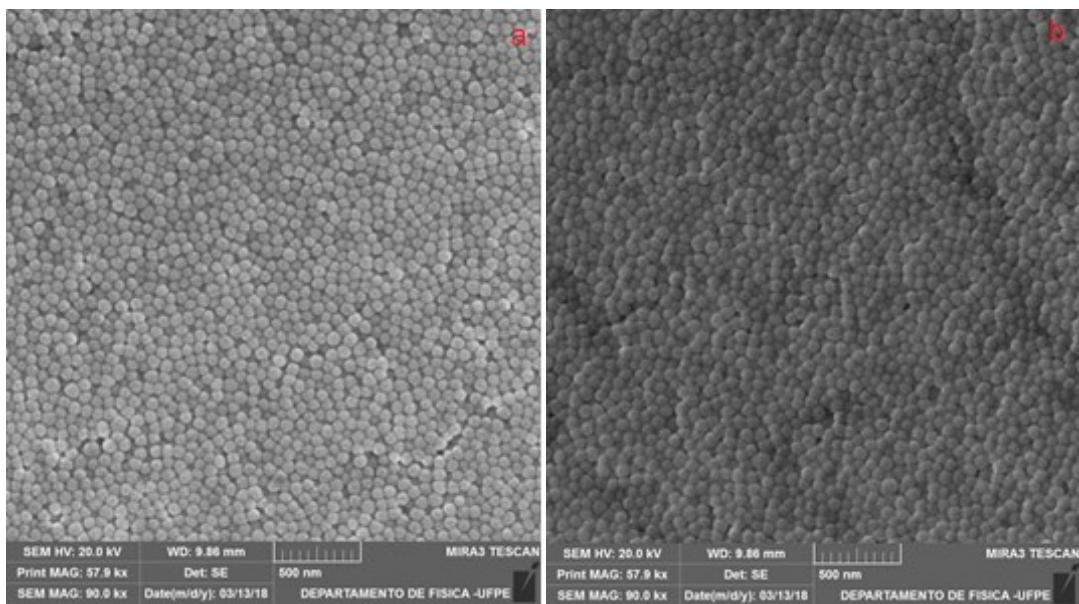
A Figura 20 apresenta uma imagem destas mesmas esferas recobertas com uma camada de *Py* de 5 nm. Pelas características da imagem pode-se verificar uma mudança de contraste nas bordas das esferas, devido ao material magnético depositado sobre sua superfície. As Figura 21 (a e b) mostram micrografias de nanoesferas de sílica (70 nm), dessa vez desordenadas “D” e destas mesmas recobertas com *Permalloy*, respectivamente.

Figura 20- micrografias de um arranjo de nanoesferas ordenadas “O” de sílica cobertas com *nanocapas* de 5 nm de *Py*.



Fonte: Produzido pelo autor.

Figura 21- micrografias de: a) arranjo desordenado “D” de nanoesferas de sílica e de b) esferas recobertas com nanocapas de 5 nm de *Py*



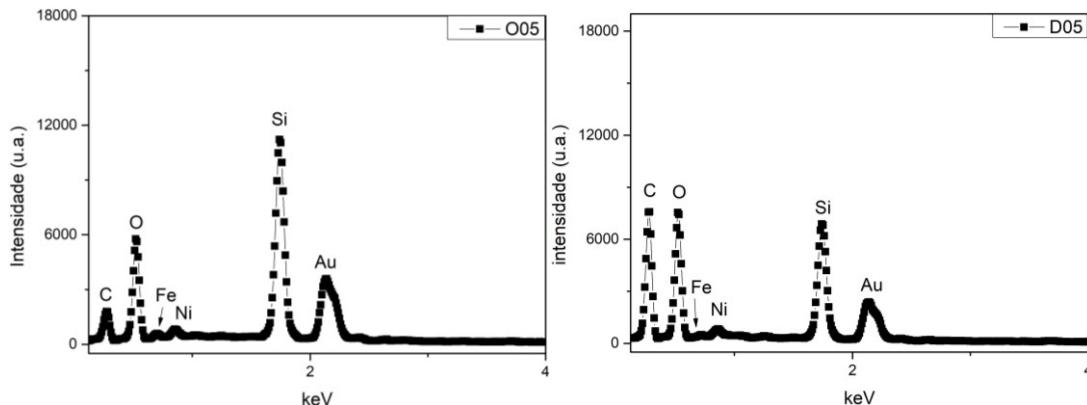
Fonte: Produzido pelo autor.

Estas imagens apresentam o resultado de cada uma das metodologias utilizadas para obter os arranjos de esferas sobre o substrato de vidro de sílica. As esferas provenientes do sobrenadante resultaram em diâmetro médio próximo de 80 nm e seu ordenamento sobre o substrato foi bem definido quando comparado com o arranjo das

esferas provenientes do precipitado durante a centrifugação. Além disso o diâmetro médio destas últimas esferas é de 70 nm. Dessa maneira podemos afirmar que cada metodologia utilizada tem influência no diâmetro e no ordenamento. Resultados como estes foram relatados em alguns trabalhos na literatura [81], [82].

Para os sistemas ordenado “O” e desordenado “D”, foi realizada a análise por espectroscopia de energia dispersiva de raios-X (Figura 22). Os resultados confirmam a existência de Si e O existentes nas esferas de sílica enquanto que, pico de ouro (Au) está relacionado ao revestimento para a preparação das amostras. A confirmação da existência do *Py* sobre as nanoesferas de sílica, está na presença dos picos característicos de Níquel e Ferro. Diversos trabalhos tem utilizado esta técnica como base para a caracterização de sistemas magnéticos. Esta confirmação, juntamente com os resultados observados na caracterização por DRX descrita a seguir, são fundamentais para a realização dos estudos magnéticos subsequentes.

Figura 22- Espectro de EDS para os arranjos de nanoesferas cobertas com camada de 5 nm de *Permalloy*. a) (esquerda) arranjo de esferas organizadas “O” e b) (direita) arranjo de esferas desordenadas “D”



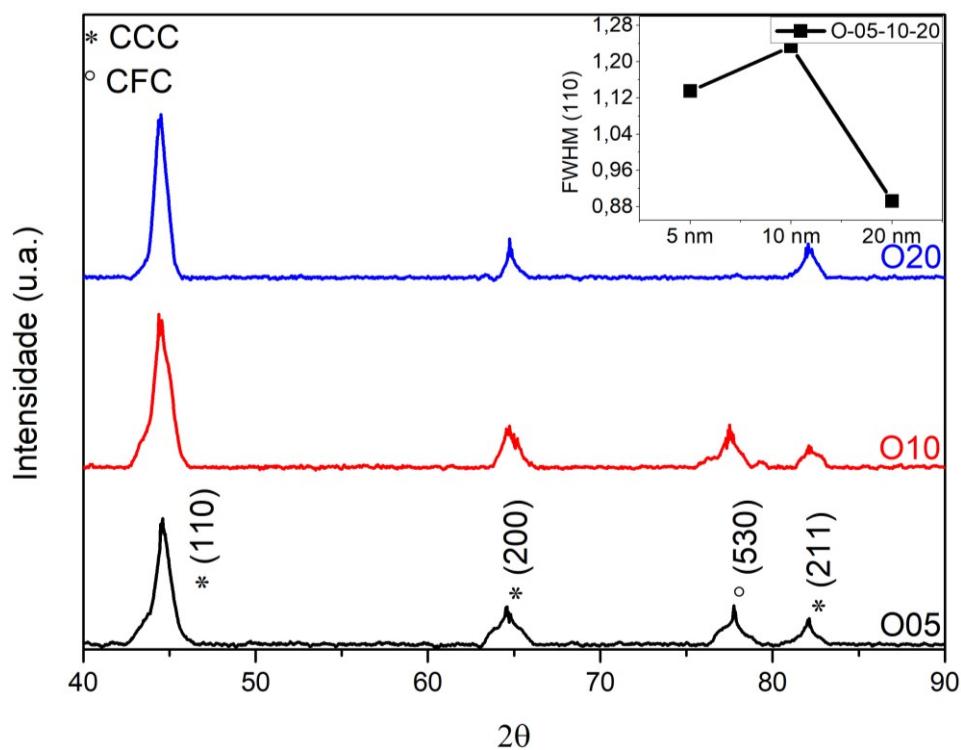
Fonte: Produzida pelo autor.

5.2 CARACTERIZAÇÃO POR DRX DE ARRANJOS ORDENADOS E DESORDENADOS DE NANOCAPAS DE *Py*

As medidas por difração de raios X de cada arranjo de nanocapas de *Py*, estão apresentadas nas Figura 23 e Figura 24. Um intenso pico em $2\theta \approx 44^\circ$ foi observado em todas as amostras, isso indica um crescimento preferencial dos cristais na direção normal ao plano (110) da estrutura cúbica de corpo centrado (CCC) do *Permalloy*.

Também pode-se observar que a largura na meia altura do pico principal tende a diminuir com o aumento do tempo de deposição. Revelando que pode existir aumento da cristalinidade e do tamanho do cristalito do recobrimento de *Permalloy* com tempos de deposição maiores.

Figura 23- Resultados por DRX do conjunto de amostras de esferas ordenadas com espessuras de *Py* de 5, 10 e 20 nm (O05, O10 e O20). Os resultados sugerem uma dependência do tempo de deposição da liga Fe-Ni com o desaparecimento da fase cristalina FCC (530) e a diminuição da largura de meia altura (FWHM) do pico principal $\approx 44^\circ$ (110).

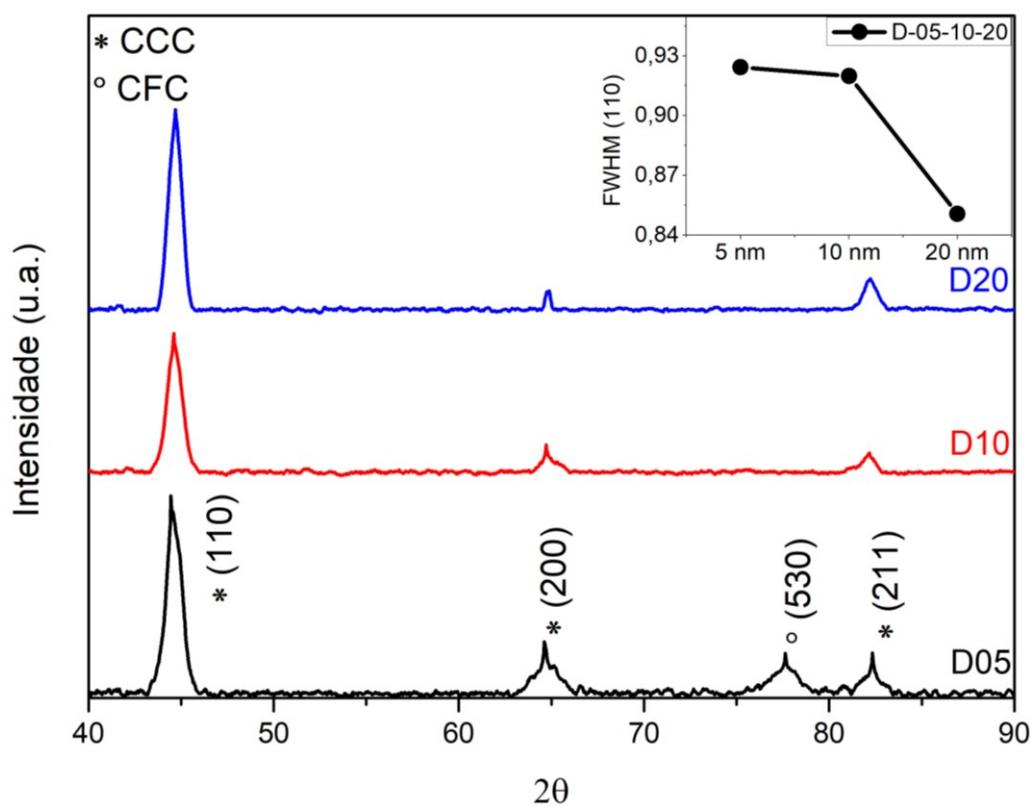


Fonte: Produzido pelo autor.

Glaubitz e colaboradores [91] realizaram um estudo das propriedades estruturais para várias composições de filmes finos da liga $Fe_{1-x}Ni_x$. Foi observada a coexistência das fases CCC e CFC e a presença de cada fase está associada às concentrações relativas de Fe e Ni. Os resultados desses estudos mostraram que, ligas de *Permalloy* que formam apenas a fase BCC, tem quantidade maior de ferro Fe (entre 50% e 91,5%). Como pode ser observado, na Figura 24, há o desaparecimento da fase FCC a partir da amostra D10. Na Figura 23, correspondente ao arranjo ordenado, este desaparecimento ocorre apenas na amostra O20. Isto pode ser um indicativo do

crescimento da concentração atômica de Fe com o aumento do tempo de deposição. Sabe-se que a deposição por este método apresenta variáveis muito complexas que podem dar lugar a segregações de fase e outros efeitos estruturais, motivados pelo substrato e pelas condições de preparo.

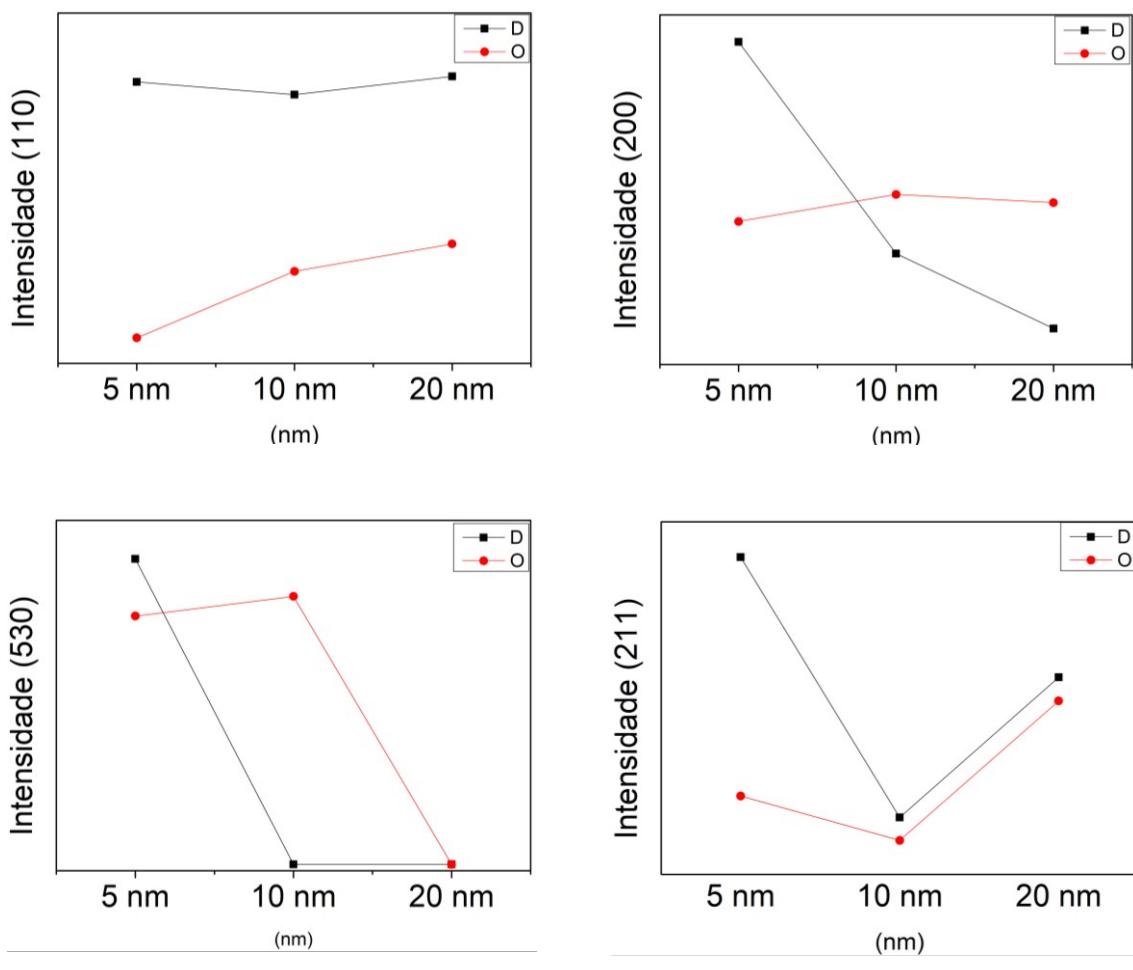
Figura 24- Resultados obtidos por DRX dos arranjos desordenadas (D05, D10 e D20). Resultados sugerem uma dependência forte entre o tempo de deposição da liga Fe-Ni com o desaparecimento da fase cristalina FCC (530) e com a diminuição da largura na meia altura do pico (110).



Fonte: Produzida pelo autor.

Em todos os difratogramas, foram observados picos nas posições angulares 44° , 64° e 82° , que correspondem aos planos cristalinos (110), (200) e (211) respectivamente, da liga Fe-Ni cúbica de corpo centrado (CCC) (ICDD-37-0474). A simetria desta estrutura corresponde ao grupo espacial $Im\bar{3}m$. O pico de difração no valor 2θ de $\approx 77^\circ$, correspondente aos planos (530) da liga Fe-Ni cúbica de face centrada (CFC) (ICDD 18-0877), com grupo espacial $Fm\bar{3}m$. Nenhum outro pico significativo foi observado.

Figura 25- Intensidades de picos (110), (200), (530) e (211) em função do tempo de deposição da liga FeNi depositada sobre nanoesferas de sílica.



Fonte: Produzido pelo autor.

As intensidades dos picos de difração são mostradas na Figura 25. A intensidade total do pico principal (110) da fase CCC para as amostras desorganizadas (D05, D10 e D20) permaneceu inalterada, no entanto para as amostras ordenadas (O05, O10 e O20), houve um aumento da intensidade destes picos (110) com o tempo de deposição do *Permalloy*. Este resultado sugere o aumento da cristalinidade da fase CCC nos arranjos à medida que se aumenta o tempo de deposição (espessura). Para os picos (200) houve uma abrupta diminuição da intensidade no conjunto de arranjos desorganizados (D) e um ligeiro aumento para esferas ordenadas (O). O pico (530) da fase CFC diminuiu sua intensidade com o aumento de deposição de *Permalloy*, até o desaparecimento. As mudanças nas intensidades dos picos (211) foram mais complexas, e à medida que o tempo de deposição aumentou os picos de todas

amostras diminuíram e apresentaram aumento com o maior tempo de deposição. Este resultado corrobora com a formação da estrutura CCC, confirmada pelo aumento da intensidade deste pico. A cristalinidade associada ao pico (110) de todas as amostras, mostrou que independentemente do tempo de deposição, há a formação de *Permalloy*. Também ocorre um aumento da cristalinidade com o aumento de tempo de deposição para esferas ordenados (**O**).

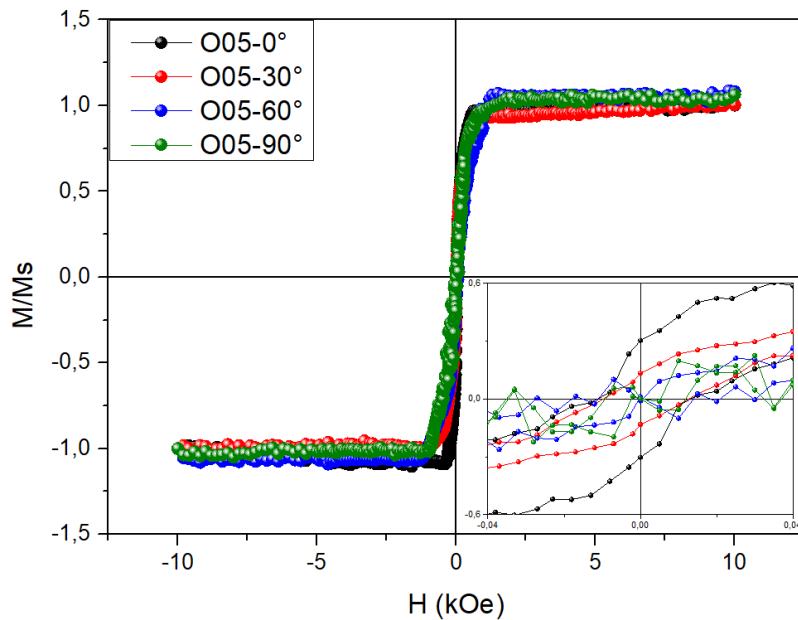
5.3 ESTUDO MAGNÉTICO COMPARATIVO DE ARRANJOS ORDENADOS E DESORDENADOS DE NANOCAPAS DE *Py*

5.3.1 Curvas de magnetização em função do ângulo

A Figura 26 apresenta as curvas de histereses da amostra O05 (5 nm de *Py*) para os ângulos de 0°, 30°, 60° e 90° de aplicação do campo externo, medido em relação ao plano do substrato. O resultado da medida em 0° se aproxima da forma quadrada, mostrando o comportamento típico de um sistema de dois estados magnéticos principais. Hysen et al. [92] também observaram este comportamento em filmes finos de Co-Fe-Si. A proximidade do formato das curvas para as diferentes direções pode ser devido à baixa quantidade de *Permalloy* (5 nm) sobre a superfície das nanoesferas. Por sua vez, a completa saturação da magnetização ocorre em valores próximos de campo para todos os ângulos apresentados, o que sugere uma baixa anisotropia para esta espessura. É possível analisar os processos de reversão de magnetização por meio de estudos da dependência angular de algumas grandezas para diferentes direções do campo aplicado. A coercividade pode dar indicativo da distribuição da interação de troca num sistema magnético [93] [94] [95] [96].

A Tabela 2 apresenta um resumo das principais grandezas extraídas das curvas de magnetização para as nanocascas ordenadas de diferentes espessuras. Foram mostradas nesta tabela, os valores de coercividade e campo de saturação para 0, 30, 60 e 90 graus medidos em relação ao plano do arranjo.

Figura 26- Curvas de magnetização da amostra O5 (5 nm de espessura de *Py*) normalizada (M/M_s) em função da direção do campo externo aplicado (H). Os ângulos 0°, 30°, 60° e 90° são em relação ao plano do substrato.



Fonte: Produzido pelo autor.

Tabela 2- Intensidade de campo de saturação e do campo coercitivo observados em ângulos de 0°, 30°, 60° e 90° para os arranjos ordenados de nanocascas de *Py*.

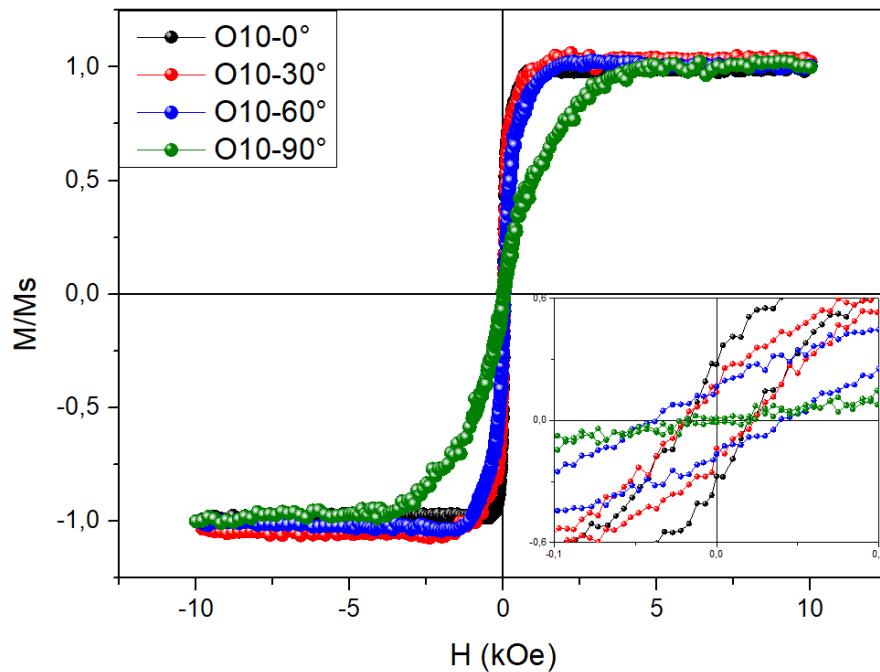
Ângulo (°)	O05	O10	O20	O05	O10	O20
	H_s (kOe)	H_s (kOe)	H_s (kOe)	H_c (kOe)	H_c (kOe)	H_c (kOe)
0	1,3	1,9	3,2	13,2	19,8	40,4
30	1,2	2,1	5,5	12,8	23,2	55,0
60	1,5	2,3	8,1	8,4	39,1	108,7
90	1,9	5,1	-	4,2	17,4	98,1

Fonte: Produzido pelo autor.

O insert da Figura 26 mostra detalhes maiores da curva de magnetização para baixos valores de campo, podendo visualizar os pontos onde a curva corta os eixos coordenados. Apesar de que as curvas de magnetização para a amostra O05 são visivelmente semelhantes, a Tabela 2 mostra que o campo de saturação varia com o ângulo do campo externo, apresentando valores entre 1,2 kOe e 1,9 kOe. Ao mesmo tempo, o campo coercitivo diminui com a direção do campo desde 13,2 kOe até 4,2 kOe sequencialmente. A Figura 27 apresenta curvas de histerese para a amostra O10, formada por arranjo de nanocapas de *Permalloy* de 10 nm de espessura. Da mesma

forma que no arranjo anterior, apresenta-se medidas para os ângulos 0° , 30° , 60° e 90° .

Figura 27- Curvas de magnetização da amostra O10 (10 nm de espessura) normalizada (M/MS) em função do campo externo aplicado (H) para diferentes ângulos.

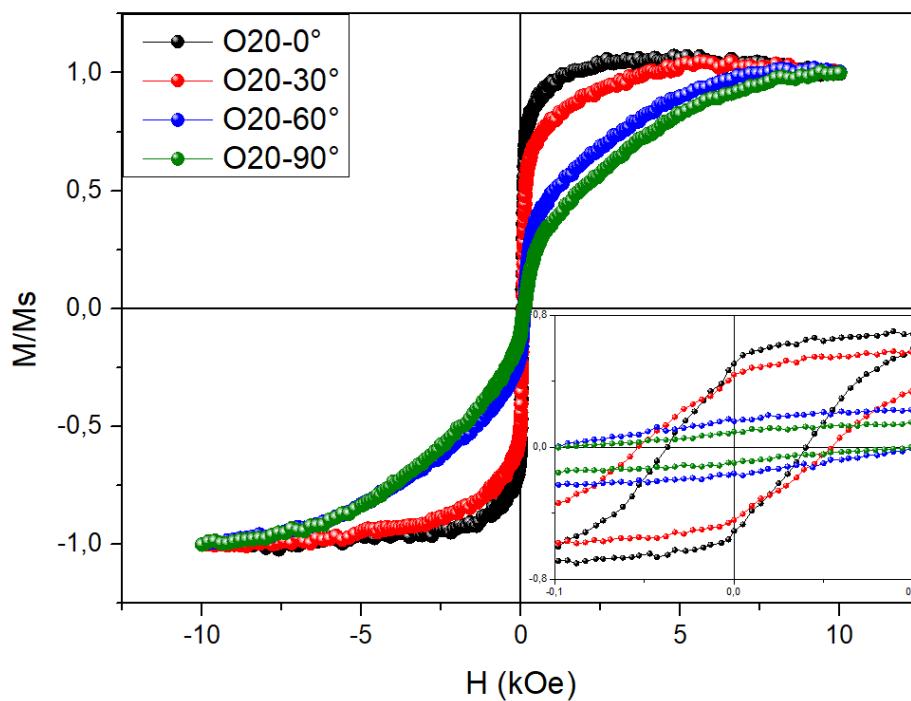


Fonte: Produzido pelo autor.

Qualitativamente, podemos verificar que para a amostra O10, as curvas variam com a direção do campo externo. Este comportamento é diferente ao observado na amostra O05. Para a direção paralela ao plano do arranjo, na amostra O10, podemos verificar uma curva de magnetização com formato retangular, semelhante a um sistema de dois níveis. Por outro lado, à medida que o campo é cada vez mais inclinado a referida curva sofre uma deformação que mostra a aparente existência de um comportamento anisotrópico. Isto pode ser entendido como um câmbio na maneira como os momentos rotacionam para cada direção de campo externo. Estudos detalhados serão apresentados mais adiante, para avaliar a reversão da magnetização. O insert da Figura 27 apresenta com maiores detalhes as curvas de magnetização em campos baixos para cada direção de campo externo. Destas curvas pode-se extrair os valores de campo de saturação a coercividade. A Tabela 2 apresenta os valores destas grandezas para a amostra com 10 nm de *Py* sobre

esferas ordenadas. Inicialmente pode-se verificar que tanto a coercividade como o campo de saturação são maiores para a amostra O10 do que para a amostra O05. A saturação aumenta desde 1,9 kOe até 3,2 kOe à medida que aumenta a inclinação do campo aplicado em relação ao plano do arranjo. A coercividade aumenta entre 0 e 60 graus desde 19,8 kOe até 39,1 kOe e diminui até 17,4 kOe em campo aplicado perpendicularmente ao arranjo. Os estudos da coercividade são importantes para observar, por meio de modelos [35], [46], [47], [48], as características de reversão da magnetização.

Figura 28- Curvas de magnetização da amostra O20 (20 nm de espessura) normalizada (M/M_s) em função do campo externo aplicado (H) para diferentes ângulos. Os ângulos 0° , 30° , 60° e 90° são em relação ao plano do substrato.

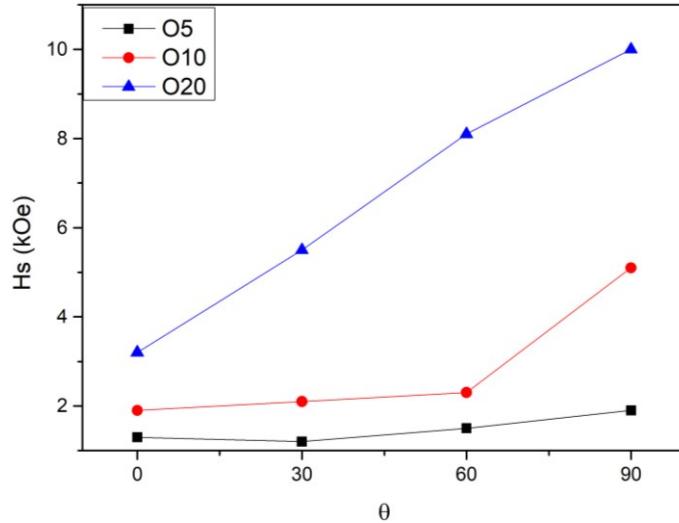


Fonte: Produzido pelo autor.

Por fim, curvas de histereses magnéticas da amostra O20 que contém maior quantidade de *Permalloy* (20 nm) estão representadas na Figura 28. Pode-se observar uma tendência para uma provável mudança do modo de reversão de magnetização, quando comparado ao restante das amostras [97]. Com o aumento da espessura de *Permalloy* na superfície do arranjo de nanoesferas de sílica, os modos de reversão magnética são modificados com a inclinação do campo. Isto se justifica pelo fato de

existir a possibilidade de formar paredes de domínio dentro das cascas com o aumento da espessura do *Py* [97]. Os valores apresentados na Tabela 2 para o ângulo de 30° apresentam um campo de saturação com valor próximo de 5,5 kOe, muito maior que para as amostras O05 e O10. Além disso, o “laço” de histerese para o ângulo de 60° mostrou campo de saturação próximo de 8,1 kOe e a curva obtida em ângulo de 90° mostra que a saturação completa não foi obtida a 10 kOe. Isto sugere que a anisotropia uniaxial se torna muito forte com o aumento da espessura de *Permalloy*. Estes efeitos estão ligados às interações dipolares que ocorrem dentro de uma única casca e também ao efeito do conjunto de cascas de *Py*. Para espessuras menores provavelmente há uma grande influência da anisotropia de superfície, que tem sua origem na quebra de simetria na superfície da casca. Esta contribuição energética também tem origem na desordem atómica.

Figura 29- Representação gráfica das intensidades dos campos de saturação (H_S) das amostras O5, O10 e O20. Destaque para amostra O20 com intensidades muitos superior às amostras com menor espessura de *Permalloy*.



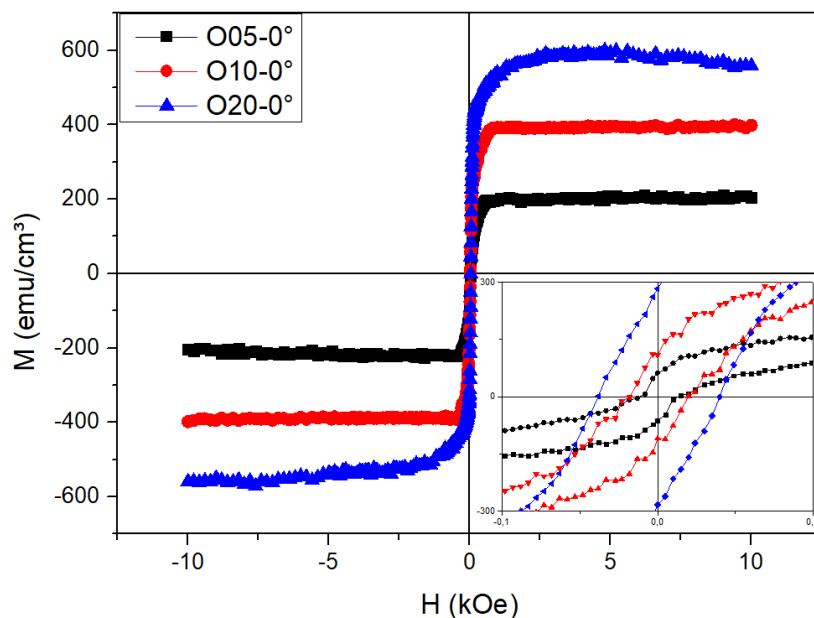
Fonte: Produzido pelo autor

Da Tabela 2 podem-se compilar os resultados com a finalidade de serem apresentados num gráfico como o mostrado na Figura 29, que representa a dependência angular do campo de saturação para cada amostra. Podemos verificar que esta grandeza aumenta com o aumento da quantidade de *Permalloy* depositada sobre a superfície das nanoesferas. A análise dos valores aproximados da magnetização volumétrica, possibilita a determinação, com boa aproximação, das

características magnéticas do material tais como as constante de anisotropia efetiva [21] [22] [23] [24] [30]. Com o uso do magnetômetro (VSM) que possui a capacidade de medir o momento magnético do material, μ (emu – 10^{-3} Am²), foi determinada a magnetização volumétrica de todas as amostras. Para isso utilizamos a razão das intensidades do momento magnético e o volume V das amostras (equação (5-1)). Os volumes foram obtidos pela medida das dimensões laterais das amostras e multiplicadas pela espessura dos filmes de *Permalloy*, 5 nm, 10 nm e 20 nm.

$$M_V = \frac{\mu}{V} \quad (5-1)$$

Figura 30- Curvas de magnetização das amostras O05, O10 e O20 para campo magnético externo aplicado paralelamente ao plano do substrato ($\theta=0^\circ$). As curvas evidenciam que nesta orientação as amostras magnetizam facilmente.



Fonte: Produzido pelo autor.

As grandezas magnéticas para campos magnéticos aplicados paralelamente ao plano do substrato ($\theta = 0^\circ$) e na direção perpendicular ($\theta = 90^\circ$), são apresentadas nas curvas de magnetização das

Figura 30 e 31. Para campo aplicado em direção paralela, o campo de saturação varia entre 1 kOe e 3 kOe. De outra forma, quando o campo magnético externo é aplicado perpendicularmente, a magnetização de saturação ocorre em campos mais altas (1,9 kOe ~ 10 kOe). Pode-se obter o coeficiente de orientação (ou alinhamento) (

Figura 30), que é um fator de distribuição das direções locais de magnetização em torno da direção média [98]. Foram observados valores baixos para espessuras de 5 nm e 10 nm com magnetização remanente de 30% do valor da magnetização de saturação, e 47% para espessura de 20 nm (Tabela 3). Isto indica o aumento da memória magnética na ausência de campo magnético externo depois de ter sido aplicado no plano. O efeito é provocado pelo aumento da espessura da camada de *Permalloy* sobre a sílica. Este resultado sugere o aumento do alinhamento da magnetização com o eixo fácil. Contudo, os valores do coeficiente de alinhamento (Co) observados na literatura para filmes finos de *Permalloy* magnetizados no plano, são bem diferentes dos encontrados neste trabalho e apresentam valores entre 70% e 90% (em temperatura ambiente) [99] [100] [101]. Esta diferença pode estar associada à geometria esférica da camada de *Permalloy* nas amostras O05, O10 e O20, que pode orientar a magnetização local dos domínios magnéticos para direções diferentes da direção do campo magnético externo.

Tabela 3- Intensidades da magnetização de saturação (M_s), magnetização remanente (M_r), coeficiente de orientação (Co) e coercividade (H_c) das amostras O05, O10 e O20 para campo externo aplicado paralelamente à superfície do arranjo (0°).

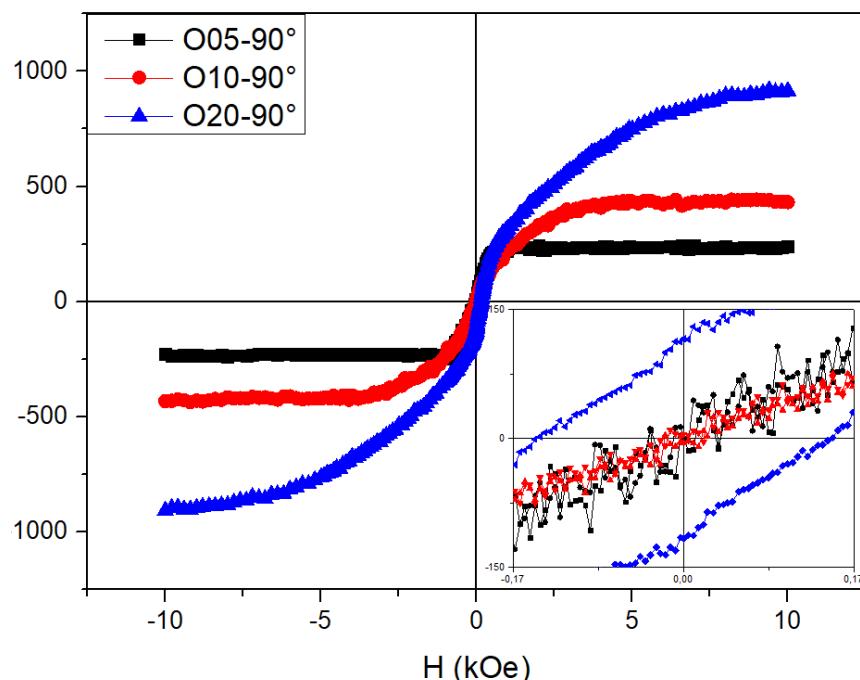
Amostras	M_s (emu/cm ³)	M_r (emu/cm ³)	Co%	H_c (Oe)
O05	204,60	62,53	0,30	13,16
O10	398,39	127,33	0,31	19,80
O20	594,97	283,66	0,47	40,35

Fonte: Produzido pelo autor.

Ainda na Tabela 3 são apresentados os valores da magnetização de saturação e remanência que aumentam com a espessura das camadas magnéticas e apresentam valores que crescem numa taxa média de 1,68 emu/cm³ e 2,13 emu/cm³, respectivamente. Este aumento contribui para o crescimento da anisotropia efetiva e do coeficiente de orientação das amostras O05, O10 e O20. Outro resultado importante ocorre com o campo coercitivo para o qual é esperado (em filmes finos) uma redução da intensidade com o aumento da espessura [102]. Por outro lado, de acordo com os valores apresentados na Tabela 3 há um aumento da coercividade com a espessura, desde 13,16 Oe até 40,35 Oe. É comum relacionar o aumento da

coercividade com a diminuição do número de domínios e paredes de domínios na camada magnética, porém a geometria esférica das camadas aqui estudadas, pode influenciar no aumento da anisotropia e o consequente crescimento da coercividade.

Figura 31- Curvas de magnetização das amostras O05, O10 e O20, com 5 nm, 10 nm e 20 nm de espessura de Permalloy, respectivamente. Campo magnético externo aplicado perpendicularmente ao plano do substrato ($\theta=90^\circ$).



Fonte: Produzida pelo autor.

Com relação às curvas de magnetização para campos externos aplicados perpendicularmente à superfície, pode-se observar uma dificuldade do processo de magnetização para esta direção, Figura 31. A exceção ocorre para a amostra O05 (5 nm) que apresenta curvas de magnetização características de fácil magnetização em todas as direções, como mostrado anteriormente.

Os valores de campo de anisotropia H_k , são apresentados na Tabela 4, sendo 1,9 kOe e 5,1 kOe para as amostras O05 e O10, respectivamente. Com os resultados da magnetização de saturação, campo de anisotropia e usando as equações (2-12) e (2-8), foram calculadas a constante de anisotropia uniaxial (K_u) e a constante de anisotropia efetiva (K_{ef}) apresentadas na Tabela 4. É importante salientar que o campo de anisotropia H_k , e as constantes K_{ef} e K_u para amostra O20 foram obtidas em valores

aproximados, devido a que a saturação não foi atingida para 10 kOe. Portanto estes resultados são apenas para efeitos comparativos. As intensidades encontradas quando comparadas com filmes finos do mesmo material e espessuras aproximadas diferem dos aqui apresentados [103]. Atribui-se isto à geometria esférica que as camadas de *Permalloy* apresentam. Observa-se também que para ambos os casos as constantes aumentam com o crescimento da espessura de *Permalloy*. Considerando que a energia necessária para romper o acoplamento spin-orbita nos átomos da rede cristalina é a energia de anisotropia, o aumento dos valores das constantes sugere que o acoplamento é mais forte para camadas cada vez mais espessas.

Tabela 4- Intensidades da magnetização de saturação, campo de anisotropia, constante de anisotropia efetiva uniaxial e limite de interação de troca, das amostras O05, O10 e O20.

Amostra	M_s (emu/cm ³)	H_K (kOe)	K_{ef} (erg/cm ³)	K_u (erg/cm ³)	L_{ex} (nm)
O05	227,17	1,9	1,90x10 ⁵	2,15x10 ⁵	17,61
O10	440,81	5,1	1,01x10 ⁶	1,10x10 ⁶	9,23
O20	929,54	-	4,12x10 ⁶	4,53x10 ⁶	4,40

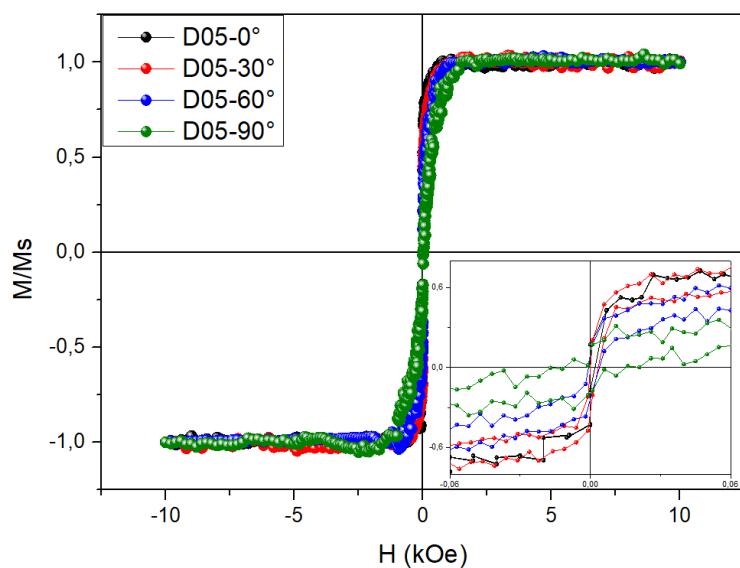
Fonte: Elaborada pelo autor.

Também foi calculado o comprimento de troca, L_{ex} do *Permalloy*, que é um parâmetro que define um limite abaixo do qual as interações de troca tornam-se mais intensas que as magnetostáticas [104]. O comprimento de troca é utilizado em estudos por simulações e define o tamanho discreto médio ideal das células computacionais a serem usadas durante os cálculos. Pode-se observar na Tabela 4 que este comprimento diminui com o aumento da espessura da camada de *Permalloy*. Os valores calculados de acordo com os parâmetros medidos foram entre 17,61 nm e 4,40 nm. A constante A é a constante de troca e para o *Permalloy* $A = 1,3 \cdot 10^{-6}$ (erg/cm) [105] e pode ser relacionado com o comprimento de troca aqui calculado por meio da equação (6-2).

$$L_{ex} = \sqrt{\frac{A}{2\pi M_s^2}} \quad (5-2)$$

Frei et al. [106] revelam que o raio crítico em que ocorre o câmbio de modo de reversão coerente para modo vórtice de uma casca esférica ferromagnética é proporcional a L_{ex} de acordo com $R_{crit} = 3,6 L_{ex}$. Outros estudos realizados por Brown confirmaram este resultado [107].

Figura 32- Curvas de magnetização da amostra D05 (5 nm de espessura) normalizada (M/M_s) em função do campo externo aplicado (H) para diferentes ângulos. Os ângulos 0° , 30° , 60° e 90° são em relação ao plano do substrato.



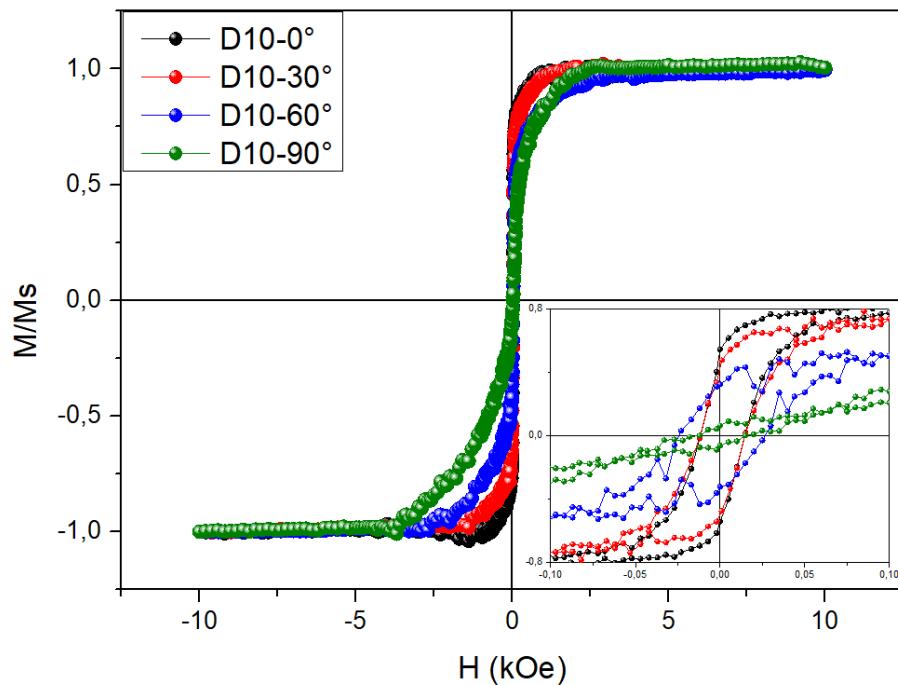
Fonte: Produzida pelo autor.

Para completar o estudo comparativo entre os diferentes arranjos apresentamos os resultados obtidos para esferas desordenadas. A Figura 32 apresenta as curvas de histereses da amostra D05 (5 nm de espessura em arranjo desordenado) para os ângulos de 0° , 30° , 60° e 90° medidos em relação ao plano do substrato. Pode-se fazer um comparativo entre os resultados neste ponto. Para arranjos de nanoesferas ordenadas (O05) e desordenadas (D05) com camadas de 5 nm, pode-se observar que mesmo com a fina camada de *Permalloy*, a magnetização de saturação ocorre em intensidades de campo magnéticos cada vez mais altos quando há o aumento do ângulo de aplicação. Diferentemente do sistema organizado para o desorganizado (D05), o campo de saturação H_s em ângulo de 0° é 0,91 kOe, enquanto em camadas organizadas ocorre em 1,3 kOe. Porém com o aumento da inclinação em 30° , 60° e 90° o campo de saturação é maior que os observados no sistema organizado,

apresentando intensidade de 1,89 kOe, 2,40 kOe e 4,09 kOe, respectivamente. Sugerindo, estes resultados, um aumento da anisotropia uniaxial provocado pela geometria do sistema.

As curvas de histereses para a amostra D10 são apresentadas na Figura 33. É possível observar uma diferença significativa nos resultados para 60° e 90°, com campo de saturação mais altos, 4,13 kOe e 3,14 kOe, respectivamente. Contudo, a intensidade maior ocorre em 60° e não em 90° o que difere do observado na amostra O10 (Figura 33). O aumento significativo do campo de saturação para D10 em 60° e 90° indica aumento de energia de anisotropia uniaxial, principalmente em 60°, possivelmente provocado pela mudança do modo de reversão de magnetização nestas condições de medida.

Figura 33- Curvas de magnetização da amostra D10 (10 nm de espessura) normalizada (M/M_s) em função do campo externo aplicado (H) para diferentes ângulos medidos em relação ao plano do substrato.



Fonte: Produzida pelo autor.

A

Tabela 5 apresenta valores do campo de saturação e da coercividade para as amostras D05, D10 e D20. Pode-se observar que ocorre um aumento da coercividade com o crescimento da camada de *Permalloy*. Este resultado, difere do comportamento observado em camada de *Permalloy* na forma de filme fino, neste caso a tendência é

a redução do campo coercitivo com o aumento da espessura da camada magnética. Tanto para o conjunto de amostras “O” quanto para o conjunto “D”, ocorreu aumento de H_c com o aumento da espessura de *Permalloy*. Geralmente o aumento da coercividade, está relacionado com o aumento do número de domínios e paredes de domínios no interior das camadas magnéticas. Em ambos os casos (“O” e “D”), este incremento da coercividade pode estar relacionado ao ordenamento das nanocapas de *Permalloy*. As capas magnéticas tem maior quantidade de material no topo das esferas devido ao método de deposição utilizado, diminuindo quando mais afastado do topo.

Tabela 5- Intensidade do campo de saturação e do campo coercitivo observados em ângulos de 0°, 30°, 60° e 90°. A comparação entre amostras indica aumento do campo de saturação com o crescimento da espessura de *Permalloy*, sugerindo o surgimento de forte anisotropia uniaxial a partir de D10 (90°) e D20 (0° a 90°) dando indícios de uma mudança no modo de reversão provocado pelo surgimento de novas paredes de domínio.

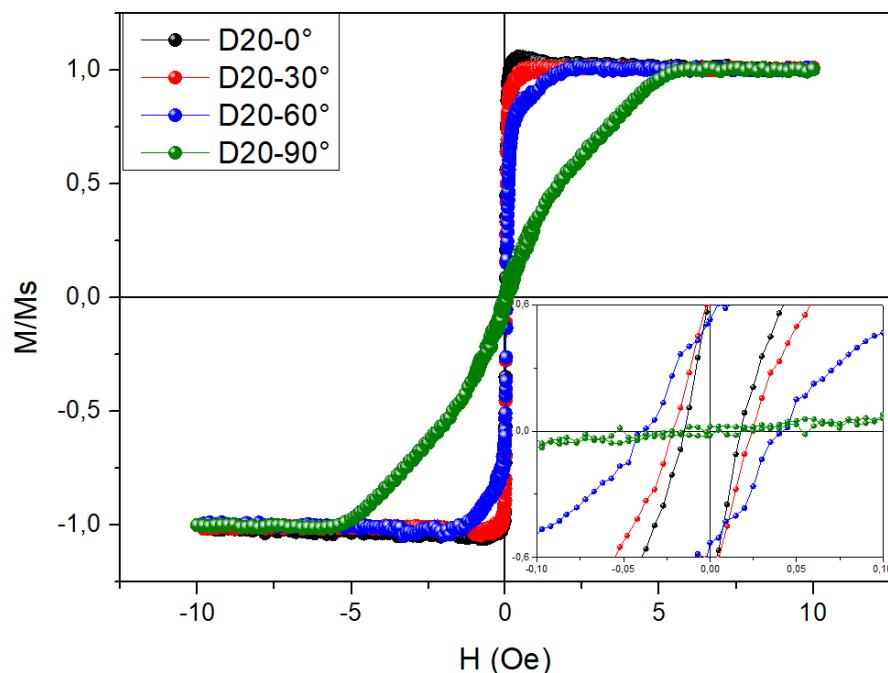
Ângulo (°)	D05	D10	D20	D05	D10	D20
	H_s (kOe)	H_s (kOe)	H_s (kOe)	H_c (Oe)	H_c (Oe)	H_c (Oe)
0	0,91	3,10	1,71	1,99	14,70	17,65
30	1,89	3,58	1,42	3,42	14,68	24,69
60	2,40	4,13	3,09	3,92	26,62	42,07
90	4,09	3,14	5,98	15,15	15,33	25,01

Fonte: Elaborada pelo autor.

Era esperado também, um aumento da coercividade até o ângulo de 60° com um decréscimo posterior em 90°. Porém, a amostra D05 não apresenta este comportamento, provocado provavelmente pela desorganização das nanoesferas. Além disso, as intensidades de H_c do conjunto de amostras “D” são significativamente menores que as intensidade encontradas no conjunto “O”, Tabela 5. Este resultado, mais uma vez pode ser provocado pelo modo organizacional das nanoesferas que apresentam espaços entre elas e assim existe uma falha organizacional do arranjo. Isto, permite que a liga *Permalloy* possa ser depositada diretamente no substrato de vidro, formando filmes finos planares em algumas regiões e influenciando no valor da coercividade. A histerese magnética da amostra D20, com 20 nm de espessura de

Permalloy é apresentada na Figura 34. Pode-se observar uma tendência para uma provável mudança do modo de reversão de magnetização provocado pela formação de novas paredes de domínio.

Figura 34- Curvas de magnetização da amostra D20 (20 nm de espessura) normalizada (M/M_S) em função do campo externo aplicado (H) para diferentes ângulos em relação ao plano do substrato.



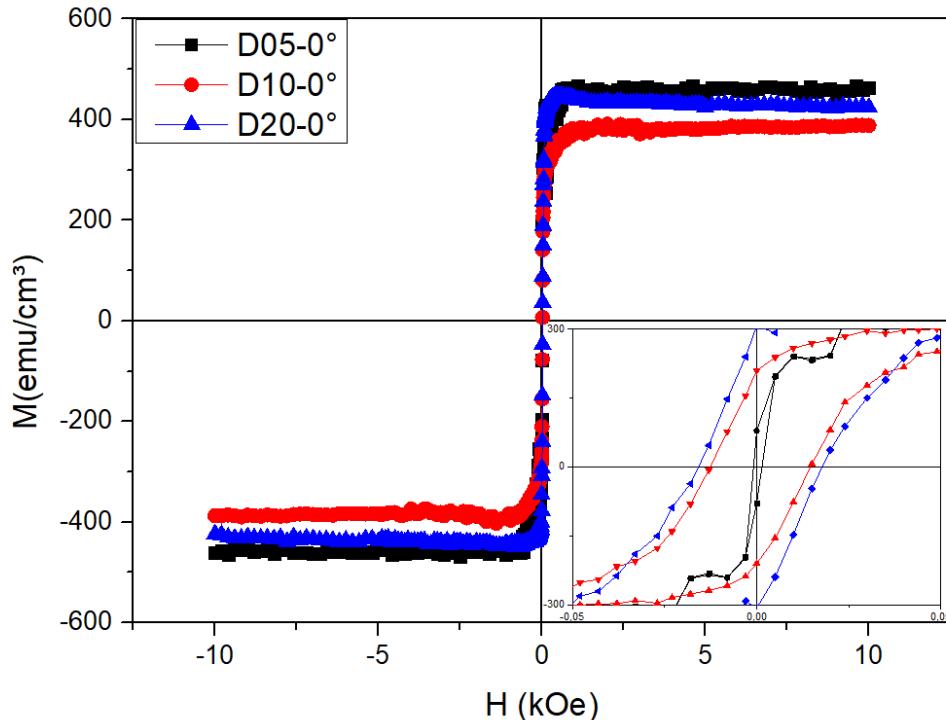
Fonte: Produzida pelo autor.

Apesar de ser mencionado no início deste capítulo, que todas as amostras demonstraram curvas característica de reversão magnética por rotação coerente, o resultado apresentado pela amostra D20 na Figura 34 com campo perpendicular, demonstra uma possível tendência de mudança do modo de reversão para o modelo de vórtice. O aumento do campo de saturação ocorreu apenas a partir de 60° com H_S máximo em 90° para todas as amostras “D”. Curiosamente, o campo de saturação em 0° e 30° tem os valores de 1,71 kOe e 1,42 kOe, respectivamente. Possivelmente estes pequenos valores deve-se à formação de filmes finos diretamente no substrato,

nos locais de falhas do ordenamento. Isto também condicionaria a rápida saturação para ângulos baixos.

Valores estimados da magnetização volumétrica, M_V utilizando a (equação (5-1)) são apresentados na Tabela 6. A determinação de características magnéticas como constantes de anisotropia uniaxial e efetiva para camadas de 5 nm, 10 nm e 20 nm também foi realizada. Para comparar os valores de cada espessura foi feito um comparativo entre as amostras D05, D10 e D20, com campo magnético aplicado no plano (0°) e perpendicular ao substrato (90°). Esta família de amostras apresenta campos de saturação (H_s) mais baixos em 0° , sendo maior significativamente para a amostra D10, quando relacionada com D05 e D20. O aumento do campo de saturação é observado medidas fora do plano do arranjo, com valores variando entre 3,14 kOe e 5,98 kOe.

Figura 35- Curvas de magnetização das amostras D05, D10 e D20, com 5 nm, 10 nm e 20 nm de espessura de *Permalloy* com campo magnético aplicado paralelamente ao plano do substrato ($\theta=0^\circ$).



Fonte: Produzida pelo autor.

Como mostra a Tabela 6, o coeficiente de orientação (C_o) para arranjos desorganizados “D” apresentou crescimento com o aumento da espessura da camada

magnética. A remanência foi de 30%, 50% e 70% da M_s para espessuras de 5 nm, 10 nm e 20 nm, respectivamente. Estes resultados reforçam o fato da formação de filmes de *Permalloy* no substrato de vidro, abaixo do conjunto de nanoesferas. Entrando estão em consonância com resultados apresentados na literatura, que demonstram alto valor do coeficiente de orientação em filmes finos com estas características [108] [109]. O grupo de amostras organizadas “O” (Tabela 3) apresenta resultados que tornam mais evidente a influência da organização das camadas magnéticas. O conjunto “O” apresenta crescimento médio do coeficiente de orientação a uma taxa de 27%, enquanto o crescimento médio para o grupo de amostras “D” é de 62%. A influência da organização é reforçada pela diminuição do campo coercitivo na comparação dos dois conjuntos de amostras mencionados. Para o grupo “D” há drástica diminuição, possivelmente provocado pela interação das camadas magnéticas das nanoesferas e do filme sobre o substrato de vidro. Observa-se que C_o , para a amostra D05, apresenta aproximadamente o mesmo percentual de momentos magnéticos em remanência que a amostra O05. No entanto, o coeficiente de alinhamento é aumentado para 54% e 71% para amostras D10 e D20, respectivamente. Resultados recentes para filmes finos ferromagnéticos apresentam percentuais entre 70% e 90% [99] [100] [101]. Reforçando a hipótese de que há formação de filmes finos sobre o substrato de vidro abaixo das nanoesferas de sílica nas amostras “D”.

Tabela 6- Intensidade da magnetização de saturação (M_s), magnetização remanente (M_r), coeficiente de orientação (C_o) e coercividade (H_c) das amostras D05, D10 e D20 submetidas a campo externo aplicado paralelamente à superfície (0°).

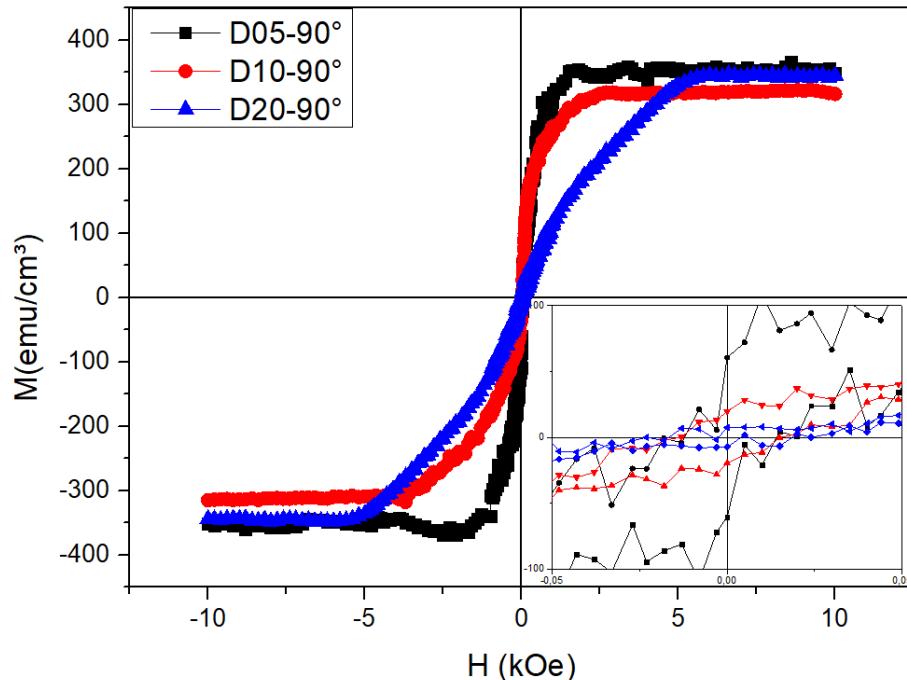
Amostras	M_s (emu/cm ³)	M_r (emu/cm ³)	C_o	H_c (Oe)
D05	462,58	132,01	0,28	1,99
D10	387,93	210,67	0,54	14,7
D20	425,02	300,30	0,71	17,68

Fonte: Elaborada pelo autor.

O campo coercitivo observando separadamente os dois conjuntos de amostras, apresenta crescimento com o aumento da camada magnética e para todos os arranjos, provocado pela geometria esférica das nanocapas, diferente da geometria

planar de filmes finos, em que é esperada uma redução da coercitividade com o aumento de espessura de *Permalloy* [102] [110].

Figura 36- Curvas de magnetização das amostras D05, D10 e D20, com 5 nm, 10 nm e 20 nm de espessura de *Permalloy* com campo magnético externo aplicado perpendicularmente ao plano do substrato ($\theta=90^\circ$).



Fonte: Produzida pelo autor.

As curvas de magnetização para H aplicado perpendicularmente à superfície do substrato (Figura 36), apresentam características de uma orientação de fácil magnetização para D05 e D10. Curiosamente, amostras com 5 nm e 10 nm de *Permalloy* demonstram uma maior facilidade na magnetização nesta direção se comparado com amostra D20, confirmados pelas intensidades dos campos de anisotropia de 3,50 kOe e 2,89 kOe, respectivamente. Este valor é menor do que o apresentado por D20 (6,60 kOe). Estas variações, mostraram serem sensíveis à espessura da capa de *Permalloy*, provocado por um campo desmagnetizante produzido pelo próprio arranjo que é gerado, no sentido oposto ao campo magnético externo [42]. Há também o campo desmagnetizante provocado por cada uma das nanocapas individualmente. Em capas mais grossas os efeitos dipolares internos são mais fracos que em capas finas, o campo coercitivo diminui, as superfícies interna e

externa da borda das capas ficam mais próximas. Isto aumenta a interação dipolar que gera um campo aproximadamente radial oposto ao externo. As contribuições dipolares horizontais diminuem devido à influência de nanocapas próximas, quando estas são mais finas, restando a contribuição perpendicular ao arranjo [111]. Os valores de algumas grandezas importantes são apresentados na Tabela 7, entre eles a magnetização de saturação, a constante de anisotropia uniaxial e a constante de anisotropia efetiva, obtidas pelas equações (2-12) e (2-8).

Tabela 7- Intensidades de magnetização de saturação, campo de anisotropia, constante de anisotropia efetiva uniaxial e limite de interação de troca das amostras D05, D10 e D20, respectivamente.

Amostra	M_s (emu/cm ³)	H_k (kOe)	K_{ef} (erg/cm ³)	K_u (erg/cm ³)	L_{ex} (nm)
D05	351,22	3,50	$5,53 \times 10^5$	$6,15 \times 10^5$	11,36
D10	314,86	2,89	$4,07 \times 10^5$	$4,56 \times 10^5$	12,67
D20	343,86	6,60	$1,08 \times 10^6$	$1,14 \times 10^6$	11,60

Fonte: Elaborada pelo autor.

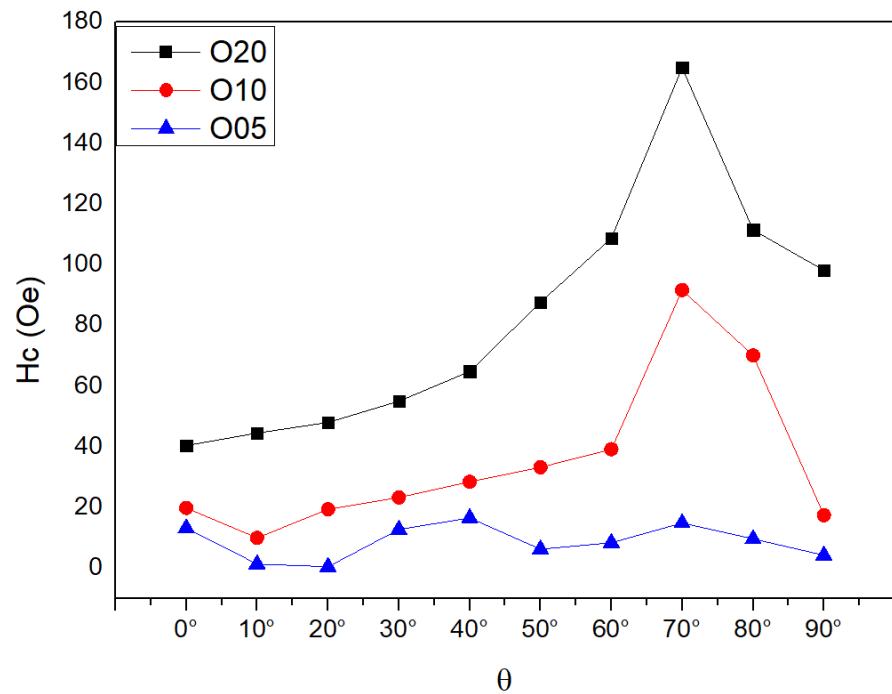
Observa-se, também que para amostras “O” e “D”, as constantes de anisotropia uniaxial e efetiva aumentam com o crescimento da camada de *Permalloy*. Considerando que a energia necessária para romper o acoplamento spin-orbita é a energia de anisotropia, o aumento destas constantes sugere que o acoplamento em amostras com esferas desorganizadas é mais forte em camadas mais espessas [112] [113] [114]. No entanto o acoplamento é menor em relação ao observado em arranjos organizados de capas de *Permalloy*. O comprimento de troca calculado para o *Permalloy*, neste tipo de configuração apresentou um valor médio 11 nm. Não houve diminuição do comprimento de troca para nanocapas desordenadas, diferente ao resultado obtido em arranjos ordenados.

5.3.2 Dependência angular da coercividade e da remanência

Como já mencionado no tópico anterior, foi observado que com o aumento da espessura de *Permalloy* a coercividade também aumenta. No entanto, já é amplamente conhecido que ao diminuir o tamanho das partículas, em sistemas de

único domínio, a coercividade também diminui devido à redução da energia de anisotropia magnetocristalina provocada pela redução do volume das partículas [84] [21] [34]. No intuito de se realizar um estudo do comportamento da magnetização, foi realizada análise com o campo magnético aplicado formando ângulos de 0° a 90° com o plano do arranjo. Dessas curvas foram retirados os valores de coercividade e remanência com a finalidade de entender a dependência angular destas duas grandezas. A Figura 37 mostra os resultados obtidos a partir dos ciclos de histereses feitos para o sistema ordenado “O” de amostras. Pode-se observar que em todos os casos, existe uma tendência de aumento da coercividade com o aumento do ângulo até 70° , e um decréscimo acentuado para os ângulos de 80° e 90° .

Figura 37- Dependência angular do campo coercitivo das amostras ordenadas “O”. O ângulo considerado entre o campo externo aplicado (H) e o plano do arranjo (0°).



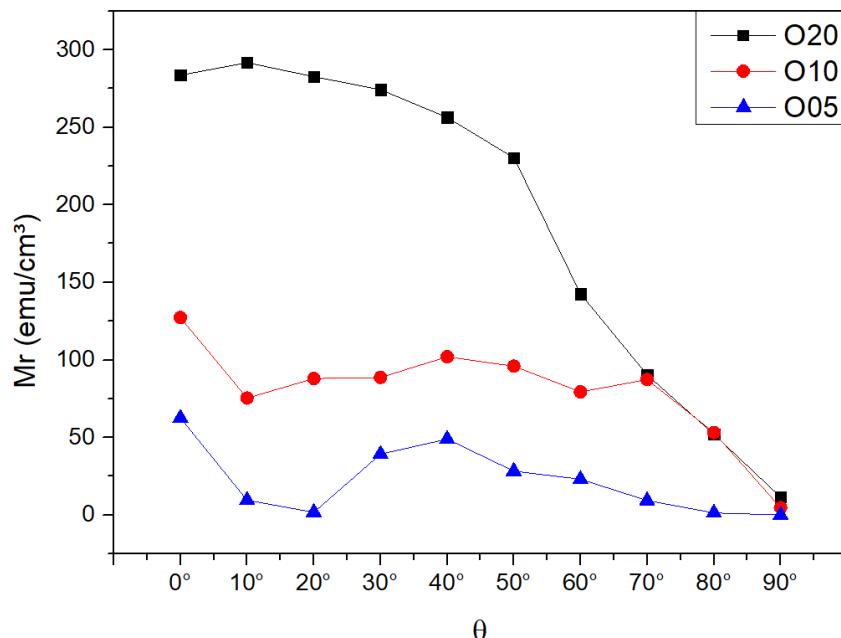
Fonte: Produzida pelo autor.

Os valores da coercividade são semelhantes aos reportados na literatura para nanoesferas ocas de *Permalloy*, que ficam na faixa de 10 Oe a 115 Oe [113]. São também de comportamento aproximados para nanobastões de *Permalloy* que varia entre 40 Oe e 160 Oe e ligeiramente maiores que nanocilindros de *Permalloy* [115]. Apresentam coercividades maiores quando comparada com camadas semiesféricas

de *Permalloy* com tamanhos maiores, na faixa de 180 μm a 230 μm [116], muito semelhantes aos resultados de sistemas semiesféricos (*Permalloy*) [117] com faixa de tamanhos, que se assemelham ao grupo de amostras “O” apresentados neste trabalho e são maiores que as coercividades encontradas em filmes finos de *Permalloy*, entre 10 nm e 190 nm de espessura [114].

As curvas mostram um pico próximo a 70°, este pico é o indicativo para a mudança do modo de reversão dos momentos magnéticos, que é o resultado da competição entre as energias dipolar e Zeeman. Os momentos magnéticos tendem a manter a mesma orientação do campo magnético externo aplicado, minimizando a energia Zeeman. No entanto, como observado, o eixo de fácil magnetização é orientado na direção paralela ao plano dos arranjos. Existe também outro eixo de fácil magnetização, provocado por contribuições dos efeitos dipolares, na direção perpendicular ao plano (mencionado no tópico anterior), devido à proximidade das nanocapas vizinhas. A duas contribuições, Zeeman e dipolar resulta em uma nova orientação de fácil magnetização intermediária que mantém os momentos magnéticos nesta direção e por isso o pico da coercividade na direção 70° [111].

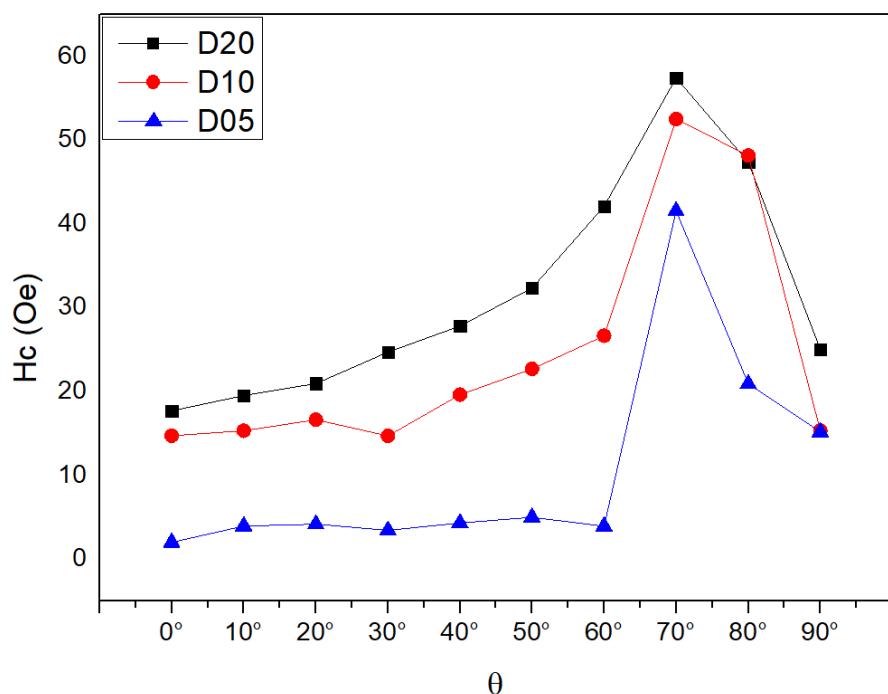
Figura 38- Mr em função do ângulo θ entre o campo externo aplicado e o plano do substrato (amostras ordenadas). resultados demonstram o eixo de fácil magnetização corresponde ao ângulo de 0°.



Fonte: Produzida pelo autor.

Como as energias dipolares diminuem com o aumento da espessura das capas de *Permalloy*, este efeito torna-se maior pois estas contribuições dipolares estão desmagnetizando. Portanto, os picos de H_c tornam-se maiores em quando a espessura da capa aumenta, que é quando as contribuições dipolares diminuem. Há também a influência da energia magnetocrystalina, mas como já mencionado, sua influência não altera significativamente no resultado global da orientação dos momentos magnéticos. Pois à medida que o ângulo da direção do campo magnético aplicado aumenta, a remanência diminui até o mínimo na direção perpendicular (Figura 38)

Figura 39- Dependência angular do campo coercitivo. O ângulo considerado entre o campo externo aplicado (H) e o eixo de fácil magnetização do sistema (0°). O resultado apresenta correspondências com o modelo teórico da coercividade de Kondorsky.



Fonte: Produzida pelo autor.

A relação entre espessura da camada magnética de *Permalloy* com a coercividade para amostras D05, D10 e D20 foi também analisada. Neste caso, foi considerado apenas influências das energias dipolares e Zeeman para explicar os comportamentos. Isso devido a que estas são as principais contribuições para a coercividade de cada amostra. A Figura 39 apresenta o campo coercitivo de cada

amostra, na faixa angular de 0° a 90° e medido a partir do plano do substrato. Vale ressaltar que a espessura magnética determina, também, a coercividade de cada amostra, os resultados demonstram que da mesma maneira que o sistema de arranjos ordenados “O” o aumento da espessura de *Permalloy* produz também um aumento na coercividade. Do mesmo modo que no sistema “O”, as competições entre as energias Zeeman e dipolar resultou em uma nova orientação intermediária de fácil magnetização a 70°. Contudo, pode-se observar que os valores da coercividade do conjunto de amostras “D”, não teve grandes mudanças, provavelmente provocado pela desorganização das capas magnéticas. Comparativamente, a variação percentual relativa da coercividade quando comparadas as amostras “O” e “D” da mesma espessura foi de 14,48%, 20,37% e 60,25 %, respectivamente. A Tabela 8 apresenta de forma resumida os valores destas coercividades (em Oe) para todas as amostras nos ângulos 0°, 30° 60° e 90°.

Tabela 8- Variação percentual relativa entre valores de coercividade comparando as amostras organizadas (“O”) e desorganizadas (“D”) de mesma espessura.

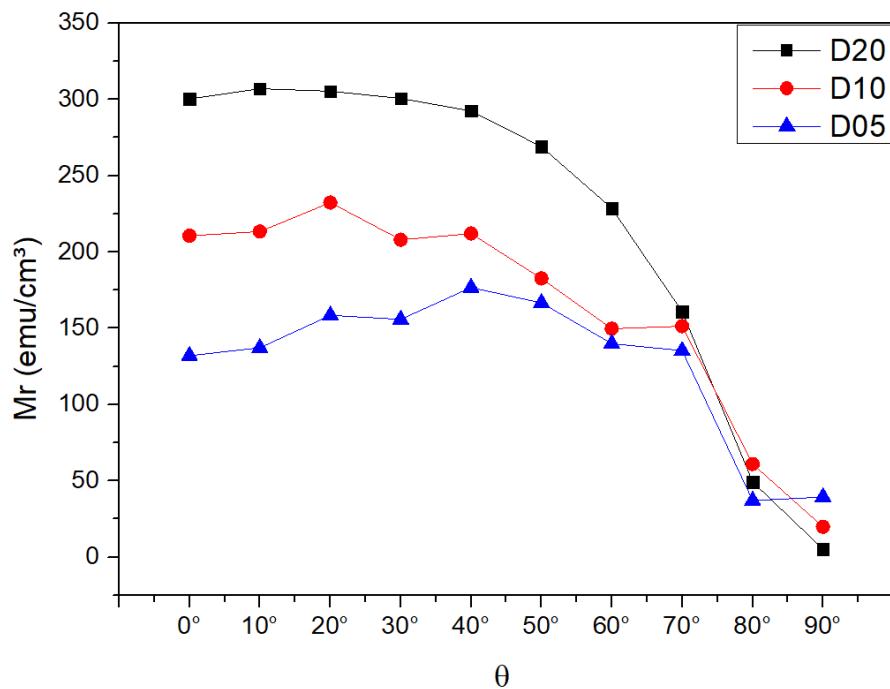
Amostra	0°	30°	60°	90°	Ganho (%)
D05	1,99	3,42	3,92	15,15	
O05	13,16	12,75	8,35	4,21	14,48
D10	14,70	14,68	26,62	15,33	
O10	19,80	23,26	39,14	17,41	20,37
D20	17,68	24,69	42,07	25,01	
O20	40,35	54,99	108,66	98,12	60,25

Fonte: Elaborada pelo autor.

O crescimento da coercividade até o pico máximo ocorre em todos os casos. Os valores da coercividade encontrados são ligeiramente inferiores aos descritos na literatura para nanoesferas ocas de *Permalloy* [113] [115]. A Figura 40 apresenta a relação da magnetização remanente (M_r) com o ângulo. A análise da dependência angular da magnetização remanente, mostra que o valor máximo corresponde a um ângulo de 0° e diminui com o desvio da direção do campo magnético externo aplicado à amostra. A diminuição do valor de M_r das camadas magnéticas de *Permalloy* sobre

o arranjo de nanoesferas de sílica pode ser atribuído às irregularidades das superfícies geradas pelas formas esféricas.

Figura 40- Mr/Ms em função do ângulo θ entre o campo externo aplicado e o plano do substrato. Resultados corroboram a hipótese de que o eixo de fácil magnetização corresponde ao ângulo de 0° .



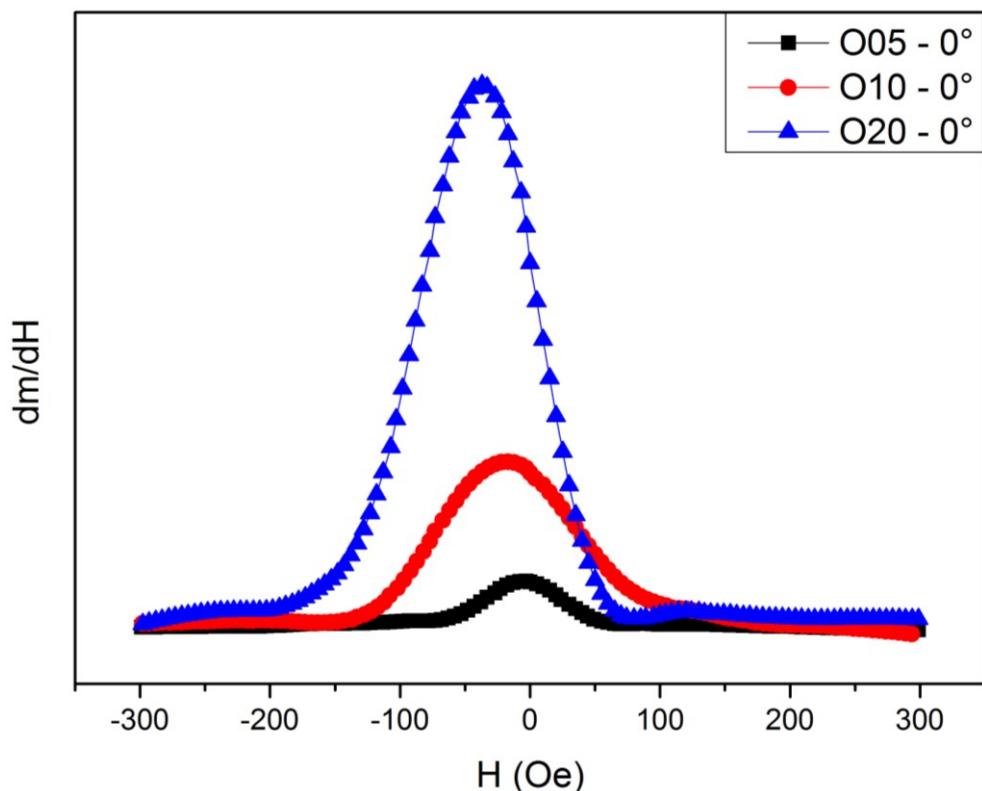
Fonte: Produzido pelo autor.

Apesar das amostras desorganizadas “D” apresentarem algumas regiões sem esferas como mostrados em imagens obtida por MEV (Figura 21), as competições entre as energias Zeeman e dipolar ainda resultou em orientação intermediaria de fácil magnetização, por sua vez isto provoca uma diminuição da coercividade. Pode-se observar na Figura 40 que os valores de remanência são relativamente maiores que os valores encontrados nas amostras “O”. Contudo, se sugere que não há alteração na orientação dos momentos magnéticos, já que também há diminuição da remanência com o aumento do ângulo do campo magnético aplicado.

5.3.3 Switching Field (SFD) em função da espessura e do ordenamento

A análise da histerese magnética por meio da susceptibilidade diferencial permite observar a distribuição do campo de comutação (SFD) que mostra as mudanças bruscas dos momentos durante a curva de magnetização. O resultado pode gerar um padrão de picos que oferece informações valiosas sobre a reversão dos momentos no material [118] [119]. As curvas de magnetização podem não mostrar indícios de uma característica específica de reversão. Deste modo, o estudo da distribuição do campo de comutação pode revelar características importantes, como a uniformidade da microestrutura, acoplamento de troca e interações dipolares, etc. [118] [120].

Figura 41- Distribuição do campo de comutação (SFD). Primeira derivada da curva de magnetização no segundo quadrante para ordenadas (O) de diferentes espessuras. Com campo magnético externo aplicado com ângulo de 0° com a superfície da amostra.

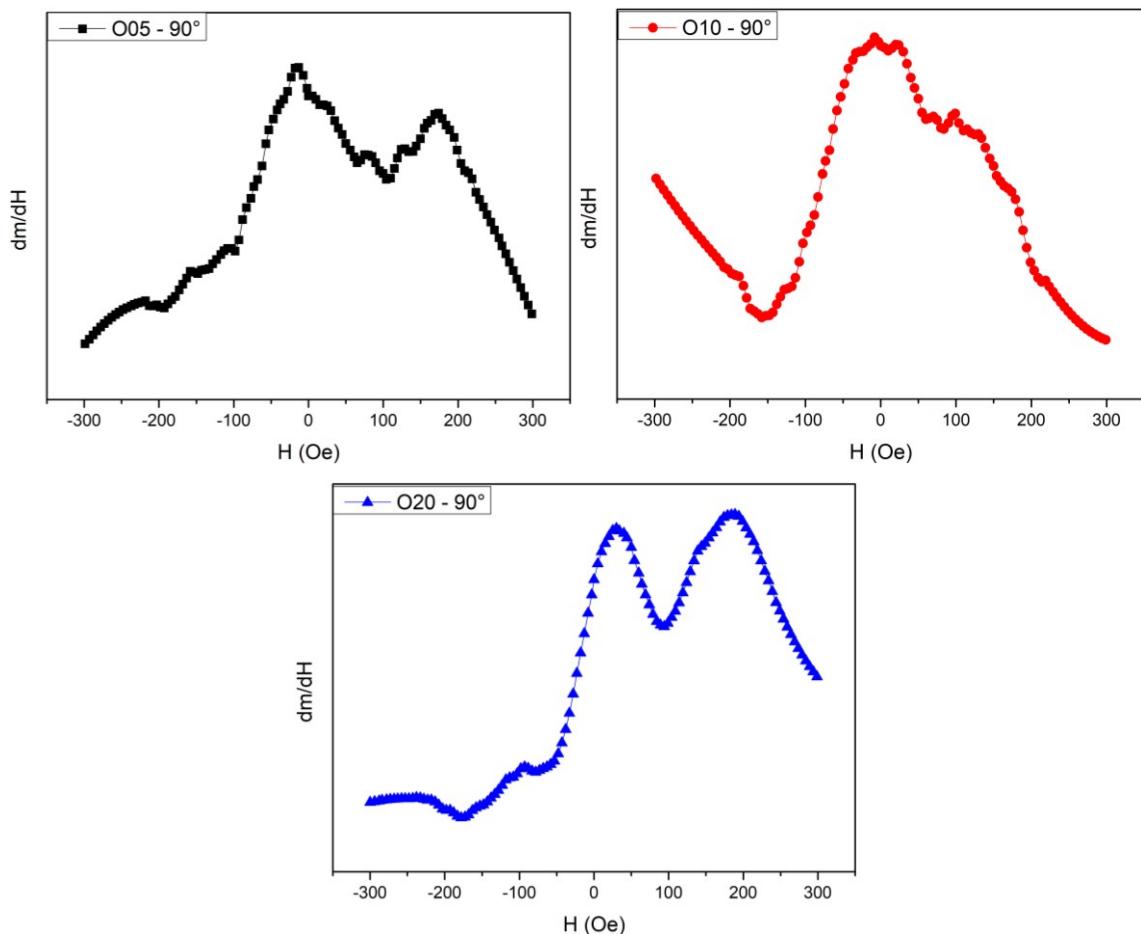


Fonte: Produzida pelo autor.

A Figura 41 apresenta a distribuição do campo de comutação do conjunto de amostras organizadas “O”, obtidas a partir das curvas de magnetização a 0°. As curvas apresentam apenas um pico, sendo este um indicativo de uniformidade das microestruturas do *Permalloy*, confirmado pelos resultados de DRX e MEV deste conjunto de amostras. Isto indica que o acoplamento de troca ocorre eficientemente [121], o que é confirmado pelo comprimento de interação de troca L_{ex} (equação (5-2)) que revela tamanhos de 19,50 nm, 10,01 nm e 6,71 nm para amostras O05, O10 e O20, respectivamente, calculados para 0°. Estes valores são maiores que os encontrados para as mesmas amostras calculados para 90°. É importante reforçar que abaixo do limite L_{ex} as interações de troca tornam-se mais intensas que as interações magnetostáticas. Portanto, quanto maior o L_{ex} maior a possibilidade de interações de troca tornarem-se dominante. Outro ponto importante são os picos das distribuições do campo de troca, pois além deste ponto a desmagnetização torna-se irreversível. Além disso, quanto mais estreita é a distribuição maior a tendência de irreversibilidade [122]. Observa-se que para arranjos de capas magnéticas organizadas, com o aumento da espessura de *Permalloy* maior o valor de troca irreversível.

A Figura 42 mostra a distribuição do campo de comutação do arranjos bidimensionais desordenados “O” calculados do trecho de remanência das histereses a 90° (Figura 31). Os gráficos foram apresentados separadamente devido à grande diferença de intensidade de picos que existe entre O20-90° e as demais. Todas as distribuições da Figura 42 apresentam dois picos, provocado possivelmente pela diferença do tipo de rotação de momentos magnéticos entre eles [123] gerando uma inversão do momento magnético em 2 passos. Isto revela uma competição entre as interações de troca e dipolares. Esta competição é caracterizada por um gráfico de distribuição de campo de comutação com primeiro pico antes de chegar em campo (H) zero [124]. Também é indicativo da ineficiência do acoplamento de comutação e após o primeiro pico característico, o segundo pico geralmente são maiores e definem o ponto em que além dele a desmagnetização torna-se irreversível. Comparativamente, as distribuições observadas nas Figura 41 e Figura 42 há um alargamento nas distribuições de campo a 90°, o que reforça o indicativo do comportamento de comutação irreversível [122].

Figura 42- Distribuição do campo de comutação (SFD). Primeira derivada da curva de desmagnetização no segundo quadrante para amostras ordenadas (O) de diferentes espessuras. Com campo magnético externo aplicado com ângulo de 90° em relação à superfície da amostra.

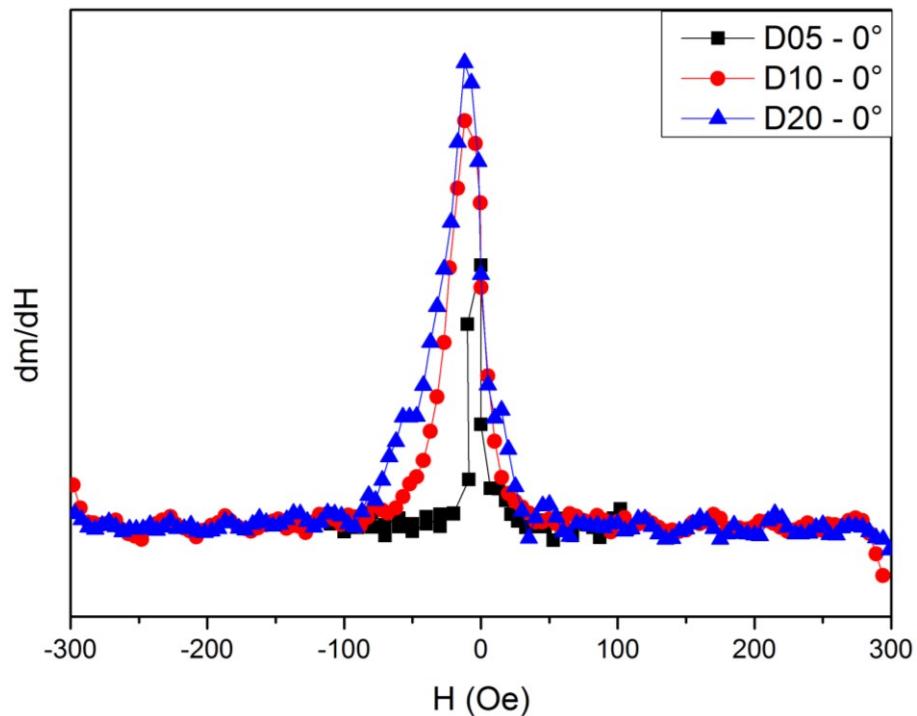


Fonte: Produzida pelo autor.

A distribuição do campo de comutação do grupo de amostras capas desordenadas “D” é apresentada na Figura 43. O aumento da coercividade associado ao tamanho da espessura das capas de *Permalloy* foi menos evidente, provocado pela configuração dos arranjos e competições entre energias Zeeman e dipolar (explicitado em tópicos anteriores). Todas as curvas apresentam apenas um pico, evidenciando uma maior uniformidade das microestruturas e eficiência no acoplamento de troca [121]. Os picos mais agudos são também indicativos de que apenas o acoplamento de troca é responsável pela reversão [123]. A largura da SFD (distribuição do campo de comutação) é uma característica de um chaveamento magnético individual das

nanoesferas que estão isoladas de outras esferas, que é uma característica do grupo de arranjos “D”, e está relacionado à variação da constante de anisotropia uniaxial K_u , como se houvesse um campo de nucleação para cada capa isolada. [122] [124].

Figura 43- Distribuição do campo de comutação (SFD) amostras desorganizadas “D”. Primeira derivada da curva de magnetização no segundo quadrante para amostras de diferentes espessuras. Com campo magnético externo aplicado com ângulo de 0° com a superfície da amostra.

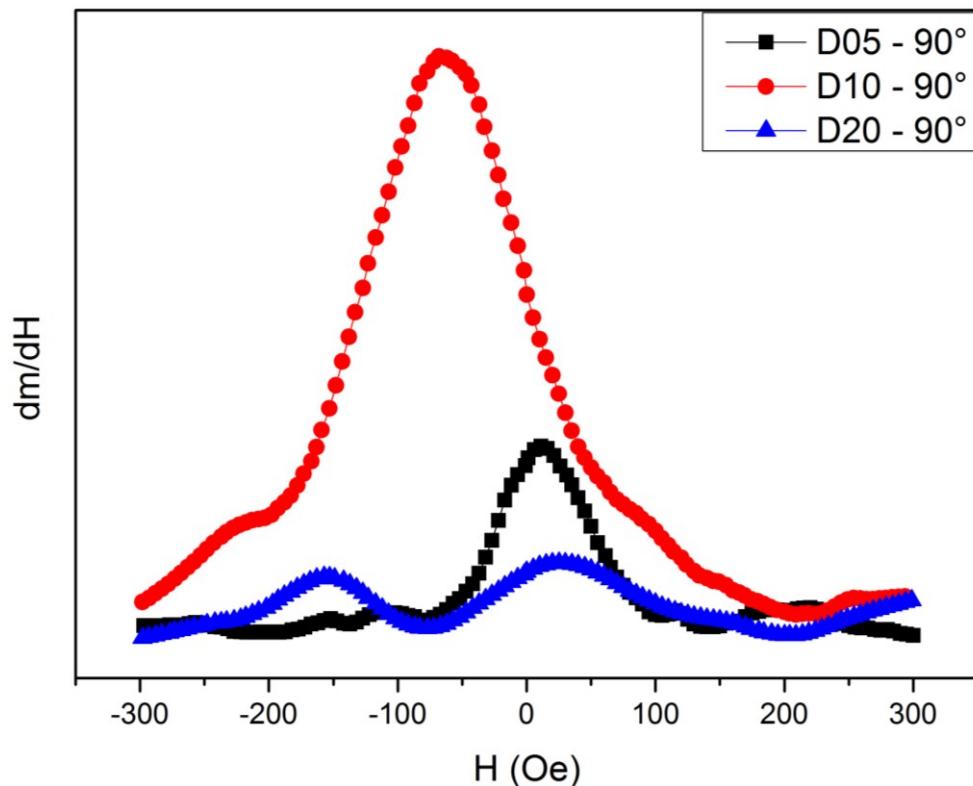


Fonte: Produzida pelo autor.

A Figura 44 apresenta as distribuições do campo de comutação dos arranjos bidimensionais de capas de *Permalloy* desordenadas “D” obtidas do trecho de remanência das curvas de histereses (Figura 36). Curiosamente apenas a amostra D20 apresentou duplo pico, característico de dois tipos de rotação de momentos magnéticos. A inversão dos momentos magnéticos em duas etapas sugere que a competição da interação de troca e dipolares são influenciadas, neste tipo de arranjo pela espessura das capas. Enquanto as amostras D05 e D10 mostram características de reversão de magnetização por troca ou comutação da magnetização a amostra D20 sugere que há outro modo de reversão dos momentos magnéticos. Como explicado no capítulo 3 a comutação de magnetização ocorre com um salto na

magnetização que parte de um mínimo local para outro sem passar por outras orientações intermediárias gerando uma mudança abrupta e irreversível na magnetização.

Figura 44- Distribuição do campo de comutação (SFD). Primeira derivada da curva de magnetização no segundo quadrante para ordenadas (O) de diferentes espessuras. Com campo magnético externo aplicado com ângulo de 90° com a superfície da amostra.



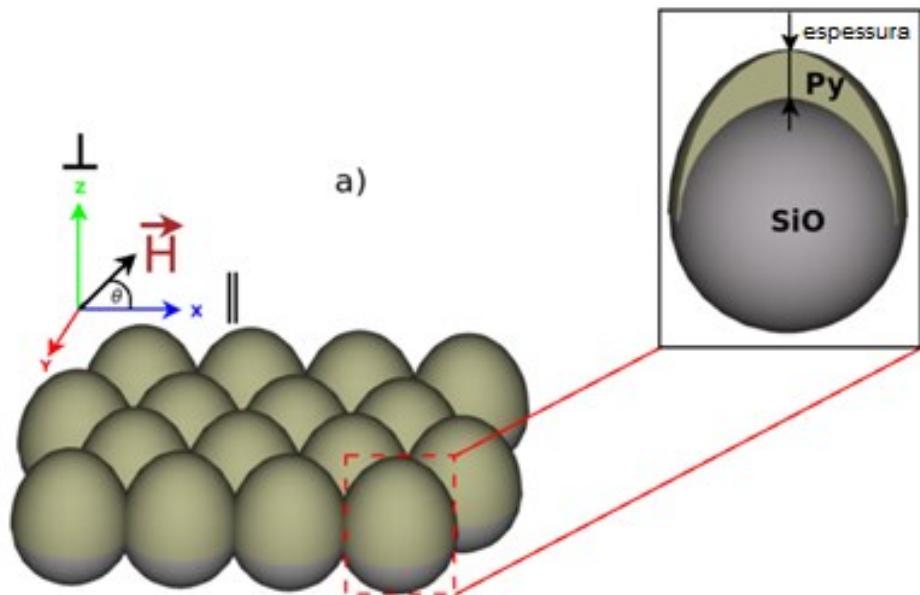
Fonte: Produzida pelo autor.

5.4 COMPARAÇÕES DE RESULTADOS EXPERIMENTAIS E CALCULADOS POR SIMULAÇÃO

Neste tópico estão uma combinação de análises experimentais e de simulação micromagnética sobre a dependência angular da coercividade em arranjos de nanocapas sobre nanoesferas de sílica com 5 nm, 10 nm e 20 nm de espessura depositadas sobre o arranjo ordenado de nanoesferas de sílica. As curvas de

histereses foram simuladas usando o pacote 3D OOMMF [125] para diferentes ângulos aplicados em relação ao plano do arranjo, como mostra a Figura 45.

Figura 45- Arranjo hexagonal bidimensional formado por dezesseis *nanocaps* de Py. Com campo magnético externo aplicado em diferentes direções em relação ao plano do arranjo.

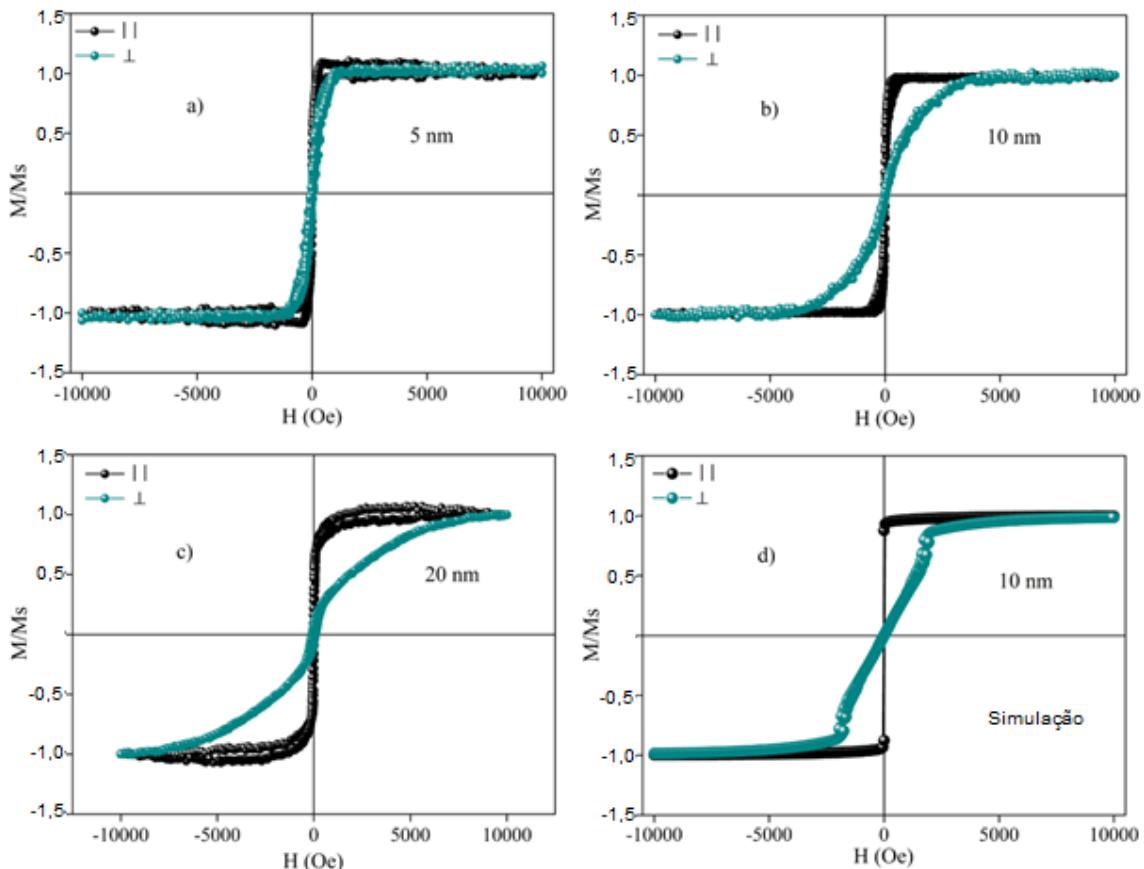


Fonte: Produzida pelo autor.

A Figura 46 (a-c) apresenta os laços de histereses na direção perpendicular e paralela de arranjos 2D de nanocapas semelhantes aos arranjos produzidos experimentalmente, cobertas com 5 nm, 10 nm e 20nm de *Permalloy*. Pode-se observar que a camada ferromagnética com variação do formato das curvas de histereses para as diferentes espessuras de Py. A Figura 46d mostra a curva de histerese simulada para nanocapas de 10 nm de espessura. Comparando as curvas experimentais e simuladas, pode-se perceber semelhanças. Há um possível eixo de fácil magnetização na direção paralela ao plano e eixo duro na direção perpendicular, sendo mais evidente para as nanocapas com espessuras de 10 nm e 20 nm. O campo de desmagnetização é menor na direção paralela sendo mais fácil de magnetizar. Neste caso, o campo desmagnetizante é maior na direção perpendicular e menor na direção paralela para todas amostras. Estes resultados são corroborados com valores

do campo desmagnetizante obtidos a partir da simulação micromagnética para o estado saturado, apresentado na Tabela 9.

Figura 46- Curvas de histereses para *nanocapas* de *Permalloy* ordenados, para campos aplicado na direção paralela ao plano do arranjo e perpendicular.



Fonte: Produzida pelo autor.

Tabela 9- Valores do campo de desmagnetização para o estado saturado obtido pela M_s para diferentes espessuras de nanocapas.

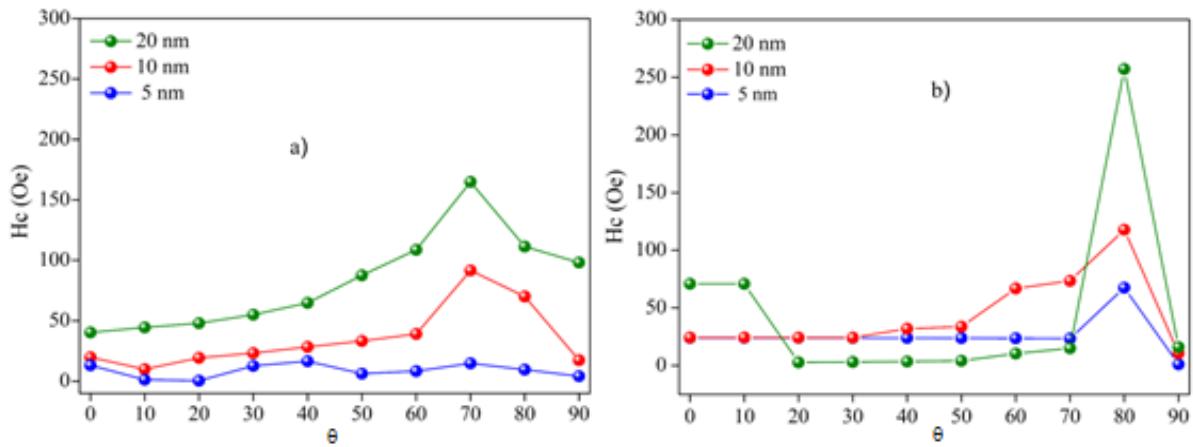
Espessura	5 nm	10 nm	20 nm
Paralelo	-802,8 Oe	-1048,5 Oe	-1265,6 Oe
Perpendicular	-4204,2 Oe	-4938,1 Oe	-5132,2 Oe

Fonte: Elaborada pelo autor.

A dependência angular do campo coercitivo (H_c) para as amostras experimentais e simuladas é mostrada na Figura 47 a e b. Pode-se ver na Figura 47a que o H_c atinge um pico próximo a 70° , que aumenta sua intensidade à medida que a espessura da

nanocapa aumenta. Este comportamento é qualitativamente reproduzido pela simulação micromagnética Figura 47b, que neste caso a coercividade aumenta até atingir um máximo em 80°.

Figura 47- Dependência angular da coercividade para arranjos de nanocapas hemisféricas de *Permalloy*. a) Resultados experimentais b) Simulação micromagnética.



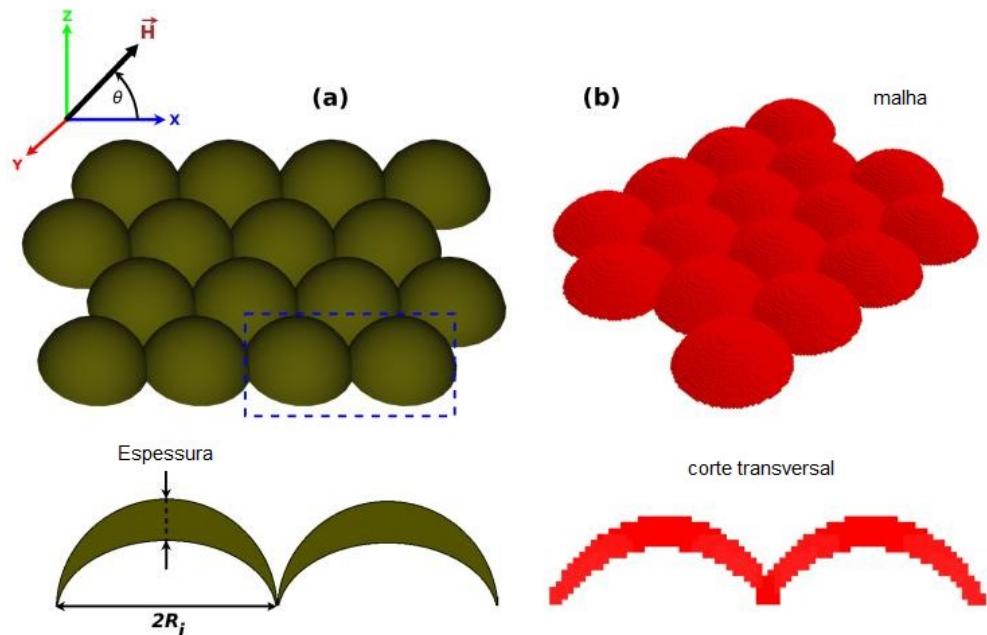
Fonte: Produzida pelo autor.

A variação do campo coercitivo com o ângulo está relacionada ao mecanismo de reversão da magnetização e a competição entre energia dipolar e Zeeman. Há um eixo de fácil magnetização proveniente dos efeitos da energia dipolar ao longo do arranjo e outro devido aos efeitos dipolares das nanocapas individuais. Isto tem como resultado um eixo efetivo de orientação intermediária que bloqueia os momentos magnéticos e faz que o H_c aumente nessa direção. Este resultado é importante pois há a possibilidade de controlar o comportamento magnético por meio da organização das capas nos arranjos. Estudos estritamente micromagnéticos demonstram que os efeitos de vórtice são soluções em todo o arranjo ordenado de *nanocaps* que podem ser combinados para formar modos misto. Dependendo da ordem da organização das capas e da direção do campo aplicado. As capas magnéticas (*nanocaps*) podem exibir propriedades únicas, devido à geometria de superfícies curvas. A coercividade depende da movimentação das paredes de domínio, que em superfícies curvas a propagação de paredes ao longo da superfícies são maiores que superfícies planas [11] [126]. No artigo “*Peak behavior in angular dependence of coercivity in a hexagonal array of Py spherical nanocaps*” [127], faz-se um estudo da dependência angular da

coercividade e remanência para arranjo hexagonal de nanocapas magnéticas de *Permalloy*. A simulação foi realizada com capas de raio das nanoesferas de 85 nm e raio das camadas magnéticas de 5 nm e 10 nm (Figura 48). Todos os momentos magnéticos sofrem a interação de um campo efetivo (equação (5-3)) que é dado pela derivada da energia em relação a magnetização normalizada. São considerados interações de troca, Zeeman e contribuições energéticas auto-desmagnetizantes.

$$\vec{H}_{eff} = -\frac{1}{\mu_0 M_s} \frac{\delta E}{\delta \vec{m}} \quad (5-3)$$

Figura 48- Arranjo bidimensional com empacotamento hexagonal de nanocapas esférica de *Permalloy*. O campo magnético aplicado em diferentes direções em relação ao plano do arranjo com representação panorâmica (a) e vista lateral para raio de nanoesferas de 85 nm e espessuras das camadas magnética de 5 nm e 10 nm de espessura e a discretização da geometria representada na Figura 48(b).

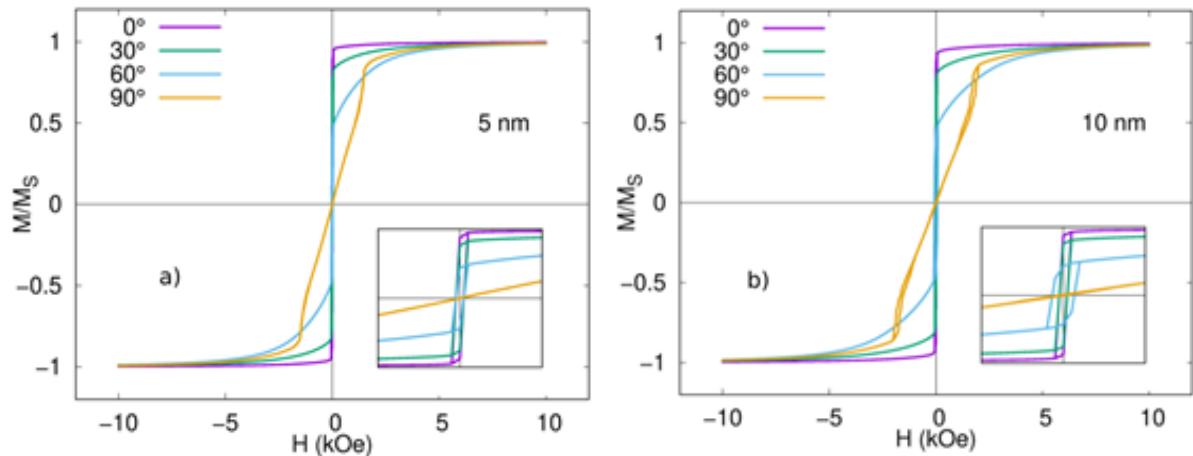


Fonte: [52]

As histereses foram obtidas para 0°, 30°, 60° e 90° com campo aplicado com passo de ΔH 25 Oe. A Figura 49a mostra o ciclo de histerese das nanocapas de 5 nm de espessura. As curvas são arredondadas à medida que o ângulo de aplicação do campo aumenta. A remanência diminui com o aumento do ângulo de aplicação do

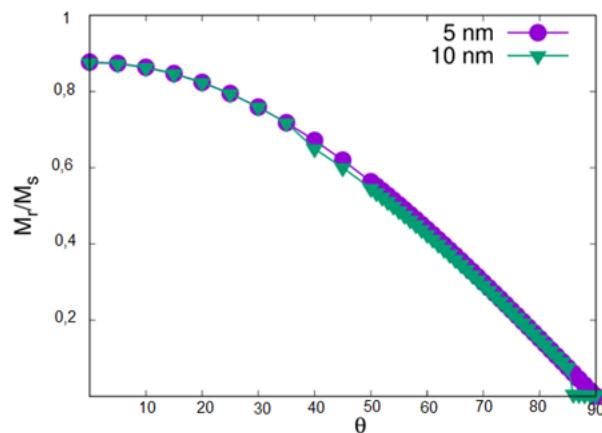
campo externo. Na Figura 49b são apresentadas curvas de histereses para arranjo de 16 nanocapas de 10 nm de espessura, com comportamento semelhante a nanocapas de 5 nm. A remanência também diminui com o aumento da inclinação do campo externo. Além disso, há aumento na coercividade em valores maiores do que nanocapas de 5 nm de espessura. ambos comportamentos podem ser atribuídos à reversão por meio de vórtices.

Figura 49- Curvas de magnetização calculadas para arranjos de nanocapas de *Permalloy* em função do ângulo do campo. a) Curvas correspondentes a nanocapas hemisféricas de 5 nm de espessura. b) Curvas calculadas no arranjo de nanocapas de 10 nm de espessura.



Fonte: [52].

Figura 50- Dependência angular da remanência em arranjos de nanocapas de permalloy com 5 nm e 10 nm de espessura.

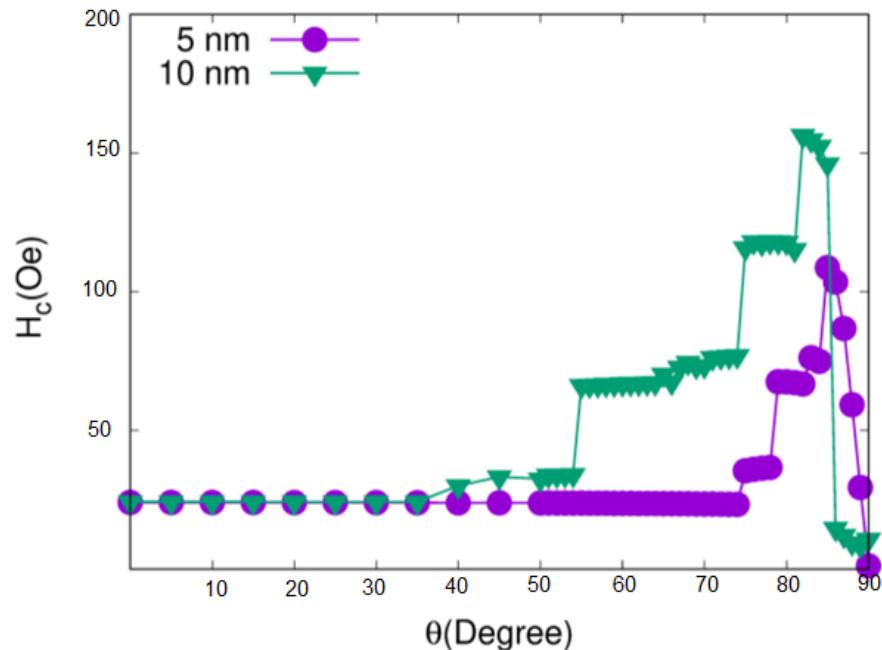


Fonte: [52].

A dependência angular da remanência, representada na Figura 50, é pouco afetada pela espessura de 5 nm e 10 nm. Nos dois casos há diminuição até zero para campo aplicado a 90°. Este resultado está relacionado com a influência da anisotropia de forma. O campo desmagnetizante na direção paralela ao plano é menor que para a direção perpendicular, provocado pelos valores de energia de desmagnetização extraídos da simulação no estado de saturação. A redução da energia desmagnetizante torna mais fácil o alinhamento dos momentos magnéticos na direção do plano do que em qualquer outra direção, evidenciado pela redução da remanência com o ângulo [111].

A dependência angular da coercividade demonstra um pico, Figura 51. Este pico pode estar relacionado com a mudança mecanismo de reversão de magnetização. Além disso, um novo eixo efetivo surge devido à energia de dipolo de cada capa individual, que aumenta com o aumento da espessura da capa. Estes resultados são importantes, porque demonstra a capacidade de sintonizar o comportamento magnético com a estrutura. Este resultado numérico corresponde com resultados experimentais discutidos neste capítulo.

Figura 51- Dependência angular da coercividade de nanocapas de 5 e 10 nm de espessura.



Fonte: [52].

6 CONCLUSÕES

Usando o método de Stöber foi possível obter esferas de sílica de tamanho controlado e uniforme, as quais podem ser depositadas sobre substrato de vidro para obter arranjos bidimensionais. A limpeza do substrato é fundamental para o sucesso dos resultados. O uso do sobrenadante permite, depois de centrifugadas as esferas, obter arranjos mais ordenados e com tamanho menor de 70 nm. Para obter nanocapas de *Permalloy* é possível utilizar Sputtering sobre os arranjos obtidos.

Os resultados de DRX e microscopia eletrônica de varredura permitem verificar a presença de fases CCC e CFC do *Py* para pequenas espessuras e fase CCC para espessuras acima de 10 nm. O MEV mostrou esferas de tamanho médio de 80 nm para material precipitado durante a centrifugação e de 70 nm para sobrenadante.

As medidas magnéticas mostraram que existe uma forte dependência da coercividade, da remanência e outras grandezas importantes como função da espessura das nanocapas de *Py* e principalmente do ordenamento das capas. A dependência angular da coercividade apresentou um pico próximo a 70 graus que corresponde com resultados obtidos por simulação para estes arranjos. O pico na coercividade diminui para amostras com nanocapas desordenadas cada vez mais finas. O campo de comutação apresenta uma estrutura um pico para medidas com campo paralelo ao plano do arranjo. Este pico é mais estreito em amostras com capas desordenadas. Para medidas em campo perpendicular, surge uma estrutura de vários picos que revela a ocorrência de múltiplas fases de reversão da magnetização.

7 PERSPECTIVAS

Para obter melhores resultados pretendemos em trabalhos futuros: Melhorar o controle de ordenamento de nanocapas para poder melhor correlacionar dados experimentais e por simulação. Pretende-se produzir sistemas formados por nanoesferas oca magnéticas usando sílica como molde para complementar alguns estudos do nosso grupo. Realizar estudo de usando MFM para observar diretamente a reversão de magnetização com a finalidade de correlacionar experimentos e dados por simulação.

REFERÊNCIAS

1. LAU, J. W.; SHAW, J. M. Magnetic nanostructures for advanced technologies: fabrication, metrology and challenges. **J. Phys. D. Appl. Phys.**, v. 44, p. 303001, Aug 2011. ISSN 30.
2. J.G.ZHU, J.; ZHENG, Y. Ultrahigh density vertical magnetoresistive random access memory. **Journal of Applied Physics**, Pennsylvania, v. 87, n. 9, p. 66-68, Apr 2000.
3. A. MNYUSIWALLA, A. S. D. P. A. S. Mind the gap: science and ethics in nanotechnology. **Nanotechnology**, v. 14, p. R9-R13, march 2003. ISSN 3.
4. D. A. ALLWOOD, G. X. C. C. F. D. A. D. P. R. P. C. Magnetic Domain-Wall Logic. **Science**, v. 309, n. 5741, p. 16688-1692, Sep 2005.
5. R. P. COWBURN, D. K. K. A. O. A. M. E. W. D. M. T. Single-Domain Circular Nanomagnets. **Phys. Rev. Lett**, v. 83, p. 10-42, Aug 1999.
6. AHARONI, A. **Introduction to the Theory of Ferromagnetism**. New York: Oxford University Press, v. 109, 2000.
7. R. STREUBEL, P. K. D. S. D. M. F. K. G. S. Y. G. Equilibrium magnetic states in individual hemispherical permalloy caps. **Applied Physics Letters**, v. 101, n. 13, p. 132419-1 - 132419-1, Sep 2012.
8. R. STREUBEL, F. K. C. F. R. T. M. A. U. B. W. O. G. S. A. D. M. Vortex circulation and polarity patterns in closely packed cap arrays. **Applied Physics Letters**, v. 108, n. 4, p. 42407, Jan 2016.
9. S.-K. KIM, M.-W. Y. J. L. H.-Y. L. J.-H. L. Y. G. V. P. K. D. S. Resonantly excited precession motion of three-dimensional vortex core in magnetic nanospheres. **Sci. Rep**, v. 5, p. 11370-1 - 11370-8, Jun 2015.
10. R.P.COWBURN. Magnetic nanodots for device applications. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 242, n. 245, p. 505-511, Apr 2002.
11. STREUBEL, R. **Imaging Spin Textures on Curved Magnetic Surfaces**. 1. ed. [S.l.]: Technischen Universität Chemnitz, v. 1, 2015. 151 p.
12. KONSTANTIN YU. GUSLIENKO, K.-S. L. A. S.-K. K. Dynamic Origin of Vortex Core Switching in Soft Magnetic Nanodots. **Phys. Rev. Lett**, v. 100, n. 2, p. 027203-1 - 027203-4, Jan 2008.

13. ALBRECHT M, H. G. G. I. U. T. B. J. L. P. S. G. Magnetic multilayers on nanospheres. **Nature Materials**, v. 4, n. 3, p. 203-206, Mar 2005.
14. SIGMUND, P. Theory of Sputtering. I. Sputtering Yield of Amorphous and Polycrystalline Targets. **Phys. Rev.**, v. 184, n. 2, p. 383-386, Aug 1969.
15. STÖBER, W.; FINK, A.; BOHN, E. Controlled growth of monodisperse silica spheres in the micron size range. **Journal of Colloid And Interface Science**, v. 26, n. 1, p. 62-69, Jan 1986.
16. ZHANG, X. E. A. Immobilization and electrochemistry of cytochrome c on amino-functionalized mesoporous silica thin films. **Mater. Lett.**, v. 9, n. 8, p. 280-283, Aug 2006.
17. XU, C. E. A. Ni hollow spheres as catalysts for methanol and ethanol electrooxidation. **Electrochemistry Communications**, v. 9, n. 8, p. 2009-2012, Aug 2007.
18. JILES, D. **Introduction to magnetism and magnetic materials**. 3. ed. [S.l.]: CRC press, v. 1, 2015.
19. BLUNDELL, S. **Magnetism in condensed matter**. 2. ed. New Youk: Oxford, v. 1, 2001.
20. J. K. HA, R. H. A. J. K. Micromagnetic study of magnetic configurations in submicron permalloy disks. **Phys. Rev. B**, v. vol. 67, p. 224-432, Jun 2003. ISSN no. 22.
21. GUIMARÃES, A. P. **Principles of nanomagnetism**. 2. ed. [S.l.]: Springer Science & Business Media, v. 1, 2009.
22. GRAHAM, S. C. A. C. **Physics of Ferromagnetism**. 2. ed. Berlin: Oxford University Press, v. 94, 2009.
23. SCHÄFER, A. H. A. R. **Magnetic domains**: the analysis of magnetic microstructures. 1. ed. [S.l.]: Springer Science & Business Media, v. 1, 1998.
24. CHIKAZUMI, S.; GRAHAM, C. **Physics of Ferromagnetism**. 2. ed. Oxford: Oxford Unisity Press, v. 94, 2009.
25. VLECK, J. H. V. On the anisotropy of cubic ferromagnetic crystals. **Phys. Rev.**, Woodbury, 52, Dec 1937. 1178-1198.
26. E. DE LACHEISSERIE, D. G. A. M. S. **Magnetism**: Fundamentals. 1. ed. [S.l.]: Springer Science+ Business Media, v. 1, 2005.
27. BARTHELMES, M. **Magnetic-force microscopy and micromagnetic simulations on domains of structured ferromagnets**. 1. ed. Hamburg: Universität Hamburg, v. 1, 2003.

28. KRONE, P. **Magnetization Reversal Processes of Nanostructure Arrays**. 1. ed. [S.l.]: Technische Universität Chemnitz, v. 1, 2011.
29. CASTRO, E. D. G. **ANÁLISE DAS MICROESTRUTURAS MAGNÉTICAS EM FILMES DE FeNi**. 1. ed. Brasília-DF: UnB, v. 1, 2017.
30. M. MORALES, H. L. A. B. A. R. E. B.-S. Magnetic properties of Ni 81 Fe 19/W 90 Ti 10 multilayers. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 256, n. 1, p. 93-99, May 2003.
31. M. FRANCOMBE, J. V. **Physics of Thin Films**. 1. ed. [S.l.]: Academic Press, v. 4, 1987.
32. LERTXUNDI, O. I. **Magnetization reversal behavior of ferromagnetic thin films and nano-structures**. 1. ed. [S.l.]: Universidade Del País Vasco, v. 1, 2013.
33. BERTOTTI, G. **Hysteresis in Magnetism, for Physicists, Materials Scientists, and Engineers**. San Diego, California: Academic Press, 1998.
34. KITTEL, C. Physical Theory of Ferromagnetic Domains. **Reviews of modern physics**, New Jersey, v. 21, n. 4, p. 541-583, Oct 1949.
35. D. GIVORD, P. T. T. V. Determination of the degree of crystallites orientation in permanent magnets by x-ray. **Le Journal de Physique**, v. 46, p. 313- 317, Sep 1985. ISSN 9.
36. MEUNIER, G. **The Finite Element Method for Electromagnetic Modeling**. 1. ed. [S.l.]: ISTE Ltd, v. 1, 2008.
37. EDMUND CLIFTON STONER, E. P. W. A mechanism of magnetic hysteresis in heterogeneous alloys. **Philosophical Transactions of the Royal Society**, v. 240, n. 1, p. 599 - 642, May 1948. ISSN 826.
38. BROWN, W. F. J. Virtues and weaknesses of the domain concept. **Reviews of Modern Physics**, v. 17, n. 1, p. 15-19, Jan 1945.
39. SPRATT, G. W. D. . B. P. R. . C. R. W. A. W. E. P. static and dynamic experimental studies of particulate recording media. **Journal of Magnetism and Magnetic Material**, v. 75, n. 3, p. 309-318, Dec 1988.
40. LEE, E. W. A. B. J. E. L. Magnetic behaviour of single-domain particles. **Proceedings of the Physical Society**, v. 89, p. 661-675, Mar 1966. ISSN 3.
41. MAYERGOYZ, I. D. Mathematical models of hysteresis. **Physical Review Letters**, v. 22, n. 5, p. 603 - 608, Oct 1986.

42. HELMUT KRONMULLER, S. P. **HAndbook Of Magnetism and advanced magnetic materials**. 1. ed. [S.l.]: Wiley, v. 1, 2007.
43. HOCK, S. . K. H. Proceedings of the 5th International Conference on Magnetic Anisotropy and Coercivity in RE Transition Metal Alloys. **DPG-GmbH**, v. 14, p. 275, Apr 1987.
44. BECKER, R. Elastische spannungen und magnetische Eigenschaften. **Physikalische Zeitschrift**, v. 64, n. 1, p. 905–913., Mar 1932.
45. NEEL, L. Les lois de l'aimantation et de la subdivision en domaines elementaires d'un monocristal de fer. **Journal de Physique et le Radium**, v. 5, n. 1, p. 265–276, Jan (1944).
46. GLOBUS, A. Influence de la dimension des parois sur la permeabilite initiale. **Comptes Rendus de l' Academie des Sciences**, Paris, v. 255, p. 1709-1711, May 1962.
47. GLOBUS, A. A. D. Separation of susceptibility mechanisms for ferrites of low anisotropy. **IEEE Transaction on Magnetics**, v. 2, p. 441–445, Sep 1966. ISSN 3.
48. GLOBUS, A. . D. P. A. G. M. Determination of initial magnetization curve from crystallites size and effective anisotropy field. **IEEE Transactions on Magnetics**, v. 7, p. 617-622, Mar 1971.
49. VON IM PAULO, J. N.-A. F. R. E. P.-H. Magnetization curves of electrodeposited Ni, Fe and Co nanotubes. **Materials Letters**, v. 223, n. 2015, p. 78-81, Jul 2015.
50. M. KALTENBRUNNER, T. S. J. R. T. Y. K. K. T. T. M. D. R. S. I. G. S. B.-G. S. B. S. An ultra-lightweight design for imperceptible plastic electronics. **Nature**, london, v. 499, p. 458-463, Jul 2013.
51. GUERRA, R. P.-G. E. P.-H. Remanence State and Coercivity in 1-D Chain of Polycrystalline Hollow Cobalt Nanospheres. **IEEE Transactions on Magnetics**, v. 55, n. 4, p. 1-5, Apr 2019.
52. Y. GUERRA, F. A. R. R. P.-G. E. P.-H. Behavior-type peak in angular dependence of coercivity in a hexagonal array of Py spherical nanocaps. **IEEE MAGNETICS LETTERS**, v. 99, n. 1, p. 1-4, Feb 2019.
53. Y. B. GAIDIDEI, S. F. M. A. P. L. C. Curvature–induced symmetry breaking in nonlinear Schrödinger models. **Phys. Rev.**, v. 53, n. 200, p. 1 - 4, Jul 2000.
54. A. M. TURNER, V. V. A. D. R. N. Vortices on curved surfaces. **REVIEWS OF MODERN PHYSICS**, v. 82, p. 1301-1348, Apr 2010. ISSN 2.

55. NÚÑEZ, P. L. A. A. S. Domain wall motion on magnetic nanotubes. **J. Appl. Phys.**, v. 108, n. 3, p. 033917, Jun 2010.
56. Y GUERRA, R. P.-G. E. P.-H. Magnetic reversion in real nickel and cobalt nanowires and the angular dependence of coercivity. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 452, n. 30, p. 17-22, Dec 2018.
57. VERGORI, G. N. A. L. Extrinsic curvature effects on nematic shells. **Phys. Rev. Lett.**, v. 108, n. 20, p. 207803, May 2012.
58. Y GUERRA, R. P.-G. E. P.-H. Dipolar magnetic interaction effects in 2D hexagonal array of cobalt hollow-spheres. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 451, n. 2018, p. 269-275, Apr 2018.
59. BARBÉ C, B. J. K. L. F. K. L. H. L. M. S. B. A. C. G. Silica Particles: A Novel Drug-Delivery System. **Advanced Materials**, v. 16, p. 1959-1966, november 2004.
60. VALADARES L F, T. Y. G. Z. N. S. K. V. G. F. R. A. O. G. A. Catalytic Nanomotors: Self-Propelled Sphere Dimers. **Small**, v. 22, n. 6, p. 565-572, Feb 2010.
61. MANFRED ALBRECHT, G. H. I. L. G. T. C. U. J. B. P. L. A. G. S. Magnetic multilayers on nanospheres. **Nature Materials**, v. 4, p. 203-206, Mar 2005.
62. BOMBARDMENT, P. M. N. O. S.-A. S. B. I. B. Y. J. Chen, J. P. Wang, E. W. Soo, L. Wu, T. C. Chong. **Journal Of Applied Physics**, v. 91, p. 7323-7325, May 2002. ISSN 10.
63. SANCHEZ, S. et al. Controlled Manipulation of Multiple Cells Using Catalytic Microbots. **Chem. Commun**, v. 47, n. 2011, p. 698-700, Oct 2011.
64. TIERNO, P.; JOHANSEN, T. H.; FISCHER, T. M. Transport of Loaded and Unloaded Microcarriers in a Colloidal Magnetic Shift Register. **J. Phys. Chem. B**, v. 111, n. 48, p. 13479-13482, Nov 2007.
65. KREUTER, J. **Colloidal Drug Delivery Systems**. 1. ed. [S.l.]: CRC Press, v. 66, 1994.
66. LARYSA BARABAN, R. S. D. M. L. H. D. K. Fuel-Free Locomotion of Janus Motors:Magnetically Induced Thermophoresis. **ACSNANO**, v. 7, p. 1360-1367, Dec 2013. ISSN 2.
67. ROBERT STREUBEL, D. M. L. K. V. K. M. A. A. O. G. S. Magnetic vortices on closely packed spherically curved surfaces. **HYSICAL REVIEW B**, v. 85, n. 17, p. 174429-1 - 174429-4, May 2012.

68. R. STREUBEL, V. P. K. D. D. S. D. M. F. K. O. G. Equilibrium magnetic states in individual hemispherical permalloy caps. **Appl. Phys. Lett.**, v. 101, n. 13, p. 132419-1 - 132419-1, Sep 2012.
69. WITTENAUER, J. **The invar effect, a centenial symposium**. 1. ed. warrendale: Tms, v. 1, 1996.
70. G. BERANGER, F. D. **The iron-Nickel alloys**. 1. ed. New york: Lavosier, v. 1, 1996.
71. KOCH, C. C. **Nanostructured Materials - Processing, Properties and Applications**. 2. ed. New york: William Andrew, v. 1, 2002.
72. G. PALUMBO, F. G. K. T. Plating and Surface finishing. **Journal of the American Electroplaters' Society**, East Orange, NJ, v. 95, n. 4, p. 62.1975.4 - 95.2008, April 2003.
73. WASSERMANN, E. F. New Developments on the Invar-Effect. **Physica Scripta**, v. 209, n. 10, p. T25-T38, Feb 1989.
74. NAKAMURA, Y. The invar problem. **IEEE Transactions on Magnetics** , v. 12, n. 4, p. 278-291, jul 1976.
75. MÜLLER, P. Intrinsic Josephson Effects in Layered Superconductors. **Advances in Solid State Physics**, v. 27, n. 85, p. 1-33, June 1994.
76. SCHERER, C. J. B. E. G. W. **Sol -Gel Science: the Physical and Chemistry of Sol -Gel**. 1. ed. [S.l.]: Copyright © 1990 Elsevier Inc. All rights reserved., v. 1, 1990.
77. WANG, L. et al. Watching Silica Nanoparticles Glow in the Biological World. **Analytical Chemistry**, v. 78, n. 3, p. 646-654, Feb 2006.
78. H. GIESCHE, K. K. U. M. E. Hysteresis in nitrogen sorption and mercury porosimetry on mesoporous model adsorbents made of aggregated monodisperse silica spheres. **Colloids and Surfaces**, v. 37, p. 93-113, Sep 1989.
79. MAYORAL, R. . R. J. . 3D Long Range Ordering in an sio2 Submicrometer-Sphere Sintered Superstructure. **Advanced Materials.**, v. 9, n. 3, p. 257 – 260, Oct 2004.
80. DIMITROV, A. S.; NAGAYAMA, K. Continuous Convective Assembling of Fine Particles into Two-Dimensional Arrays on Solid Surfaces. **Langmuir**, v. 12, p. 1303-1311, Jan 1996.
81. MICHELETTO, R.; FUKUDA, H.; OHTSU, M. A Simple Method for the Production of a Two-Dimensional, Ordered Array of Small Latex Particles. **Langmuir**, v. 11, n. 9, p. 3333-3336, Sep 1995.

82. CULLITY, B. D. **Elements of X-ray diffraction**. 2. ed. [S.l.]: ADDISON-WESLEY PUBLISHING COMPANY INC, v. 1, 1978.
83. CALLISTER JR., W. D. **Ciência e Engenharia dos Materiais: Uma Introdução**. 2. ed. Rio de Janeiro: LTC, v. 1, 2002.
84. CULLITY, B. D.; GRAHAM, C. D. **Introduction to magnetic materials**. 2. ed. [S.l.]: IEEE Press, v. 1, 2009.
85. KNOLL., M. Z. **Technische Physik**. 467. ed. [S.l.]: [s.n.], v. 16, 1935. 467 p.
86. REIMER, L. **Scanning Electron Microscopy — Physics of Image Formation and Microanalysis**. New York: Springer, v. 45, 1987.
87. FONER, S. The vibrating sample magnetometer: Experiences of a volunteer. **Journal of Applied Physics**, v. 79, n. 8, p. 4740 - 4745, Aug 1996.
88. FONER, S. Versatile and Sensitive Vibrating-Sample Magnetometer. **Review of Scientific Instruments**, v. 30, p. 548, Jul 1959. ISSN 7.
89. D NISSEN, D. M. Magnetic coupling of vortices in a two-dimensional lattice. **IOP Publishing Lt**, v. 26, n. 46, p. 465706-1 - 465706-6, Oct 2015.
90. R. BRANDT, R. R. D. A. G. F. G. T. S. K. L. M. A. A. H. S. Size-dependent magnetization switching characteristics and spin wave modes of FePt nanostructures. **J. Appl. Phys**, v. 113, n. 20, p. 203910, May 2013.
91. GALUBITZ, B. Development of magnetic moments in Fe_{1-x}Ni_x-alloys. **Journal of Physics: Condensed Matter**, v. 23, p. 1-9, jun 2011. ISSN 25.
92. T. HYSEN, S. A.-H. I. A. A.-O. . P. G. R. L. R. V. R. D. S. M. R. A. Annealing induced low coercivity, nanocrystalline Co–Fe–Si thin films exhibiting inverse cosine angular variation. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 341, n. 2013, p. 165-172, Sep 2013.
93. THOMAS HAUET, L. P. S. K. S. V. A. A. D. L. M. H. F. M. J. S. M. A. M. H. J. H. E. A. Reversal mechanism, switching field distribution, and dipolar frustrations in Co/Pt bit pattern media based on auto-assembled anodic alumina hexagonal nanobump arrays. **PHYSICAL REVIEW B**, v. 89, n. 17, p. 174421, May 2014.
94. KHALID, H. Z. A. F. A. Magnetic Properties and Nanocrystalline Phases in Sn Containing SmCo₅ Alloys. **Journal of Materials Engineering and Performance**, v. 20, n. 7, p. 1304-1309, Oct 2010.

95. A. SEBT, M. A. Switching field distribution of magnetic fine particles. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 237, p. 111-118, Nov 2001.
96. CAI LIANG, C. P. G. Q. X. W. Y. L. Y. G. A. J. K. Magnetic Properties of FeNi-Based Thin Film Materials with Different Additives. **biosensors**, v. 4, n. 3, p. 189-203, Sep 2014.
97. THOMAS HAUET, L. P. S. K. S. V. A. A. D. L. H. F. M. J. S. M. A. M. H. J. H. E. A. Reversal mechanism, switching feld distribution, and dipolar frustrations in Co/Pt bit pattern media based on auto-assembled anodic alumina hexagonal nanobump arrays. **PHYSICAL REVIEW B**, v. 89, p. 174421, 2014.
98. GRAHAM, S. C. A. C. **Physics of Ferromagnetism**. 2. ed. [S.l.]: Oxford University Press, v. 94, 2009.
99. W. TANG, C. G. J. H. A. H. Z. Srtucture and magnetic properties of Fe(1-x) Ni (x) /Cu Invar superlattices. **Journal of Applied Physics**, v. 80, n. 4, p. 2327 - 2333, Sep 1996.
100. J. G. KIM, K. H. H. S. H. S. A. A. R. Magnetic properties of sputtered soft magnetic Fe–Ni films with an uniaxial anisotropy. **Thin Solid Films**, v. 440, p. 54-59, 2003.
101. B. GLAUBITZ, S. B. F. B. R. A. A. H. Z. Development f magnetic moments in Fe(1-x) Ni (x) alloys. **Journal of Physics: Condensed Matter**, v. 23, p. 1-9, Mar 2011.
102. J. G. KIM, K. H. H. S. H. S. A. A. R. Magnetic properties of sputtered soft magnetic Fe–Ni films with an uniaxial anisotropy. **hin Solid Film**, v. 440, p. 54-59, Sep 2003. ISSN 1.
103. M. PIRES, M. A. F. J. T. J. A. A. W. M. Out-of-plane magnetic anisotropy in columnar grown Fe–Ni films. **ournal of Physics and Chemistry of Solids**, v. 75, n. 10, p. 1124–1131, Oct 2014.
104. HERZER, G. Grain size dependence of coercivity and permeability in nanocrystalline ferromagnets. **IEEE Transactions on Magnetics**, v. 26, n. 5, p. 1397-1402, Sep 1990.
105. GAVIN S. ABO, Y.-K. H. . J. P. . J. L. . W. L. . A. B.-C. C. Definition of Magnetic Exchange Length. **IEEE TRANSACTIONS ON MAGNETICS**, v. 49, p. 4937 - 4939, Aug 2013. ISSN 8.
106. E. H. FREI, S. S. A. D. T. Critical size and nucleation field of ideal ferromagnetic particles. **Phys. Rev.**, v. 106, p. 446-455, May 1957. ISSN 3.

107. BROWN, W. F. Criterion for uniform magnetization. **Phys. Rev.**, v. 105, p. 1479-1482, Mar 1957. ISSN 5.
108. B. GLAUBITZ, S. B. F. B. R. A. H. Z. Development of magnetic moments in Fe_{1-x} Ni_x alloys. **Journal of Physics: Condensed Matter**, v. 23, p. 1-9, Mar 2011.
109. W. TANG, C. G. Structure and magnetic properties of Fe_{1-x} Ni_x /Cu Invar superlattices. **Journal of Applied Physics**, v. 80, n. 4, p. 2337 - 2333, Sep 1996.
110. JUNG. G. KIM, K. H. H. S. H. S. A. R. Magnetic properties of sputtered soft magnetic Fe–Ni films with an uniaxial anisotropy. **Thin Solid Films**, v. 440, p. 54–59, may 2003. ISSN 1.
111. XU, Q. L. H. L. M. H. J. Z. Y. L. Z. Nanometer-Sized Nickel Hollow Spheres. **Advanced Materials**, v. 17, n. 16, p. 1995-1999, Jun 2005.
112. A. MAXIMENKO, M. M. J. F. . A. Z. . Y. Z. . O. K. S. L. . K. . S. Z. Structure and magnetic properties of Co/Pd multilayers prepared on porous nanotubular TiO₂ substrate. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 434, p. 157-163, Jul 2017.
113. CHUN-RONG LIN, M.-H. H. Y.-J. S. C.-C. W. Preparation and magnetic properties of monodisperse Permalloy hollow spheres. **Journal of Applied Physics**, v. 103, n. 7, p. 07D522-1 - 07D522-2, Oct 2008.
114. GUITTOUM, A.; BOURZAMI, A.; LAYADI, A. Structural, electrical and magnetic properties of evaporated permalloy thin films: effect of substrate and thickness. **European Physical Journal. Applied Physics**, v. 58, p. 20301 - 20305, May 2012. ISSN 2.
115. LITVINOV, J.; NASRULLAH, A. High-Throughput Top-Down Fabrication of Uniform Magnetic Particles. **PLoS one**, v. 7, n. 5, p. e37440-1 - e37440-6, May 2012.
116. ARMA, V. B.; WU, R. G.; WANG, Z. P. Magnetic Janus particles synthesized using droplet micro-magnetofluidic chniques for protein detection. **Lab on a Chip**, v. 17, n. 1, p. 1-13, Jan 2013.
117. M., A. et al. Magnetic vortices in nanocaps induced by curvature. Abdelgawad. **AIP Advances**, v. 8, n. 111, p. 056321-1 - 056321-5, Jan 2018.
118. MCCALLUM, R. W. Determination of the Saturation Magnetization, Anisotropy Field, Mean Field Interaction, and Switching Field Distribution for Nanocrystalline Hard Magnets. **J. Magn. Magn. Mater**, v. 292, n. 1, p. 135–142, Apr 2005.

119. TSUTSUMI, Y. K. A. M. Analysis of Magnetization Reversal Process of Nd–Fe–B Sintered Magnets by Magnetic Domain Observation Using Kerr Microscope. **IEEE Trans. Magn.**, v. 49, n. 7, p. 3262 - 3264, Jul 2013.
120. K. KANG, L. H. L. J. S. J. A. S. D. B. Recoil Hysteresis of Sm-Co/Fe Exchange-Spring Bilayers. **J. Appl. Phys.**, v. 98, n. 11, p. 139061–1139067, Dec 2005.
121. KHALID, H. Z. A. F. A. Magnetic Properties and Nanocrystalline Phases in Sn Containing SmCo₅ Alloys. **Journal of Materials Engineering and Performance**, February 2010.
122. ZHENG LI, W. Z. A. K. M. K. Large-area patterning of sub-100 nm epitaxial L10 FePt dots array via nanoimprint lithography. **AIP Advances**, v. 5, n. 2015, p. 087165-1 - 087165-8, Jul 2015.
123. P. KAPPENBERGER, F. L. L. J. H. H. H. S. C. P. C. B. D. M. T. V. A. L. P. H. J. H. A. M. A. Template-directed self-assembled magnetic nanostructures for probe recording. **Applied Physics Letters**, v. 95, n. 2, p. 023116-023116-3, Jul 2009.
124. MANFRED ALBRECHT1*, G. H. I. L. G. T. C. U. J. B. P. L. A. G. S. Magnetic multilayers on nanospheres. **nature materials**, v. 4, n. 3, p. 203-206, Feb 2005.
125. PORTER, M. J. D. A. D. G. **“OOMMF User’s Guide, National Institute of Standards and Technology**. 1. ed. [S.l.]: NIST, v. 1, 1999.
126. LI S P, L. W. S. X. Y. B. H. A. S. A. B. F. B. J. A. C. Magnetic nanoscale dots on colloid crystal surfaces. **Appl. Phys. Lett.**, v. 76, n. 6, p. 748-750, Feb 2000.
127. Y. GUERRA, F. A. R. R. P.-G. E. P.-H. Behavior-type peak in angular dependence of coercivity in a hexagonal array of Pyi. **EE MAGNETICS LETTERS**, v. 10, n. 1, p. 1-4, Feb 2019.
128. CARUSO, F. E. A. Production of Hollow Microspheres from nanostructured Composite Particles. **Chemistry of Materials**, v. 11, p. 3309-3314, Oct 1999. ISSN 11.
129. KONDORSKI, E. On the nature of coercive force and irreversible changes in magnetisation. **Phys. Z. Sowjet**, v. 11, p. 597, Jun 1937.
130. KRONMULLER, H. . D. D. . S. M. Analysis of the magnetic hardening mechanism in RE-FeB permanent magnets. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 74, n. 3, p. 291-302, Oct 1988.

131. SALVAREZZA; VÁZQUEZ; MÍGUEZ. Edward-Wilkinson Behavior of Crystal Surfaces grown by Sedimentation Of sio2 Nanospheres. **Physical review letters**, v. 25, n. 77, p. 4572-4575, Nov 1996.
132. Y. GUERRA, R. P.-G. E. P.-H. J. M. M. M. 4. Magnetic reversion in real nickel and cobalt nanowires and the angular dependence of coercivity. **IEEE Magnetics Letters**, v. 452, n. 1, p. 17-22, Dec 2018.