



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

JEFFERSON LIMA COSTA

Estudos de relaxação magnética em filmes de $Fe_{75}Co_{25}$ com forte anisotropia induzida

Recife

2022

JEFFERSON LIMA COSTA

Estudos de relaxação magnética em filmes de $Fe_{75}Co_{25}$ com forte anisotropia induzida

Trabalho apresentado ao Programa de PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA do DEPARTAMENTO DE FÍSICA da UNIVERSIDADE FEDERAL DE PERNAMBUCO como requisito parcial para obtenção do grau de Mestre em Física da matéria condensada e de materiais.

Área de Concentração: Física da matéria condensada e de materiais

Orientador (a): Antonio Azevedo da Costa

Recife

2022

Catálogo na fonte
Bibliotecária Nataly Soares Leite Moro, CRB4-1722

C837e Costa, Jefferson Lima
Estudos de relaxação magnética em filmes de *Fe75Co25* com forte anisotropia induzida / Jefferson Lima Costa. – 2022.
84 f.: il., fig.

Orientador: Antonio Azevedo da Costa.
Dissertação (Mestrado) – Universidade Federal de Pernambuco. CCEN, Física, Recife, 2022.
Inclui referências e anexo.

1. Física da matéria condensada e de materiais. 2. Filmes finos magnéticos. 3. Ressonância ferromagnética. 4. Relaxação. 5. Sputtering. I. Costa, Antonio Azevedo da (orientador). II. Título.

530.41 CDD (23. ed.) UFPE- CCEN 2022 - 186

JEFFERSON LIMA COSTA

**ESTUDOS DE RELAXAÇÃO MAGNÉTICA EM FILMES DE $\text{Fe}_{75}\text{Co}_{25}$
COM FORTE ANISOTROPIA INDUZIDA**

Dissertação apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Física da Universidade Federal de Pernambuco, como requisito parcial para a obtenção do título de Mestre em Física.

Aprovada em: 27/09/2022.

BANCA EXAMINADORA

Prof. Antonio Azevedo da Costa
Orientador
Universidade Federal de Pernambuco

Prof. Eduardo Padrón Hernández
Examinador Interno
Universidade Federal de Pernambuco

Prof. Joaquim Bonfim Santos Mendes
Examinador Externo
Universidade Federal de Viçosa

AGRADECIMENTOS

Agradeço ao prof. Antonio Azevedo pela oportunidade de orientação e de seu tempo de dedicação para o suporte a esse trabalho, embora muito concorrido. Agradeço aos colegas de laboratório Kacio Reinaldo, Eduardo Santos, Eudes Gomes e especialmente Elias Abrão, o qual teve a paciência de me ensinar e competência para solucionar problemas experimentais necessários à realização desse trabalho. Agradeço também aos colegas de laboratórios vizinhos e correlatos Daniel Souto, o qual contribuiu com lições da vida acadêmica, e Edy Souza, o qual me ajudou como veterano da área de magnetismo.

Agradeço aos professores do departamento de física da UFPE, e especialmente aos professores da área de física da matéria condensada e magnetismo, os quais trazem orgulho ao departamento e à Universidade, e contribuíram, mesmo que indiretamente, para que todo esse processo de pesquisa fosse realizado. Agradeço aos profissionais da limpeza do departamento por propiciar um ambiente legal e limpo para se trabalhar. Também agradeço aos técnicos da Oficina Mecânica, ao técnico da Oficina Eletrônica, Daniel, por sua competência em solucionar problemas relativos ao conserto e manutenção de aparelhos importantes para a nossa pesquisa, bem como à técnica Tarcyla por suas análises de difração de raios-X.

Agradeço aos ex-colegas de graduação e especialmente a Jean Felipe e Kacio Reinaldo, que deram suas contribuições durante a minha formação, desde a graduação até agora. Finalmente à CAPES pelo apoio financeiro para realização deste trabalho de pesquisa, as outras agências de fomento brasileiras e de Pernambuco (FACEPE, CNPq, FINEP) pelo apoio financeiro ao laboratório e aos contribuintes brasileiros e brasileiras.

RESUMO

Nesta dissertação investigamos propriedades estáticas e dinâmicas de filmes de $Fe_{75}Co_{25}$ crescidos pela técnica de *sputtering*. Os filmes foram crescidos inclinados em relação à direção de deposição. Esta técnica induz microestruturas inclinadas que levam ao aparecimento de uma anisotropia uniaxial muito forte no plano da amostra. O ângulo de inclinação usado no processo de deposição variou de 0° a 40° , com intervalos de 5° . Utilizamos a técnica de ressonância ferromagnética para investigar a dependência angular do campo de ressonância e da largura de linha para cada amostra. Os dados experimentais foram analisados com base em um modelo fenomenológico que leva em consideração a energia livre magnética. O modelo permite ajustar a dependência angular do campo de ressonância e largura de linha. A partir dos ajustes extraímos os seguintes parâmetros físicos: fator de Landé, magnetização efetiva, parâmetro de amortecimento de Gilbert, campos de anisotropia no plano e perpendicular ao plano, etc. Também fizemos uma investigação preliminar do efeito de magnetorresistência anisotrópica, no qual a resistividade elétrica depende do ângulo relativo entre a direção da magnetização e da corrente. Os resultados também foram analisados pelo mesmo modelo fenomenológico.

Palavras-chaves: filmes finos magnéticos; ressonância ferromagnética; relaxação; sputtering; anisotropia induzida; magnetorresistência.

ABSTRACT

We investigated dynamic and static magnetic properties of $Fe_{75}Co_{25}$ thin films produced by the standard *sputtering* technique. The layers were grown with oblique angle relative to the deposition direction. This technique induces inclined columnar microstructures which induce strong uniaxial anisotropy along the sample's surface. The angle used in the deposition process was set in between 0° and 40° , with intervals of 5° . We used the ferromagnetic resonance technique to investigate the angular dependence of the resonance field and the linewidth for each sample. The experimental data were analysed by a phenomenological approach that considers the magnetic free energy. The model allows us to fit the angular dependence of the resonance field and linewidth. From the fittings we can extract the following parameters: g Landé factor, effective magnetization, Gilbert damping parameter and anisotropy field both in the plane and out of plane. We also performed a preliminary investigation of the anisotropic magnetoresistance effect, in which the electrical resistivity depends on the relative angle between magnetization and current directions. The results were also analysed with the same phenomenological model.

Keywords: magnetic thin films; ferromagnetic resonance; relaxation; sputtering; induced anisotropy; magnetoresistance.

LISTA DE FIGURAS

Figura 1 – Escalas de tempo de vários processos dinâmicos da magnetização.	14
Figura 2 – Ilustração do vetor magnetização de um meio macroscópico sob efeito de um campo externo \vec{B}_0 . O campo magnético é $B_0\hat{z}$, o vetor magnetização \vec{M} precessiona formando um ângulo θ com o eixo z e a componente dependente do tempo da magnetização, transversal ao campo magnético, é $\vec{m}(t) = m_x(t)\hat{x} + m_y(t)\hat{y}$	18
Figura 3 – Sistema de referência com os vetores magnetização e campo magnético. . .	20
Figura 4 – Curva lorentziana (vermelho) e sua derivada(cinza). Usamos $\Delta H_{HWHM} = 0.05$ e obtemos $\Delta H_{FWHM} = 0.1$ e $\Delta H_{pp} = (2/\sqrt{3}) \cdot 0.05 = 0.057$	24
Figura 5 – Sistema de referência utilizado no cálculo da relação de dispersão de ondas de spins no regime magnetoestático.	29
Figura 6 – À esquerda temos um esferoide prolato e à direita temos a dependência da densidade de energia de anisotropia devido à sua forma em função da razão c/a	33
Figura 7 – Os números entre parênteses estão em unidades gaussianas.	34
Figura 8 – Sistema de coordenadas esféricas adotado para expandir a energia em série de potência.	35
Figura 9 – Ilustração das anisotropias magnetocristalina cúbica (linha azul) e uniaxial (linha vermelha). O eixo vertical está em unidades arbitrárias.	37
Figura 10 – Ilustração esquemática do sistema de referência adotado nos cálculos. As orientações do vetor de magnetização \vec{M} e do campo magnético aplicado \vec{H} são dadas pelos ângulos azimutais ϕ_M e ϕ_H , e pelos ângulos polares θ_M e θ_H , respectivamente.	40
Figura 11 – Configuração para medida do efeito AMR.	43
Figura 12 – Configuração dos vetores \vec{M} e \vec{H} em relação ao eixo fácil (eixo y).	44
Figura 13 – Curva característica da magnetorresistência anisotrópica para o campo aplicado perpendicular ao eixo fácil. Quando $H = H_u$ a amostra tem a magnetização saturada.	45

Figura 14 – Diagrama de bloco da montagem experimental de FMR. Embora não esteja apresentado na figura, também utilizamos um osciloscópio para identificar a frequência da cavidade ressonante contendo a amostra. Embora a bobina de modulação não está sendo mostrada, fica subtendido que o gerador de funções é que alimenta a bobina de modulação com um sinal AC de baixa intensidade. Para a cavidade na configuração utilizada, precisamos usar uma onda modulante de aproximadamente 100kHz.	46
Figura 15 – Representação ilustrativa do processo de evaporação catódica com magnetos (<i>magnetron sputtering</i>).	51
Figura 16 – Figura ilustrativa dos primeiros estágios do efeito <i>Self-Shadowing</i> . "Espécies" de partículas vaporizadas chegam de maneira randômica até o substrato. Como pode ser observado, a aculumalação dessas espécies provoca um sombreamento em certas zonas da, o que impede com que partículas sejam depositadas nessas regiões.	54
Figura 17 – Resultados do modelo de " <i>surface trapping</i> " para vários valores de s_t (<i>Surface trapping probability</i>) e σ (variância do ângulo α) e para vários materiais, juntamente com dados obtidos experimentalmente.	55
Figura 18 – Esquema ilustrativo da distribuição das partículas evaporadas em direção ao substrato segundo um modelo gaussiano. No nosso sistema, o alvo está imediatamente acima do substrato, o qual está inclinado com ângulo β . . .	55
Figura 19 – Franjas de Kiessing do $Si/SiO_2/Fe_{75}Co_{25}$ obtidas por medidas de refletividade, as quais possibilitam estimar a espessura da camada do filme fino, bem como sua rugosidade. A intensidade está em unidades arbitrárias. A intensidade está em unidades arbitrárias.	56
Figura 20 – Taxa de deposição em função do ângulo de crescimento oblíquo.	57
Figura 21 – Diagrama de bloco da montagem experimental referente ao efeito de AMR.	58
Figura 22 – Representação simplificada da base contendo a amostra (um filme fino em formato de tira). No nosso experimento, essa base fica mantida em uma caixa retangular, de modo a ser possível mantê-la fixa.	59
Figura 23 – Ilustração do método de 4 pontas, bastante utilizado para fazer medidas de magnetorresistência.	59

Figura 24 – Curvas de FMR obtidas com frequência de 9.46 GHz para diferentes espessuras do $Fe_{75}Co_{25}$. As linhas pretas contínuas foram obtidas do ajuste numérico com a derivada de uma função Lorentziana.	61
Figura 25 – Valores médios (média de 10 valores) para o campo de ressonância em função da espessura do filme de $Fe_{75}Co_{25}$. Exemplos de curvas correspondentes aos pontos obtidos estão dispostas na figura 24, com suas respectivas cores. As retas sólidas em vermelho servem de guia para os olhos.	62
Figura 26 – Valores médios (média de 10 valores) para a largura de linha em função da espessura do filme de $Fe_{75}Co_{25}$. Exemplos de curvas correspondentes aos pontos obtidos estão dispostas na figura 24, com suas respectivas cores. As retas sólidas em vermelho servem de guia para os olhos.	62
Figura 27 – Ilustração do esquema de deposição oblíquo utilizado.	63
Figura 28 – Campos de ressonância (curva preta) e larguras de linha (curva vermelha) em função do ângulo ϕ no plano, para amostras fabricadas com diferentes ângulos de crescimento oblíquo. A largura de linha e o campo de ressonância referente à medida com $\beta = 10^\circ$ não foram possíveis de serem ajustados.	64
Figura 29 – Campos de ressonância (curva preta) e larguras de linha (curva vermelha) em função do ângulo ϕ no plano, para amostras fabricadas com diferentes ângulos de crescimento oblíquo. Nota-se o aumento da anisotropia induzida devido ao crescimento oblíquo. O formato das curvas planares de ΔH para $\beta \geq 20^\circ$ são típicos do mecanismo de espalhamento de 2-mágnons (CHENG et al., 2018).	65
Figura 30 – Campo de anisotropia uniaxial em função do ângulo de crescimento oblíquo.	66
Figura 31 – Curvas de FMR para um filme de $Fe_{75}Co_{25}$ (14nm) crescido com ângulo $\beta = 50^\circ$, para o campo aplicado nos eixos fácil ($\phi = 0^\circ$) e duro ($\phi = 90^\circ$). A presença dos dois picos de ressonância pode ser explicado.	66
Figura 32 – Curvas de frequência versus H, obtidas utilizando a equação 2.86 com os seguintes parâmetros: $4\pi M_{eff} = 18$ kG, $H_u = 0,6$ kOe, $\gamma = 2,9$ GHz/kOe. A curva em azul foi traçada qualitativamente.	67
Figura 33 – Fator g em função do ângulo de crescimento oblíquo.	68
Figura 34 – Magnetização efetiva em função do ângulo de crescimento oblíquo.	70
Figura 35 – Parâmetro de amortecimento determinado numericamente para diferentes ângulos de crescimento oblíquo.	70

Figura 36 – Campos de ressonância (curva preta) e larguras de linha (curva vermelha) em função do ângulo ϕ no plano, para amostras fabricadas com diferentes espessuras.	71
Figura 37 – Parâmetro de amortecimento de Gilbert calculado numericamente para diferentes espessuras.	72
Figura 38 – Contribuição do espalhamento de 2-mágnons para a largura de linha. A intersecção da curva com o eixo vertical é o que chamamos de " <i>Inhomogeneous linewidth</i> ". Note que o eixo horizontal varia de 0 a 70 GHz.	74
Figura 39 – Fator g em função da espessura dos filmes de $Fe_{75}Co_{25}$. A linha sólida é um guia para os olhos.	74
Figura 40 – Magnetização efetiva em função da espessura dos filmes de $Fe_{75}Co_{25}$. A linha sólida é um guia para os olhos.	75
Figura 41 – Campo de anisotropia uniaxial no plano para diferentes espessuras do filme de $Fe_{75}Co_{25}$. $\beta = 40^\circ$	75
Figura 42 – Configuração utilizada para fabricar as amostras utilizadas para as medidas de AMR. Nesse caso, a anisotropia de forma e uniaxial estão na mesma direção, ao longo da fita.	76
Figura 43 – Configurações usadas para as medidas de AMR. Fizemos medidas com campo fazendo ângulo de 45° em relação à direção da fita (figura a), ao longo da fita (figura b), numa direção perpendicular à direção da fita (figura c). As setas vermelhas indicam o sentido do campo magnético externamente aplicado. Iniciamos as medidas com a magnetização saturada para a direita. Em seguida diminuimos monotonicamente o valor da campo até inverter o seu sentido, levando à saturação da magnetização para a esquerda. Todas as medidas foram realizadas com o campo no plano da amostra.	77
Figura 44 – Medidas de AMR para o filme de $Fe_{75}Co_{25}$ (20 nm) em formato de tira, crescido sob <i>sputtering</i> oblíquo com ângulo $\beta = 45^\circ$	77

LISTA DE SÍMBOLOS

α	Alfa
β	Beta
γ	Gama
\in	Pertence
δ	Delta
θ	Teta
σ	Sigma
μ	Mi
ϕ	Phi
χ	Chi
ψ	Psi
ω	Omega
η	Eta
λ	Lambda
κ	Capa
ϵ	Épsilon
ρ	Rô
ψ	Psi

SUMÁRIO

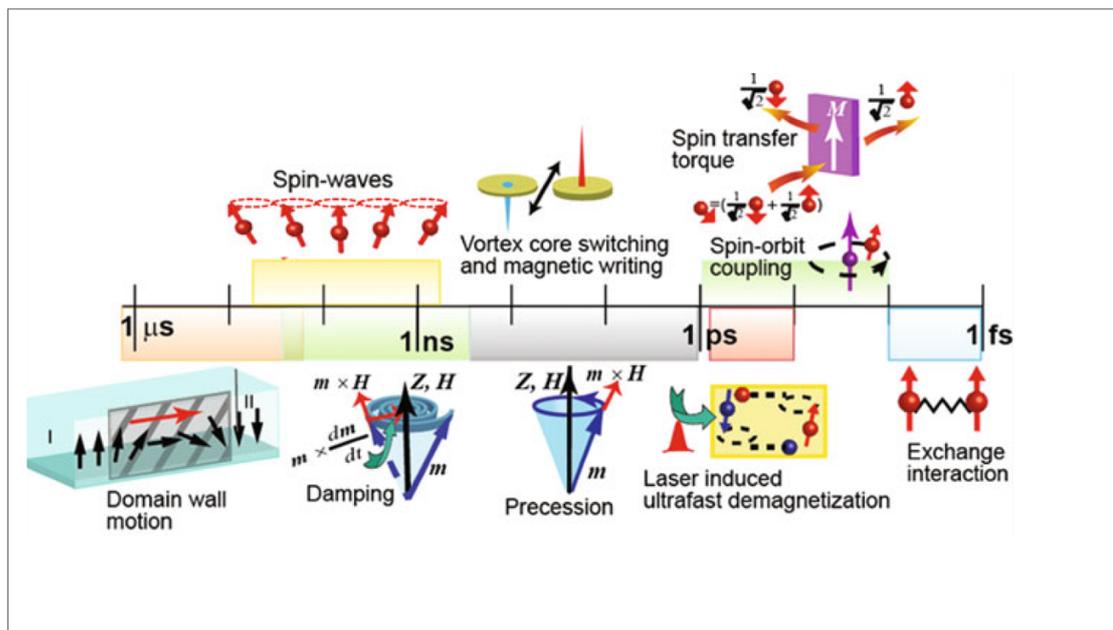
1	INTRODUÇÃO E CONTEXTUALIZAÇÃO	14
2	DESENVOLVIMENTO TEÓRICO	17
2.1	DINÂMICA DA MAGNETIZAÇÃO	17
2.1.1	Equação do movimento da magnetização	17
2.2	SUSCEPTIBILIDADE MAGNÉTICA E POTÊNCIA ABSORVIDA EM FMR	21
2.3	EQUAÇÃO DE SMIT-BELJERS	25
2.4	MECANISMOS DE RELAXAÇÃO DA MAGNETIZAÇÃO	27
2.5	ANISOTROPIAS MAGNÉTICAS	32
2.5.1	Anisotropia de forma	33
2.5.2	Anisotropia de forma	34
2.5.3	Anisotropia induzida	37
2.5.4	Anisotropia de superfícies e interfaces	39
2.6	MÉTODO DE ENERGIA APLICADO À RESSONÂNCIA FERROMAGNÉTICA EM FILMES FINOS	40
2.6.1	Solução numérica para os parâmetros de anisotropias e ressonância	41
2.7	O FENÔMENO DA MAGNETORRESISTÊNCIA	42
3	TÉCNICAS EXPERIMENTAIS	46
3.1	RESSONÂNCIA FERROMAGNÉTICA EM FILMES FINOS	46
3.2	SPUTTERING	50
3.2.1	Deposição por <i>sputtering</i> oblíquo	53
3.2.2	Calibração da taxa de deposição do alvo de $Fe_{75}Co_{25}$	55
3.3	AMR - ANISOTROPIC MAGNETORESISTANCE	58
4	RESULTADOS E DISCUSSÃO	60
4.1	PROPRIEDADES DOS FILMES DE $Fe_{75}Co_{25}$ CRESCIDOS COM $\beta = 0^\circ$.	60
4.2	CAMPO DE RESSONÂNCIA E LARGURA DE LINHA EM FUNÇÃO DO ÂNGULO DE CRESCIMENTO OBLÍQUO	63
4.3	PROPRIEDADES DOS FILMES DE $Fe_{75}Co_{25}$ CRESCIDOS COM $\beta = 0^\circ$.	71
4.4	MEDIDAS DE MAGNETORRESISTÊNCIA ANISOTRÓPICA (AMR)	76
5	CONCLUSÃO E PERSPECTIVAS	79
	REFERÊNCIAS	81

ANEXO A – MEDIDAS DE REFLETIVIDADE PARA AMOSTRAS FABRICADAS COM DIFERENTES ÂNGULOS DE CRESCIMENTO OBLÍQUO β	84
---	-----------

1 INTRODUÇÃO E CONTEXTUALIZAÇÃO

Devido à necessidade de aumentar a frequência de operação nos novos dispositivos spintrônicos, a taxa de relaxação da magnetização tem sido uma das propriedades mais investigadas, não só do ponto de vista teórico como experimental, incluindo a procura por novos materiais com baixas perdas magnéticas e o desenvolvimento de novas técnicas de caracterização. A influência do confinamento lateral em estruturas nanométricas e o efeito de propagação de correntes de spin nessas estruturas, introduziu novos elementos no estudo da dinâmica de spins. O entendimento dos mecanismos básicos responsáveis pelo amortecimento da magnetização e a busca por novos materiais tem impacto no desenvolvimento de memórias magnéticas de acesso aleatório (MRAMs), em nano-osciladores excitados por transferência de torque por injeção de spin, nas cabeças de leitura de discos rígidos etc. A figura 1 ilustra as escalas de tempo de vários processos dinâmicos da magnetização.

Figura 1 – Escalas de tempo de vários processos dinâmicos da magnetização.



Fonte: (BARMAN; SINHA, 2018)

Note que as escalas de tempo importantes para os diversos fenômenos variam desde 10^{-6} s (movimento de paredes de domínio) até 10^{-15} s (propagação da interação de troca). A dinâmica usual da magnetização nas cabeças de leitura ocorre na faixa de dezenas de GHz, enquanto a interação spin-órbita ocorre na faixa de centenas de THz. Por essa razão existem inúmeras técnicas experimentais apropriadas para investigar a dinâmica da magnetização

em diferentes regimes de tempo. Fenômenos relacionados às ondas de spin são investigados com técnicas de micro-ondas. Normalmente utiliza-se a banda-X (8 a 12 GHz), pois os equipamentos são mais acessíveis devido à sua larga utilização em estudos de EPR (*electron paramagnetic resonance*) na área de química. Detalhes sobre os mecanismos de relaxação da magnetização, bem como as técnicas experimentais utilizadas podem ser encontrados nas referências (BARMAN; SINHA, 2018; REZENDE, 2020; MEWES; MEWES, 2015). Um dos parâmetros mais importantes para a utilização das junções túnel magnéticas (MTJ – *Magnetic Tunnel Junction*) em MRAMs é o valor da densidade de corrente crítica necessário para ocorrer o chaveamento da magnetização. Esse valor foi calculado em (HUI et al., 2008) como:

$$J_c = \frac{2et_{FL}\alpha M_s(H + H_k + 2\pi M_s)}{\eta\hbar}, \quad (1.1)$$

em que H é o campo magnético aplicado ao longo do eixo de fácil magnetização, H_k é o campo de anisotropia efetivo (inclui anisotropia de forma e magnetocristalina), M_s é a magnetização de saturação, t_{FL} é a espessura da camada livre da MTJ, e α é a constante de amortecimento, chamada de parâmetro de amortecimento de Gilbert. Por vezes a quantidade αM_s é chamada de parâmetro de Gilbert. Conforme a equação 1.1, para diminuir J_c , temos que diminuir o produto αM_s . Nesse exemplo, resumido pela equação 1.1, entendemos por que um amortecimento baixo é desejável para reduzir a densidade de corrente crítica, necessária para o chaveamento (*switching*) da magnetização.

Ao contrário de materiais ferrimagnéticos isolantes, que possuem amortecimento ultra-baixo, os ferromagnéticos metálicos geralmente apresentam um amortecimento maior devido a mecanismos de espalhamento envolvendo os elétrons de condução. Contudo, em anos recentes foram descobertos materiais com parâmetros de amortecimento da ordem de 10^{-4} , valor comparado apenas com ferrimagnéticos isolantes. Shoen *et al* (SCHOEN et al., 2016) investigaram filmes policristalinos de $Si/Fe_{1-x}Co_x$, e descobriram que a composição $Fe_{75}Co_{25}$ apresentava um parâmetro de amortecimento da ordem de 10^{-4} , valor disruptivo para um condutor. Eles fizeram medidas de α_{int} para ligas de FeCo com diferentes concentrações, e puderam verificar um mínimo claro no valor de α_{int} para a concentração de 25% de Co e 75% de Fe. O amortecimento mínimo nessa composição foi atribuído ao mínimo na densidade de estados eletrônicos no nível de energia de Fermi (SCHOEN et al., 2016). Em 2017, Lee *et al* (LEE et al., 2017) investigaram filmes epitaxiais da mesma liga sobre substratos de $MgO(001)$ e $MgAlO_3$, e obtiveram parâmetros de amortecimento menores que $1.4 \cdot 10^{-3}$.

Em ambos os trabalhos, os filmes foram crescidos por sputtering de ultra-alto vácuo e foram utilizadas medidas de ressonância ferromagnética de banda larga, utilizando linhas de fita, para medir o amortecimento dos filmes. Após a publicação dos trabalhos acima mencionados, vários outros grupos publicaram trabalhos utilizando ligas semelhantes, com diferentes *buffer layers*, diferentes condições de deposição e encontraram resultados discrepantes, significando que a descoberta de filmes metálicos com baixas taxas de relaxação da magnetização é um assunto que merece ser explorado, não só pela importância do tema, mas pelas dificuldades de se estabelecer um protocolo de preparação desses filmes (CHENG et al., 2018; EDWARDS; NEMBACH; SHAW, 2019). Foi nesse contexto, que iniciamos a investigação de propriedades de ressonância ferromagnética (FMR) em filmes de $Fe_{75}Co_{25}$, crescidos sobre substratos puros de Si(001) ($R \sim 10^6 \Omega$) utilizando o *sputtering* disponível no nosso laboratório. A ideia inicial era investigar filmes com diferentes *buffer layers*, porém verificamos que mesmo os filmes crescidos diretamente sobre Si(001) já apresentaram resultados desafiadores. Foram crescidas várias séries de amostras com diferentes configurações de deposição. Na primeira série, crescida com o substrato perpendicular ao fluxo de átomos ejetados pelo *sputtering* (configuração usual), variamos a espessura. Numa segunda série de amostras, crescemos filmes com o plano do substrato inclinado em relação ao fluxo de átomos ejetados pelo *sputtering* por um ângulo β . Foi fixada a espessura (em 14 nm) e o ângulo β variou de 0° a 70° . Uma terceira série de filmes foi crescida, onde fixamos o ângulo $\beta = 40^\circ$ e variamos a espessura de 2 nm a 14 nm. Analisamos cada filme por medidas de FMR onde extraímos o campo de FMR e a largura de linha em função do ângulo no plano do filme. Também realizamos estudos preliminares de medidas de magnetorresistência nesses filmes. Utilizamos um modelo convencional baseado na energia livre magnética para interpretar os resultados, que estão discutidos no capítulo 4. Nos capítulos 2 e 3 dessa dissertação apresentamos a fundamentação teórica e as técnicas experimentais utilizadas. Por fim, embora adotamos o sistema SI no início do tratamento teórico, passamos a usar o sistema de unidades gaussiano (CGS) para obtenção e interpretação dos resultados, o qual é muito usado para estudos de FMR.

2 DESENVOLVIMENTO TEÓRICO

Neste capítulo revisaremos os conceitos fundamentais que servirão de suporte para o entendimento da dissertação. Faremos uma revisão sobre as propriedades dinâmicas da magnetização (equação de movimento, susceptibilidade magnética, equação de smit-Beljers, etc.). Revisaremos o conceito de anisotropias magnéticas com ênfase nos tipos de anisotropias induzidas de filmes finos. Por último investigaremos o método de energia livre magnética aplicado na dedução das equações do campo de ressonância ferromagnética e largura de linha. Depois utilizaremos essas ferramentas teóricas para interpretar os resultados experimentais que serão discutidos no capítulo 4.

2.1 DINÂMICA DA MAGNETIZAÇÃO

2.1.1 Equação do movimento da magnetização

Sabemos que os momentos magnéticos eletrônicos são a razão da origem do comportamento magnético dos materiais. Um átomo com momento angular total \vec{J} possui um momento magnético $\vec{\mu}$ dado por

$$\vec{\mu} = -\gamma\vec{J}, \quad (2.1)$$

sendo $\gamma = g\mu_B/\hbar$, em que g é o fator de Landé para um átomo, determinado por:

$$g = 1 + \frac{J(J+1) + S(S+1) - L(L+1)}{2J(J+1)}. \quad (2.2)$$

Aqui, $\vec{J} = \vec{S} + \vec{L}$, onde \vec{L} é o momento angular orbital e \vec{S} o momento angular de spin. Normalmente as propriedades magnéticas dos materiais dependem exclusivamente do momento angular de spin, pois o momento angular orbital é suprimido ($\vec{L} = 0$), assim $g = 2$. Se o momento $\vec{\mu}$ estiver submetido a um campo magnético \vec{B} , fica sujeito a um torque dado por $\vec{\tau} = \vec{\mu} \times \vec{B}$. Derivando a equação 2.1 com relação ao tempo, obtemos

$$\frac{d\vec{\mu}}{dt} = -\gamma \frac{d\vec{J}}{dt} \quad (2.3)$$

Como a derivada temporal do momento angular total é o torque, $\frac{d\vec{J}}{dt} = \vec{\tau}$, então a dinâmica de um único momento magnético é descrita pela equação:

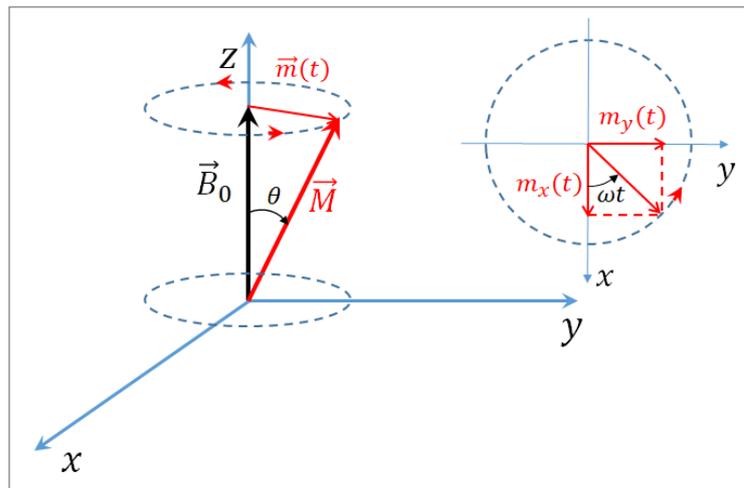
$$\frac{d\vec{\mu}}{dt} = -\gamma(\vec{\mu} \times \vec{H}). \quad (2.4)$$

A equação 2.4 é conhecida como a equação do torque. A magnetização de um material é definida como o momento magnético total por unidade de volume, isto é, $\vec{M} = \frac{1}{V} \sum \vec{\mu}$, onde a escala de comprimento é grande o suficiente para que uma média de pelo menos vários momentos magnéticos atômicos seja realizada. Sob esta condição, a magnetização pode ser considerada como um campo vetorial de variação suave. Aplicando-se a definição de magnetização na equação 2.4, obtemos uma expressão do movimento para a magnetização de um volume V:

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = -\gamma (\vec{M} \times \vec{H}). \quad (2.5)$$

Considerando que o campo magnético externamente aplicado está ao longo da direção \hat{z} , conforme descrito na figura 4, podemos escrever o vetor magnetização como $\vec{M}(\vec{r}, t) = m_x(t)\hat{x} + m_y(t)\hat{y} + M_z\hat{z}$, em que M_z é constante (como será mostrado mais adiante).

Figura 2 – Ilustração do vetor magnetização de um meio macroscópico sob efeito de um campo externo \vec{B}_0 . O campo magnético é $B_0\hat{z}$, o vetor magnetização \vec{M} precessiona formando um ângulo θ com o eixo z e a componente dependente do tempo da magnetização, transversal ao campo magnético, é $\vec{m}(t) = m_x(t)\hat{x} + m_y(t)\hat{y}$.



Fonte: Próprio autor

Da equação 2.5, obtemos:

$$\begin{cases} \frac{dm_x}{dt} + \gamma B_0 m_y = 0 \\ \frac{dm_y}{dt} - \gamma B_0 m_x = 0 \end{cases} \quad (2.6)$$

Elas podem ser facilmente desacopladas tomando as segundas derivadas, de modo que obtemos:

$$\begin{cases} \frac{d^2 m_x}{dt^2} + \gamma^2 \mu_0^2 H_0^2 m_x = 0 \\ \frac{d^2 m_y}{dt^2} + \gamma^2 \mu_0^2 H_0^2 m_y = 0 \end{cases} \quad (2.7)$$

As equações 2.7 mostram que a ponta do vetor magnetização descreve um movimento circular uniforme no plano x-y (como ilustrado na 4), com componentes m_x e m_y e cuja frequência normal é dada por $\omega_0 = \gamma \mu_0 H_0$ e as soluções são funções harmônicas:

$$\vec{m}_x(t) = m_x e^{-i\omega_0 t} \quad \vec{m}_y(t) = m_y e^{-i\omega_0 t} \quad (2.8)$$

Em estudos de FMR é comum se usar o sistema CGS, onde $\mu_0 = 1$, e portanto $\omega_0 = \gamma H_0$, de modo que a magnetização entra em ressonância quando a frequência é $\omega_0 = \gamma H_0$. O fator giromagnético $\gamma = g_S \mu_B / \hbar = 1,76 \cdot 10^{11} \text{ rad}/(\text{s} \cdot \text{T})$ ou $\gamma/2\pi = 28 \text{ GHz}/\text{T}$. Portanto, para valores típicos de H_0 , de alguns kOe, a frequência de ressonância ocorre na faixa de micro-ondas. Podemos mostrar que a magnetização \vec{M} precessiona em torno do campo \vec{B}_0 com comprimento fixo. Primeiro, fazemos proveito da identidade:

$$\frac{d}{dt}(\vec{M} \cdot \vec{M}) = \frac{dM^2}{dt} = 2\vec{M} \cdot \frac{d\vec{M}}{dt}. \quad (2.9)$$

Utilizando a equação 2.5, concluímos que:

$$\frac{dM^2}{dt} = -2\gamma \vec{M} \cdot (\vec{M} \times \vec{B}_0) = -2\gamma \vec{B}_0 \cdot (\vec{M} \times \vec{M}) = 0. \quad (2.10)$$

O resultado 2.10 significa que o quadrado do módulo do vetor magnetização não varia com o tempo, de modo que seu módulo é não varia com o tempo, mas a sua direção sim. Para encontrar a variação temporal do vetor \vec{M} , fazemos $d\vec{M}/dt = -\gamma M B_0 \sin \theta \hat{n}$, onde \hat{n} aponta na direção perpendicular ao plano formado por \vec{M} e \vec{B}_0 . Como a magnitude de \vec{M} é fixa, sua ponta só poderá se mover numa superfície esférica de raio M. Além disso, a projeção de \vec{M} ao longo de \vec{B}_0 é independente do tempo,

$$\frac{d}{dt}(\vec{M} \cdot \vec{B}_0) = \frac{d\vec{M}}{dt} \cdot \vec{B}_0 + \frac{d\vec{B}_0}{dt} \cdot \vec{M} = -\gamma(\vec{M} \times \vec{B}_0) \cdot \vec{B}_0 + \frac{d\vec{B}_0}{dt} \cdot \vec{M} = 0 \quad (2.11)$$

Portanto, o vetor \vec{M} está restrito a precessionar em torno de \vec{B}_0 com comprimento fixo.

Contudo, a equação 2.5 não descreve o comportamento da ressonância observado experimentalmente, pois observa-se que a magnetização decai num tempo finito. Uma equação que pode descrever a forma do amortecimento da magnetização devido à mecanismos de relaxação é a equação de Landau-Lifshitz (LANDAU; LIFSHITZ, 1992), em que nela o amortecimento

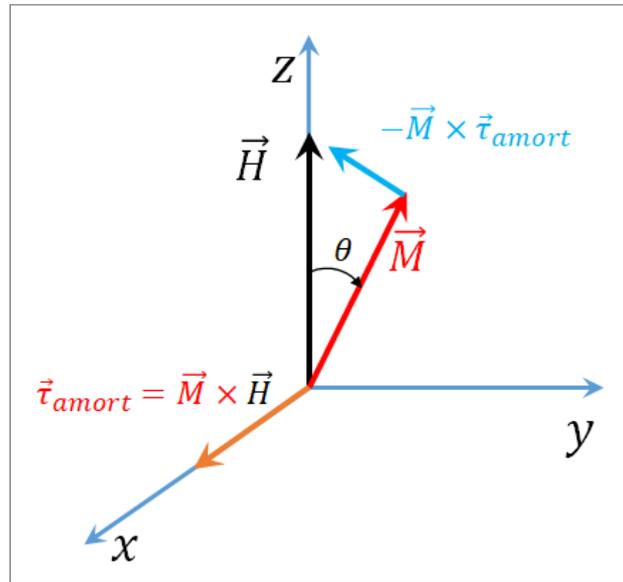
é introduzido como um termo fenomenológico representando a energia perdida para a rede cristalina, devido a mecanismos tanto intrínsecos como extrínsecos. Landau e Lifshitz introduziram o termo $-(\lambda/M)[\vec{M} \times (\vec{M} \times \vec{H})]$, onde λ é um parâmetro ajustável, que tem as mesmas unidades de γ . Muitos anos depois Gilbert (GILBERT, 1955) (GILBERT, 2004) propôs um outro termo dado por $(\alpha/M)[\vec{M} \times d\vec{M}/dt]$, onde α é um parâmetro adimensional, conhecido como parâmetro de Gilbert. As duas equações de movimento podem ser escritas como

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = -\gamma (\vec{M} \times \vec{H}) - \frac{\lambda}{M} (\vec{M} \times (\vec{M} \times \vec{H})), \quad \text{L-L} \quad (2.12)$$

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = -\gamma (\vec{M} \times \vec{H}) + \frac{\alpha}{M_s} \left(\vec{M} \times \frac{\partial \vec{M}}{\partial t} \right), \quad \text{(Gilbert)} \quad (2.13)$$

Para ver que o segundo termo do lado direito da equação de L-L representa um torque que tende a alinhar a magnetização com o campo aplicado, podemos escrever o 2º termo como $-(\lambda/M)[\vec{M} \times (\vec{M} \times \vec{H})] = \lambda[\vec{M} \times \vec{\tau}_{amort}]$, onde $\vec{\tau}_{amort} = (\vec{M} \times \vec{H})$, como ilustrado na figura 3.

Figura 3 – Sistema de referência com os vetores magnetização e campo magnético.



Fonte: Próprio autor

Podemos mostrar que partindo da equação de Gilbert chegamos na equação de L-L. Multiplicando a equação de Gilbert por $\vec{M} \times$, temos

$$\vec{M} \times \frac{d\vec{M}}{dt} = -\gamma \vec{M} \times (\vec{M} \times \vec{H}) + \frac{\alpha}{M_s} \vec{M} \times \left(\vec{M} \times \frac{d\vec{M}}{dt} \right) = -\gamma \vec{M} \times (\vec{M} \times \vec{H}) - \frac{\alpha}{M_s} M^2 \frac{d\vec{M}}{dt} \quad (2.14)$$

Substituindo o resultado 2.14 na equação de Gilbert,

$$\begin{aligned}
\frac{d\vec{M}}{dt} &= -\gamma(\vec{M} \times \vec{H}) + \frac{\alpha}{M} \left[-\gamma\vec{M} \times (\vec{M} \times \vec{H}) - \alpha M \frac{d\vec{M}}{dt} \right] \\
\frac{d\vec{M}}{dt}(1 + \alpha^2) &= -\gamma\vec{M} \times \vec{H} - \frac{\alpha\gamma}{M}\vec{M} \times (\vec{M} \times \vec{H}) \\
\frac{d\vec{M}}{dt} &= -\frac{\gamma}{(1 + \alpha^2)}\vec{M} \times \vec{H} - \frac{\alpha\gamma}{M(1 + \alpha^2)}\vec{M} \times (\vec{M} \times \vec{H}) \quad (2.15)
\end{aligned}$$

A equação 2.15 se reduz à equação de L-L no limite de $\alpha \ll 1$. Na verdade, a equação de Gilbert é mais fundamental do que a de Landau-Lifshitz. Gilbert mostrou que a equação L-L falha para grandes valores de α , e o seu termo de amortecimento sai da análise Lagrangiana. É importante ressaltar que a equação 2.13 não é aplicável à todos os tipos de materiais magnéticos. Em materiais isolantes do tipo ferromagnético e ferrimagnético a equação 2.13 não se aplica em virtude da magnetização desses materiais não permanecer constante durante o processo de relaxação. O mecanismo de relaxação da magnetização desses materiais é descrito pelo tratamento fenomenológico devido a Bloch e Bloembergen (REZENDE, 2020; BLOEMBERGEN, 1950; WHITE; WHITE; BAYNE, 1983).

As perdas magnéticas, responsáveis pela relaxação do vetor magnetização foram muito estudadas em isolantes magnéticos nos anos de 1960 (MENDES et al., 2010). A partir dos anos de 1970, surgiu o interesse por investigar os mecanismos de relaxação da magnetização em metais magnéticos. Isso ocorreu, devido ao interesse tecnológico para usar filmes metálicos em gravação digital de dados. Nos últimos tempos o interesse em estudar relaxação da magnetização é motivado pela descoberta de dispositivos que operam nos regime de nano-segundos (ns) e sub-ns. Como o parâmetro de Gilbert α controla a velocidade de chaveamento da magnetização, o entendimento dos seus mecanismos básicos tornou-se crítico.

2.2 SUSCEPTIBILIDADE MAGNÉTICA E POTÊNCIA ABSORVIDA EM FMR

Consideramos agora um campo efetivo na amostra da forma $\vec{H}_{ef} = H\hat{z} + \vec{h}(t)$, com $\vec{h}(t) = (h_x\hat{x} + h_y\hat{y})e^{i\omega t}$. Podemos escrever a magnetização da amostra como $\vec{M} = M\hat{z} + \vec{m}(t)$, sendo $\vec{m}(t) = (m_x\hat{x} + m_y\hat{y})e^{i\omega t}$. Assim, substituindo essas expressões e tomando os produtos vetoriais na equação de LLG, e assumindo $M_s \approx M$, obtemos as seguintes expressões para as componentes da magnetização transversal,

$$\begin{cases} i\omega m_x = \gamma M h_y - (\gamma H - i\alpha\omega)m_y \\ i\omega m_y = -\gamma M h_x + (\gamma H - i\alpha\omega)m_x \\ 0 = m_y h_x + m_x h_y. \end{cases} \quad (2.16)$$

Desse modo, podemos definir o tensor susceptibilidade magnética $\overleftrightarrow{\chi}$, que relaciona o vetor de magnetização $\vec{m}(t)$ com o vetor campo magnético transversal $\vec{h}(t)$:

$$\vec{m}(t) = \overleftrightarrow{\chi} \cdot \vec{h}(t) \quad (2.17)$$

Para o sistema de coordenadas adotado não há componentes de \vec{m} e \vec{h} na direção do eixo z, o tensor susceptibilidade magnética apresenta a seguinte forma:

$$\overleftrightarrow{\chi} = \begin{pmatrix} \chi_{xx} & i\chi_{xy} & 0 \\ -i\chi_{xy} & \chi_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.18)$$

χ_{xx} e χ_{xy} são números complexos: $\chi_{xx} = \chi'_{xx} + i\chi''_{xx}$ e $\chi_{xy} = \chi'_{xy} + i\chi''_{xy}$. Utilizando 2.16, podemos escrever as magnetizações transversais em termos dos parâmetros físicos na forma:

$$\begin{cases} m_x = \left[\frac{i\omega\gamma M_s}{(\gamma H - i\alpha\omega)^2 - \omega^2} \right] h_y + \left[\frac{\gamma M_s(\gamma H - i\alpha\omega)}{(\gamma H - i\alpha\omega)^2 - \omega^2} \right] h_x \\ m_y = \left[\frac{-i\omega\gamma M_s}{(\gamma H - i\alpha\omega)^2 - \omega^2} \right] h_x + \left[\frac{\gamma M_s(\gamma H - i\alpha\omega)}{(\gamma H - i\alpha\omega)^2 - \omega^2} \right] h_y. \end{cases} \quad (2.19)$$

Assim, podemos escrever as componentes do tensor susceptibilidade magnética como:

$$\chi'_{xx} + i\chi''_{xx} = \frac{\gamma M_s(\gamma H - i\alpha\omega)}{(\gamma H - i\alpha\omega)^2 - \omega^2} \quad (2.20)$$

$$\chi'_{xy} + i\chi''_{xy} = \frac{i\omega\gamma M_s}{(\gamma H - i\alpha\omega)^2 - \omega^2} \quad (2.21)$$

Por fim, obtemos as partes reais e imaginárias das componentes do tensor eliminando a parte imaginária do denominador nas equações 2.20 e 2.21. Conforme mostrado também em (JÚNIOR, 2018), ficamos com:

$$\chi'_{xx} = \frac{HM_s}{T} \left[H^2 - (1 - \alpha^2) \frac{\omega^2}{\gamma^2} \right] \quad (2.22)$$

$$\chi''_{xx} = \frac{\alpha M_s \omega}{T \gamma} \left[H^2 + (1 + \alpha^2) \frac{\omega^2}{\gamma^2} \right] \quad (2.23)$$

$$\chi'_{xy} = \frac{M_s \omega}{T \gamma} \left[H^2 - (1 + \alpha^2) \frac{\omega^2}{\gamma^2} \right] \quad (2.24)$$

$$\chi''_{xy} = \frac{2\alpha H M_s \omega^2}{T \gamma^2}, \quad (2.25)$$

$$\text{em que } T = \left\{ \left(2\alpha H \frac{\omega}{\gamma} \right)^2 + \left[H^2 - (1 + \alpha^2) \frac{\omega^2}{\gamma^2} \right]^2 \right\}$$

Contudo, do ponto de vista experimental as medidas de ressonância ferromagnética nos materiais de interesse em geral apresentam $\alpha \ll 1$. Como o campo de ressonância é $H_r = \frac{\omega}{\gamma}$ e assumindo campos próximos do campo de ressonância, de modo que podemos tomar $H^2 - H_r^2 = (H + H_r)(H - H_r) \approx 2H_r(H - H_r)$, achamos as formas lorentzianas para as componentes da susceptibilidade:

$$\chi'_{xx} = \chi'_{xy} = \frac{M_s(H - H_r)}{2[(\Delta H)^2 + (H - H_r)^2]} \quad (2.26)$$

$$\chi''_{xx} = \chi''_{xy} = \frac{M_s \Delta H}{2[(\Delta H)^2 + (H - H_r)^2]}, \quad (2.27)$$

em que identificamos a largura de linha da lorentziana como $\Delta H = \alpha H_r = \alpha \frac{\omega}{\gamma}$. O parâmetro $\eta = \alpha \omega$ é o que reconhecemos como a taxa de relaxação da magnetização. Assim, a largura de linha deve aumentar linearmente com a frequência de ressonância. Contudo, além dos mecanismos que contribuem para o aumento do amortecimento intrínseco dos materiais metálicos, devemos também considerar as contribuições extrínsecas locais (defeitos) e não locais (vizinhança) do material para a largura de linha.

$$\Delta H = \Delta H_0 + \frac{\alpha \omega}{\gamma}, \quad (2.28)$$

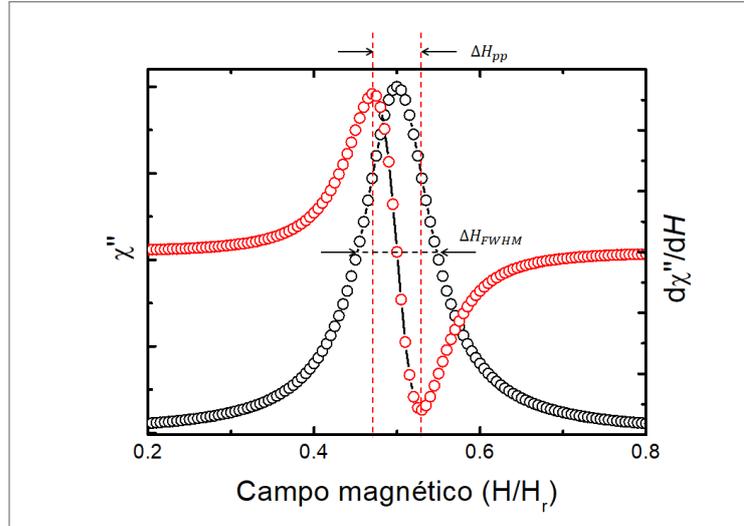
em que ΔH_0 descreve mecanismos de alargamento de linha que independem da frequência e são devidos a inhomogeneidades magnéticas.

Vale a pena discutir um pouco sobre a análise da largura de linha de FMR. A curva de absorção, dada por 2.27, e sua derivada (Eq. 2.29 abaixo), ambas com amplitude A, estão mostradas no gráfico normalizado apresentado na figura ??.

$$\frac{d\chi''_{xx}}{dH} = -A \frac{M_s \Delta H (H - H_r)}{[(\Delta H)^2 + (H - H_r)^2]^2} \quad (2.29)$$

A largura de linha ΔH usada nas equações 2.27 e 2.29 é $\Delta H_{HWHM} = (1/2)H_{FWHM}$, onde as siglas HWHM e FWHM correspondem aos termos "*Half Width at Half Maximum*" e "*Full Width at Half Maximum*", respectivamente. Portanto, o parâmetro extraído do ajuste

Figura 4 – Curva lorentziana (vermelho) e sua derivada (cinza). Usamos $\Delta H_{HWHM} = 0.05$ e obtemos $\Delta H_{FWHM} = 0.1$ e $\Delta H_{pp} = (2/\sqrt{3}) \cdot 0.05 = 0.057$



Fonte: Próprio autor

dos pontos experimentais é ΔH_{HWHM} , que está relacionada com a taxa de relaxação por $\eta = \gamma \Delta H_{HWHM} = (1/2) \Delta H_{FWHM}$. Como $\eta = \alpha \omega$, temos que: $\alpha = \gamma \Delta H_{HWHM} / \omega$. Podemos mostrar que a largura de linha extraída do ajuste ΔH_{HWHM} está relacionada com a largura pico-a-pico por.

$$\Delta H_{pp} = \frac{2\Delta H_{HWHM}}{\sqrt{3}} \quad (2.30)$$

Para ocorrer o processo de ressonância, os momentos magnéticos da amostra devem absorver energia para poder realizar a precessão (bem como eles devem liberar energia ao parar de precessionar). A energia total absorvida pela amostra está associada com o campo efetivo (campo aplicado externo, campos de anisotropias, etc) e com o campo de radiofrequência. Ela pode ser escrita como:

$$E = -\vec{M} \cdot (\vec{H}_{eff} + \vec{h}(t)) \quad (2.31)$$

Assim, a potência média de absorção seria dada por:

$$P = -\left\langle \frac{d}{dt} (\vec{M} \cdot (\vec{H}_{eff} + \vec{h}(t))) \right\rangle = -\left\langle \frac{d\vec{m}}{dt} \cdot (\vec{H}_{eff} + \vec{m}(t)) + \vec{M} \cdot \frac{d\vec{h}(t)}{dt} \right\rangle \quad (2.32)$$

Utilizando o fato de que $\vec{m}(t)$ é transversal à \vec{M}_z (e igualmente para $\vec{h}(t)$ e \vec{H}_{eff}) e considerando que tanto a magnetização $\vec{m}(t)$ e o campo $\vec{h}(t)$ possuem uma forma de oscilação $e^{i\omega t}$, então obtemos:

$$P = -\frac{1}{2} Re \left[i\omega \vec{m}(t) \cdot \vec{h}(t) + i\omega \vec{m}(t) \cdot \vec{h}(t) \right] = -Re \left[i\omega \vec{h}(t) \cdot \overleftarrow{\chi} \cdot \vec{h}(t) \right], \quad (2.33)$$

em que utilizamos a equação 2.17. Assim, vemos que a potência absorvida pela amostra depende do quadrado da intensidade do campo da radiação de microondas, conforme o teorema de Poyting. Para ver como que a potência depende da susceptibilidade magnética de uma forma mais clara, vamos escrevê-la usando uma notação mais conveniente:

$$P = -Re \left[i\omega \sum_{i=1}^3 \sum_{j=1}^3 h_i h_j \chi_{ij} \right] = -Re \left[i\omega \sum_{i=1}^3 \sum_{j=1}^3 h_i h_j (\chi'_{ij} + i\chi''_{ij}) \right] = \omega \sum_{i=1}^3 \sum_{j=1}^3 h_i h_j \chi''_{ij} \quad (2.34)$$

Assim, no caso de uma onda propagando-se com uma polarização específica (digamos, x), teríamos a potência absorvida:

$$P = \omega h_x^2 \chi''_{xx}(H). \quad (2.35)$$

Em um experimento de FMR, os spins deverão precessionar todos em fase quando ocorrer a ressonância, de forma que temos um modo uniforme com $\vec{k} = 0$. O sinal detectado no experimento de FMR corresponde à derivada da potência absorvida, de modo que o espectro obtido é justamente a derivada de uma função lorentziana, Eq. 2.29.

2.3 EQUAÇÃO DE SMIT-BELJERS

Uma equação para determinar a frequência de ressonância ferromagnética para a uma orientação arbitrária da magnetização e do campo magnético foi desenvolvida por Suhl (SUHL, 1955) e também por Smit e Beljers, de maneira independente (SMIT, 1955). Para obtermos uma expressão geral, adotamos coordenadas esféricas e expandimos a energia, em torno do ponto de equilíbrio, em função das componentes polar e azimutal da magnetização.

$$E(m_\theta, m_\phi) = E_0 + \sum_{\alpha=\theta,\phi} \left. \frac{\partial E}{\partial m_\alpha} \right|_{\theta_0,\phi_0} m_\alpha + \frac{1}{2} \sum_{\alpha,\beta=\theta,\phi} \left. \frac{\partial^2 E}{\partial m_\alpha \partial m_\beta} \right|_{\theta_0,\phi_0} m_\alpha m_\beta + \dots \quad (2.36)$$

em que θ_0 e ϕ_0 denotam os ângulos de equilíbrio. Todavia, no equilíbrio esperamos que as primeiras derivadas sejam nulas. Além disso, os termos seguintes da série decaem muito rapidamente. Portanto, na prática somente o termo envolvendo a segunda derivada se torna importante para esse caso. Sabemos que a energia associada com a magnetização na presença do campo magnético é dada por $E = -\mu_0 \vec{M} \cdot \vec{H}$, de modo que uma mudança infinitesimal na magnetização implicaria numa mudança infinitesimal da energia dada por $dE = -\mu_0 \vec{H} \cdot d\vec{M}$. Portanto, podemos escrever o campo efetivo como o gradiente da energia em relação à magnetização:

$$\vec{H}_{eff} = -\frac{1}{\mu_0} \nabla_{\vec{M}} E(\vec{M}) \quad (2.37)$$

Assumindo que o movimento de precessão apresenta desvios pequenos em torno dos ângulos de equilíbrio θ_0 e ϕ_0 , podemos fazer $m_\theta = M \sin \delta\phi \approx M\delta$ e $m_\phi = M \sin \theta \sin \delta\phi \approx M \sin \theta \delta\phi$. Utilizando a equação 2.5, com o campo magnético tomado como um campo efetivo, e assumindo a magnetização em um estado saturado e em coordenadas esféricas (portanto, $M_r \approx M = \text{constante}$), cujas componentes angulares oscilam com frequência ω , obtemos:

$$\begin{cases} i\omega m_\theta = \gamma M \frac{\partial E}{\partial m_\phi} \\ i\omega m_\phi = \gamma M \frac{\partial E}{\partial m_\theta} \end{cases} \quad (2.38)$$

Usando novamente $dm_\phi \approx M \sin \theta d\phi$ e $dm_\theta \approx M d\theta$, em conjunto com a expressão para a energia em série de potências, equação 2.36, podemos obter o seguinte sistema de equações:

$$\begin{cases} \left[-\frac{i\omega M \sin \theta_0}{\gamma} + \left(\frac{\partial^2 E}{\partial \theta \partial \phi} \right)_{\theta_0, \phi_0} \right] m_\theta + \left(\frac{1}{\sin \theta_0} \frac{\partial^2 E}{\partial \phi^2} \right)_{\phi_0} m_\phi = 0 \\ \left(\frac{\partial^2 E}{\partial \theta^2} \right)_{\theta_0} m_\theta - \left[\frac{1}{\sin \theta_0} \left(\frac{\partial^2 E}{\partial \theta \partial \phi} \right)_{\theta_0, \phi_0} - \frac{i\omega M}{\gamma} \right] m_\phi = 0, \end{cases} \quad (2.39)$$

em que θ_0 e ϕ_0 denotam os ângulos polar e azimutal de equilíbrio da magnetização, respectivamente. A solução desse sistema de equações nos fornece a frequência de ressonância do sistema:

$$\omega = \frac{\gamma}{M \sin \theta_0} \left[\left(\frac{\partial^2 E}{\partial \theta^2} \frac{\partial^2 E}{\partial \phi^2} \right)_{\theta_0, \phi_0} - \left(\frac{\partial^2 E}{\partial \theta \partial \phi} \right)_{\theta_0, \phi_0}^2 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (2.40)$$

É importante notar que devemos ter um sistema de coordenadas tal que $\theta_0 \neq \pi/2$ e $\theta_0 \neq 3\pi/2$. Também existe uma expressão para a largura de linha de FMR em função das derivadas das energias envolvidas e cuja contribuição para a largura de linha total corresponde apenas ao amortecimento de Gilbert:

$$\Delta H_{Gilbert} = \frac{2\alpha}{\sqrt{3}} \frac{1}{M^2} \left(\frac{\partial^2 E}{\partial \theta_M^2} + \frac{1}{\sin^2 \theta_M} \frac{\partial^2 E}{\partial \phi_M^2} \right) \quad (2.41)$$

Em suma, podemos determinar a frequência de ressonância do sistema achando os ângulos de equilíbrio da magnetização, o que pode ser feito assumindo que as primeiras derivadas da energia são nulas nesses ângulos. Para medidas de campo de ressonância e largura de linha feitas com campo aplicado no plano do filme (portanto, $\theta_0 = \pi/2$), variamos o ângulo azimutal ϕ de 0 a 2π . Como a energia é necessariamente dependente do campo, podemos obter

equações do campo de ressonância e largura de linha em função do ângulo no plano, de modo a ser possível resolver numericamente para obter o fator γ , ou ainda sendo mais específico, o parâmetro de amortecimento de Gilbert para a magnetização, além de outros parâmetros fundamentais e complementares para caracterizar o magnetismo no material. Para tanto, é imprescindível determinar as energias envolvidas para tipos de sistemas com propriedade magnéticas específicas, como veremos em seções posteriores.

2.4 MECANISMOS DE RELAXAÇÃO DA MAGNETIZAÇÃO

Filmes finos ferromagnéticos e multicamadas têm se mostrado sistemas muito adequados para investigar fenômenos básicos de relaxação da magnetização. Como os filmes finos possuem natureza bidimensional e são facilmente fabricados com interfaces de diferentes materiais, têm sido usados para descobrir novos mecanismos de relaxação magnética. Portanto, filmes finos ferromagnéticos (e multicamadas) são sistemas muito convenientes para investigar a coexistência e a eventual interação entre mecanismos de relaxação intrínsecos e extrínsecos. Na verdade, podemos utilizar diferentes artifícios durante a fabricação dos filmes para favorecer um tipo de amortecimento em detrimento de outro (ZHU et al., 2012; ALVAREZ et al., 2014). Enquanto os mecanismos intrínsecos de relaxação são inevitáveis, os mecanismos extrínsecos são controláveis. Por exemplo, em temperatura finita a existência de mágnons, fônons e elétrons de condução geralmente constitui uma propriedade intrínseca de metais magnéticos e a maioria dos processos de relaxação nesses materiais pode ser explicado como devido ao espalhamento do spin por essas diferentes excitações elementares. Por outro lado, entre os mecanismos extrínsecos de relaxação, o mecanismo de espalhamento de 2-mágnons se mostrou muito importante em filmes e multicamadas magnéticas. No espalhamento de 2-mágnons, o modo de precessão uniforme ($\vec{k} \approx 0$), que é excitado por FMR, pode decair em modos de ondas de spin com $\vec{k} \neq 0$, que são degenerados em frequência. Como é um processo que não conserva momento, ele precisa de defeitos para servir de espalhadores e conservar o momento total.

Para entender como funciona o mecanismo de espalhamento de 2-mágnons em filmes finos é imprescindível obter a relação de dispersão das ondas de spin nesses filmes, bem como o efeito dos campos dipolares de superfície na frequência dessas ondas, e o método padrão para realizar esse tipo de abordagem, pelo menos para as ondas com comprimento de onda comparáveis com as dimensões do filme, é usar um tratamento magnetoestático partindo da equação

derivada por Larry Walker (WALKER, 1958) (a equação de Walker). Com o intuito de evitar deixar essa seção muito longa, inicialmente muitas das relações iniciais para o entendimento do fenômeno não serão provadas, e só abordaremos os aspectos mais relevantes para posterior entendimento do mecanismo de relaxação da magnetização por espalhamento de mágnons. Nessa abordagem, os valores do número de onda interessantes devem satisfazer os limites $10\text{cm}^{-1} < k < 10^3\text{cm}^{-1}$, de modo a termos um regime magnetoestático com interação de *exchange* e um campo elétrico desprezíveis (REZENDE, 2020). Usando as equações de Maxwell apropriadas, escrevemos (em CGS):

$$\vec{\nabla} \times (\vec{h}/\mu) = \frac{1}{c} \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \frac{4\pi}{c} \vec{J} = 0 \quad (2.42)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{h} = \vec{\nabla} \cdot (\vec{h} + 4\pi\vec{m}) = 0, \quad (2.43)$$

onde adotamos o campo magnético estático na direção do eixo z, como de costume. Vale lembrar que $\vec{h}(\vec{r}, t) = \vec{h}(\vec{r})e^{-i\omega t}$ e $\vec{m}(\vec{r}, t) = \vec{m}(\vec{r})e^{-i\omega t}$, ambos contidos no plano x-y. Como o rotacional da componente AC do campo magnético é nulo, então essa componente pode ser escrita como o gradiente do potencial escalar associado ao campo magnético, isto é, $\vec{h} = -\vec{\nabla}\psi$, de modo que ao substituirmos na equação 2.43, obteremos:

$$\nabla^2\psi = \vec{\nabla} \cdot (4\pi\vec{m}) \quad (2.44)$$

Queremos resolver as equações 2.42 e 2.44, e para tanto usamos o fato de \vec{h} e \vec{m} estarem relacionados entre si pelo tensor susceptibilidade magnética, equação 2.17. Escrevemos esse tensor na forma

$$\overleftrightarrow{\chi} = \begin{pmatrix} \kappa & i\nu & 0 \\ -i\nu & \kappa & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad (2.45)$$

onde pode ser mostrado que κ e ν satisfazem as seguintes relações:

$$\kappa = \frac{\gamma 4\pi M \omega_H}{\omega_H^2 - \omega^2} \quad \nu = \frac{\gamma 4\pi M \omega}{\omega_H^2 - \omega^2}, \quad (2.46)$$

sendo $\omega_H = \gamma H$. Usando a equação 2.17 em unidades CGS com o tensor dado por 2.45, obteremos as seguintes componentes da magnetização transversal:

$$\begin{cases} 4\pi\vec{m}_x = (\kappa h_x - i\nu h_y)\hat{x} \\ 4\pi\vec{m}_y = (\kappa h_y + i\nu h_x)\hat{y} \end{cases} \quad (2.47)$$

Portanto:

$$\nabla^2 \psi = \vec{\nabla} \cdot (4\pi \vec{m}) = \frac{\partial}{\partial x} (kh_x - i\nu h_y) + \frac{\partial}{\partial y} (i\nu h_x + i\kappa h_y) \quad (2.48)$$

Escrevendo as componentes de \vec{h}_x e \vec{h}_y em termos do potencial escalar magnético ψ , finalmente obtemos a equação de Walker:

$$(1 + \kappa) \left(\frac{\partial^2 \psi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \psi}{\partial y^2} \right) + \frac{\partial^2 \psi}{\partial z^2} = 0 \quad (2.49)$$

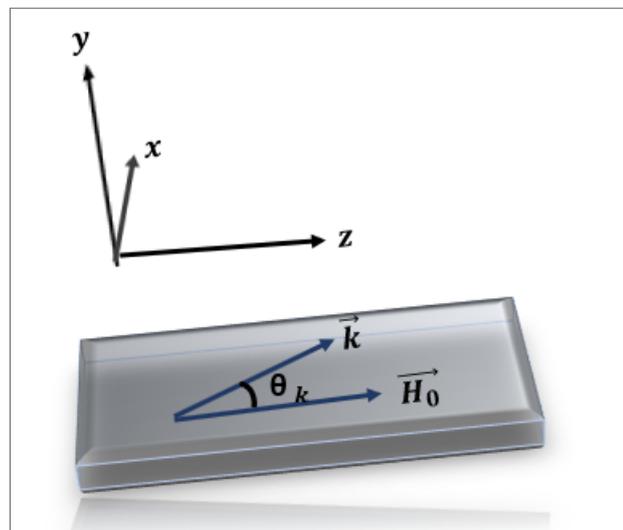
Assim, na região fora da amostra ferromagnética, a equação de Walker se reduz a equação de Laplace, como esperado. Partindo de 2.49, uma relação de dispersão das ondas de spin magnetoestáticas em um filme fino de dimensão infinita e não contornado por outros filmes pode ser obtida. Utilizando o método de separação de variáveis e as condições de contornos apropriadas nas regiões fora e no interior do filme, é possível obter (REZENDE, 2020) (DAMON; ESHBACH, 1961):

$$1 + 2(1 + \kappa)(-\delta)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{\cos [kt(-\delta)^{\frac{1}{2}}]}{\sin [kt(-\delta)^{\frac{1}{2}}]} \right) + \delta(1 + \kappa)^2 - \nu^2 \sin^2 \theta_k = 0, \quad (2.50)$$

com $\sin \theta_k = \frac{k_x}{k}$ e $\delta = \frac{1 + \kappa \sin^2 \theta_k}{1 + \kappa}$,

onde fica implícito que o ângulo θ_k é o ângulo entre o campo estático aplicado (aplicado no plano do filme, na direção do eixo z) e o vetor de onda \vec{k} , e t é a espessura do filme (ver figura 5).

Figura 5 – Sistema de referência utilizado no cálculo da relação de dispersão de ondas de spins no regime magnetoestático.



Fonte: Próprio autor

A equação 2.50 representa a relação de dispersão para ondas de spin magnetoestáticas em um filme fino ferromagnético magnetizado no plano. Para entender as possíveis soluções associadas a 2.50, primeiro notamos que o potencial escalar magnético na região dentro do filme deve assumir a forma

$$\psi(\vec{r}) = [A \sin k_y^i y + B \cos k_y^i y] e^{ik_x x} e^{ik_z z}, \quad \text{onde } k_y^i = k \left(-\frac{1 + \kappa \sin^2 \theta_k}{1 + \kappa} \right)^{1/2} \quad (2.51)$$

Pode-se verificar que a depender da faixa de frequências, k_y^i pode assumir valores reais ou imaginários. Valores reais correspondem a modos magnetoestáticos volumétricos de ondas de spin, enquanto que valores imaginários correspondem a modos de ondas de spin de superfície. No modo de volume o potencial magnético preenche toda a parte *bulk* do filme. Em contrapartida, no modo de superfície o potencial é máximo justamente nas superfícies, decaindo exponencialmente para dentro do filme (REZENDE, 2020). Para a abordagem do mecanismo de espalhamento de 2-mágnons, iremos partir da relação de dispersão para mágnons com vetor de onda \vec{k} se propagando no plano do filme (REZENDE, 2020):

$$\omega_k^2 = \gamma^2 [H_0 + Dk^2 + 4\pi M(1 - F_k) \sin^2 \theta_k] [H_0 + Dk^2 + 4\pi M F_k], \quad \text{onde } F_k = \frac{1 - e^{-kt}}{kt}, \quad (2.52)$$

em que t é a espessura do filme e D é uma constante. Consideramos mágnons com vetor de onda \vec{k} fazendo um ângulo θ_k com o campo aplicado H_0 . Para filmes de espessura muito fina, $F_k \approx 1 - kt/2$, obtemos, utilizando a equação 2.52,

$$\omega_k^2 = \omega_0^2 - \gamma^2 2\pi M k t [H_0 - (H_0 + 4\pi M_{eff}) \sin^2 \theta_k] + \gamma^2 (2H_0 + 4\pi M_{eff}) D k^2, \quad (2.53)$$

em que ω_0 é a frequência do modo uniforme de precessão (a equação de Kittel), dada por:

$$\omega_0 = \gamma [H_0 (H_0 + 4\pi M_{eff})]^{1/2}. \quad (2.54)$$

A equação 2.53 implica que a frequência dos mágnons com vetor de onda \vec{k} contidos no plano de um filme muito fino possui um termo que varia linearmente com o número de onda k , e também outro termo que varia com o quadrado desse número de onda. Assim, a relação de dispersão 2.53 exibe um *range* de modos degenerados com o modo uniforme de FMR, equação 2.54. Para tanto, é importante notar que o segundo termo de 2.53 deve apresentar uma inclinação negativa, o que poderá acontecer a depender do ângulo de propagação θ_k . Podemos ver que o ângulo crítico para uma inclinação negativa (sinal contrário ao do terceiro termo de 2.53) é

$$\sin^2 \theta_c = \frac{H_0}{H_0 + 4\pi M_{eff}}, \quad (2.55)$$

acima do qual os modos não contribuem para o espalhamento dos mágnons com $k = 0$.

Arias and Mills (ARIAS; MILLS, 1999) mostraram que a energia de anisotropia de superfície é a maior responsável pelo espalhamento do modo uniforme de precessão, isto é, dos mágnons com $k = 0$. Para verificar isso, usamos o elemento da matrix $V_{0,k}^{(2)}$ em (ARIAS; MILLS, 1999), o qual determina a força da interação responsável pelo espalhamento de mágnons no modo $k = 0$ por mágnons com vetor de onda \vec{k} . O elemento da matrix devido a perturbação da anisotropia de superfície por defeitos com formatos retangulares de dimensões a e c , e profundidade b , é dado por (REZENDE, 2020)(ARIAS; MILLS, 1999).

$$V_{0,k}^{(2)} = \frac{\hbar\gamma^2 H_S b}{\omega_0} \left(\frac{pac}{A} \right)^{1/2} \left[(2H_0 + 4\pi M_{eff}) \frac{1}{c} - (H_0 + 4\pi M_{eff}) \frac{1}{a} \right], \quad (2.56)$$

em que $H_S = 2K^s/Mt$ é o campo de anisotropia de superfície (como será abordada na seção sobre anisotropias magnéticas), A é a área da superfície do filme, e p é a fração dessa área coberta por defeitos. Contudo, 2.56 seria válida se todos os defeitos tivessem formatos e dimensões iguais. Além disso, para o cálculo da taxa de relaxação, os termos que aparecem são $(V_{0,k}^{(2)})^2$ (REZENDE, 2020). Considerando uma superfície com defeitos de dimensões tais que o valor c/a flutua em torno de 1, a taxa de relaxação do modo uniforme $k = 0$ devido ao espalhamento de 2-mágnons é dada por (REZENDE, 2020):

$$\eta_0 = \frac{2\pi}{\hbar^2} \sum_k \langle |V_{0,k}^{(2)}|^2 \rangle \delta(\omega_0 - \omega_k), \quad \text{onde} \quad (2.57)$$

$$\langle |V_{0,k}^{(2)}|^2 \rangle = \frac{\hbar^2 \gamma^4 H_S^2 b^2 p}{\omega_0^2 A} \left[H_0^2 + (2H_0 + 4\pi M_{eff})^2 \left(\left\langle \frac{a}{c} - 1 \right\rangle \right) + (H_0 + 4\pi M_{eff})^2 \left(\left\langle \frac{c}{a} - 1 \right\rangle \right) \right],$$

Considerando uma contribuição contínua de vetores de onda no plano do filme, o intervalo de integração e as transformações apropriadas para o argumento da função delta de Dirac, obteremos a seguinte taxa de relaxação para o espalhamento de mágnons com $k = 0$ por mágnons $k \neq 0$:

$$\eta_0 = \frac{4\gamma^2 H_S^2 b^2 p \theta_c}{\omega_0 \pi D (2H_0 + 4\pi M_{eff})} \left[H_0^2 + (2H_0 + 4\pi M_{eff})^2 \left(\left\langle \frac{a}{c} - 1 \right\rangle \right) + (H_0 + 4\pi M_{eff})^2 \left(\left\langle \frac{c}{a} - 1 \right\rangle \right) \right] \quad (2.58)$$

Agora podemos considerar a contribuição do espalhamento de 2-mágnons para a largura de linha de FMR. Contudo, não podemos utilizar a expressão $\Delta H = \eta_0/\gamma$, pois ela é válida somente para o caso em que a frequência é proporcional ao campo aplicado. Devemos tomar uma expressão diferencial:

$$\Delta H = \eta_0 \frac{\partial H_0}{\partial \omega_0} \quad (2.59)$$

Partindo da equação para o modo uniforme de FMR, Eq. 2.54, e assumindo um filme magnetizado no plano, temos:

$$\Delta H = \frac{2\omega_0\eta_0}{\gamma^2(2H_0 + 4\pi M_{eff})} \quad (2.60)$$

Utilizando 2.60 e 2.58 juntamente com a expressão para o ângulo crítico, Eq. 2.55, obtém-se a largura de linha com a contribuição do espalhamento de 2-mágnons:

$$\Delta H = \frac{8H_S^2 b^2 p}{\pi D(2H_0 + 4\pi M_{eff})^2} [H_0^2 + (2H_0 + 4\pi M_{eff})^2 \left\langle \frac{a}{c} - 1 \right\rangle] + \quad (2.61)$$

$$+(H_0 + 4\pi M_{eff})^2 \left\langle \frac{c}{a} - 1 \right\rangle] \times \arcsin \left(\sqrt{\frac{H_0}{H_0 + 4\pi M_{eff}}} \right) \quad (2.62)$$

Em suma, como o campo de anisotropia de superfície é inversamente proporcional à espessura do filme, então podemos ver que contribuição da largura de linha devido ao espalhamento de 2-mágnons é proporcional à $1/t^2$, o que essencialmente corrobora com o fato de haverem uma porcentagem maior de defeitos de superfícies para filmes de espessura menor, acarretando num possível aumento do amortecimento da magnetização.

2.5 ANISOTROPIAS MAGNÉTICAS

Sabemos que associado a um campo produzido por um material magnetizado existe uma energia magnética. Mesmo sem a presença de um campo magnético aplicado, os momentos magnéticos dos átomos do material interagem, e alguns modelos matemáticos foram propostos para descrever o comportamento desses sistemas, tal como o modelo de *Ising*, em que só é considerada a interação entre os momentos magnéticos (ou spins) dos vizinhos mais próximos, geralmente embutidos em uma rede cristalina isotrópica. Contudo, os materiais que existem na natureza ou produzidos em laboratórios podem ser altamente anisotrópicos, de modo que a energia de interação não depende somente da magnitude desses momentos de dipolos, mas também das suas orientações. Em virtude disso, a magnetização de equilíbrio assume uma direção preferencial. A esse fenômeno dá-se o nome de anisotropia magnética, sendo que sua origem pode ter várias causas, como veremos brevemente a seguir.

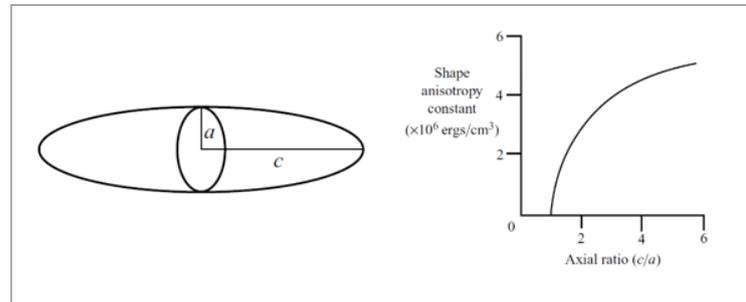
2.5.1 Anisotropia de forma

Quando um material é policristalino os seus grãos são orientados aleatoriamente, isto é, não existe anisotropia magnética resultante. No entanto, somente se a amostra for uma esfera perfeita seu campo de magnetização será o mesmo em qualquer direção da amostra. Se a amostra não for esférica, ela terá um (ou mais de um) eixo fácil de magnetização. A figura 6 ilustra o efeito da anisotropia de forma para um esferoide prolato de Co policristalino, em função da razão c/a . Observe que o valor da constante de anisotropia pode ser da mesma ordem de grandeza da constante de anisotropia magnetocristalina. Para $c/a = 1$, temos o caso da amostra perfeitamente esférica.

A origem da anisotropia de forma depende do campo de desmagnetização, que é um conceito puramente magnetostático (JACKSON, 1999). Para um corpo finito com magnetização $\vec{M}(\vec{r})$, escrevemos a equação de Poisson como $\nabla^2 \Phi_M = -\vec{\nabla} \cdot \vec{M}$, cuja solução é

$$\Phi_M(\vec{r}) = -\frac{1}{4\pi} \int_V \frac{\vec{\nabla}' \cdot \vec{M}(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} d^3 r' + \frac{1}{4\pi} \oint_S \frac{\vec{M}(\vec{r}') \cdot \hat{n}}{|\vec{r} - \vec{r}'|} d^2 r', \quad (2.63)$$

Figura 6 – À esquerda temos um esferoide prolato e à direita temos a dependência da densidade de energia de anisotropia devido à sua forma em função da razão c/a .



Fonte: Próprio autor

onde $\Phi_M(\vec{r})$ é o potencial escalar magnético, $\rho_M(\vec{r}') = -\vec{\nabla}' \cdot \vec{M}(\vec{r}')$ é a densidade volumétrica de cargas magnéticas, $\sigma_M(\vec{r}') = \vec{M}(\vec{r}') \cdot \hat{n}$ é a densidade superficial de cargas magnéticas e \hat{n} aponta para fora da superfície do corpo. O campo de desmagnetização é definido como

$$\vec{H}_d(\vec{r}) = -\vec{\nabla} \Phi_M(\vec{r}) \quad (2.64)$$

Para amostras onde a magnetização é uniforme no volume ($\rho_M(\vec{r}') = 0$), o campo de desmagnetização é dado por $\vec{H}_d(\vec{r}) = -N\vec{M}$, onde \overleftarrow{N} é o tensor de desmagnetização. Dessa maneira o campo magnético interno à amostra é $\vec{H}_{int}(\vec{r}) = \vec{H}_0 - \overleftarrow{N}\vec{M}$. A densidade de

energia de desmagnetização (ou magnetostática) pode ser expressa como:

$$E_d = -\frac{\mu_0}{2} \int \vec{M} \cdot \vec{H}_d d^3\vec{r} \quad (2.65)$$

Em particular, no caso das formas elipsoidais com eixos a , b e c , o tensor \overleftrightarrow{N} é dado por

$$\overleftrightarrow{N} = \begin{pmatrix} N_a & 0 & 0 \\ 0 & N_b & 0 \\ 0 & 0 & N_c \end{pmatrix} \quad (2.66)$$

Os elementos do tensor apresentam expressões simples, como mostra a tabela mostrada na figura 7.

Figura 7 – Os números entre parênteses estão em unidades gaussianas.

Forma	Direção da magnetização	N
Aguilha longa	Paralelo ao eixo	$N_c = 0$
	Perpendicular ao eixo	$N_a = N_b = 1/2; (2\pi)$
Esfera	Qualquer direção	$1/3; (4\pi/3)$
Filme fino	Paralelo ao plano	$N_a = N_b = 0$
	Perpendicular ao plano	$N_c = 1; (4\pi)$
Elipsoide geral de revolução	$N_c = 1 - 2N_a$ $(N_a = N_b)$	

Fonte: Próprio autor

Como consequência, a densidade de energia de anisotropia devido à forma de um filme fino cujo eixo z aponta perpendicular à superfície é

$$\begin{cases} E_d = (1/2)\mu_0 M_S^2 \cos^2 \theta_M & (\text{SI}) \\ E_d = 2\pi M_S^2 \cos^2 \theta_M & (\text{CGS}), \end{cases} \quad (2.67)$$

onde θ_M é o ângulo que o vetor magnetização faz com o eixo normal (ângulo polar). De acordo com a equação acima, a anisotropia de forma favorece a magnetização no plano do filme.

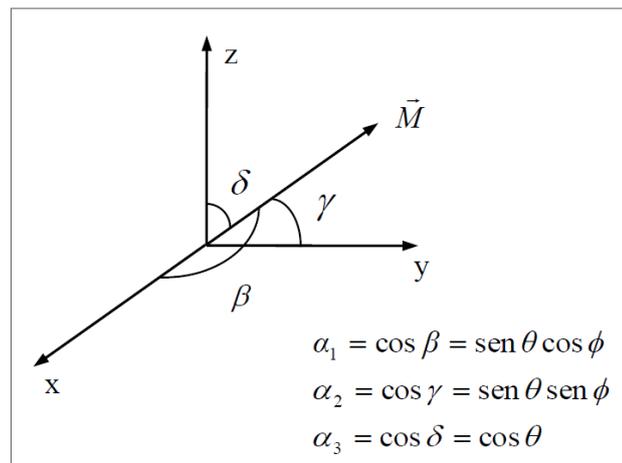
2.5.2 Anisotropia de forma

A estrutura cristalina de um material também desempenha um papel importante para as orientações preferenciais da magnetização, de modo que a direção dos eixos cristalográficos

podem ditar a orientação preferencial da magnetização. Sendo mais preciso, a contribuição da energia de interação spin-órbita é a responsável pela tendência dos spins eletrônicos se alinharem ao longo de eixos cristalográficos (GETZLAFF, 2007; WHITE; WHITE; BAYNE, 1983). Desenvolver expressões para a energia de sistemas cristalinos específicos tem um papel importante para conseguirmos aplicar a equação geral para o modo uniforme de FMR, equação 2.40. Usando o sistema de coordenadas cartesiano adotado na figura 8, podemos escrever a energia de anisotropia magnetocristalina tomando uma expansão da magnetização ao longo dos eixos cristalinos. Usando os cossenos diretores associados à esses eixos, temos (GETZLAFF, 2007):

$$E_{cristalina} = E_0 + \sum_{i=1}^3 b_i \alpha_i + \sum_{i,j=1}^3 b_{ij} \alpha_i \alpha_j + \sum_{i,j,k=1}^3 b_{ijk} \alpha_i \alpha_j \alpha_k + \sum_{i,j,k,l=1}^3 b_{ijkl} \alpha_i \alpha_j \alpha_k \alpha_l + \dots, \quad (2.68)$$

Figura 8 – Sistema de coordenadas esféricas adotado para expandir a energia em série de potência.



Fonte: Próprio autor

Contudo, como a energia é invariante para sistemas com magnetizações em sentidos opostos, ou seja, $E(\alpha_i) = E(-\alpha_i)$, pode ser verificado que somente termos pares em α_i contribuem para a energia. Além disso, termos com mais coeficientes obviamente se tornam muito pequenos em relação aos primeiros termos da série. Então:

$$E_{cristalina} = E_0 + \sum_{i,j=1}^3 b_{ij} \alpha_i \alpha_j + \sum_{i,j,k,l=1}^3 b_{ijkl} \alpha_i \alpha_j \alpha_k \alpha_l \quad (2.69)$$

Existem dois tipos de anisotropias magnetocristalina que são de mais interesse: a anisotropia cúbica e a anisotropia uniaxial. Quando temos um sistema com formato de cubo, o que implica que, devido à sua simetria, surge as condições $b_{ii} = b_{jj}$ e b_{iijj} , $i, j = 1, 2, 3$, se

torna fácil verificar que, usando a invariância da energia com relação à troca de sentido da magnetização, a expressão para a densidade de energia de anisotropia cúbica se torna:

$$E_{\text{cúbica}} = E_0 + b_{11} + b_{1111}(\alpha_1^4 + \alpha_2^4 + \alpha_3^4) + 6b_{1122}(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_1^2\alpha_3^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2) \quad (2.70)$$

Contudo, as expressões para a densidade de energia magnetocristalina são normalmente escritas contendo as constantes de anisotropias magnetocristalinas. Elas são mais comumente escritas como

$$E_{\text{cúbica}} = K_{0C} + K_{1C}(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_1^2\alpha_3^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2) + K_{2C}\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2, \quad (2.71)$$

em que as constantes de anisotropias K_0 , K_{1C} e K_{2C} são funções dos coeficientes b 's. Pode-se verificar que um cristal crescido em uma direção tal que $\theta = \pi/2$ (portanto, $\alpha_1 = \cos \phi$, $\alpha_2 = \sin \phi$ e $\alpha_3 = 0$), possui uma energia de anisotropia cúbica por volume dada por:

$$E_{\text{cúbica}} = K_0 + \frac{K_1 \sin^2 2\phi}{4} \quad (2.72)$$

Esse tipo de anisotropia é também chamada de C4, por possuir 4 ângulos em que a energia é minimizada (ou maximizada), o que fica evidente ao observar a equação 2.72.

Uma amostra com simetria uniaxial tem duas direções simétricas na qual a energia é mínima. Portanto, a expansão da energia em termos da magnetização deve ser tomada somente em 2 eixos. Os termos cruzados também não contribuem para a energia, de modo que obtemos:

$$E_{\text{uniaxial}} = E_0 + b_{11}\alpha_1^2 + b_{22}\alpha_2^2 + b_{1111}\alpha_1^4 + b_{2222}\alpha_2^4 + b_{1122}\alpha_1^2\alpha_2^2 + b_{2211}\alpha_2^2\alpha_1^2 \quad (2.73)$$

$$E_{\text{uniaxial}} = K_0 + K_1(\alpha_1^2 + \alpha_2^2) + K_2(\alpha_1^2 + \alpha_2^2)^2 \quad (2.74)$$

Para melhor clareza, quando empregamos os cossenos diretores na expressão para E_{uniaxial} obtemos:

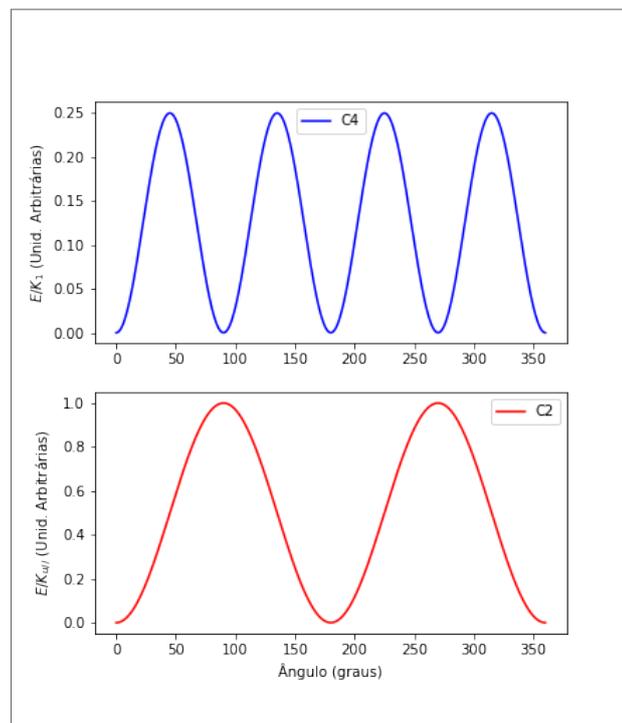
$$E_{\text{uniaxial}} = K_0 + K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta \quad (2.75)$$

No caso de um filme fino que possui um eixo de anisotropia no plano ao longo de uma direção dada por ϕ_u em relação a um eixo de referência, então na energia de anisotropia uniaxial devem aparecer potências pares de ϕ_u , de modo que

$$E_{\text{uniaxial}} = K_{1U} \sin^2 \theta_M \sin^2(\phi - \phi_u), \quad (2.76)$$

em que só consideramos na expansão a constante de anisotropia de primeira ordem, K_{1U} . Minimizando a energia, podemos notar que se K_{1U} é positiva, então o ângulo ϕ_u define uma direção de fácil magnetização, enquanto que se K_{1U} é negativa, ϕ_u irá definir uma direção de difícil magnetização. As constantes de anisotropia uniaxial para vários materiais também foram determinadas experimentalmente. Ela é chamada também de C2, uma vez que existem 2 direções de mínima (ou máxima) energia. Em contraste com a anisotropia C4, fica evidente a razão da diferença entre elas: Para determinada direção de crescimento, enquanto a C2 depende de um fator θ , a C4 dependeria de um fator 2ϕ . A figura ?? mostra o comportamento da energia de anisotropia magnetocristalina cúbica e uniaxial para uma dada direção de crescimento. O filme de $Fe_{75}Co_{25}$ crescido sobre Si apresenta anisotropia uniaxial.

Figura 9 – Ilustração das anisotropias magnetocristalina cúbica (linha azul) e uniaxial (linha vermelha). O eixo vertical está em unidades arbitrárias.



Fonte: Próprio autor

2.5.3 Anisotropia induzida

Imaginemos que coloquemos um ímã próximo a uma região de crescimento de uma amostra, de modo que as linhas de campo magnético no volume em que a amostra crescerá tenham uma determinada orientação. Então é esperado que a magnetização tenha uma outra orientação preferencial quando comparada com o caso de uma amostra crescida na ausência

de um campo magnético. Outra situação que também induz anisotropia é quando temos um substrato inclinado em relação ao feixe de partículas que serão depositadas (no caso do nosso *sputtering* isso é fácil de ser feito, bastando colocar um plano inclinado para acomodar o substrato). Nesse caso, é esperado que os eixos de crescimento fiquem rotacionados quando comparados aos eixos cristalinos de uma amostra que é produzida sob deposição normal. Em ambos esses dois processos estamos induzindo uma anisotropia, pois a magnetização vai assumir uma direção preferencial de alinhamento devido à técnica com que o material foi crescido. No nosso trabalho, utilizamos a deposição por *sputtering* oblíquo com o objetivo de induzir uma anisotropia magnetocristalina uniaxial e observar as propriedades magnéticas básicas da liga de $Fe_{75}Co_{25}$ depositados sob sílicio. Os procedimentos experimentais estão detalhados no capítulo de técnicas experimentais. Por utilizarmos essa técnica, daremos mais destaque a mesma.

Em 1959 Smith entendeu que umas das causas da anisotropia observada em filmes de Permalloy crescido sobre vidro era o ângulo entre o substrato e o feixe incidente da deposição por evaporação catódica, embora tenha alegado não ser possível ainda realizar uma interpretação correta do fenômeno (SMITH, 1959). Knorr e Hoffman (KNORR; HOFFMAN, 1959) também notaram que havia uma dependência da anisotropia de filmes de Ferro com relação à localização do filamento de evaporação. Em 1996 Hoschi *et al* (HOSHI; SUZUKI; NAOE, 1996) realizaram simulações computacionais de Monte Carlo para tentar verificar como o formato dos grãos de Fe poderiam ser alterados conforme o valor do ângulo de incidência oblíquo da deposição. Para tanto, eles assumiram que átomos em formatos de esferas "duras" de raio 1.26 Å eram depositados em um substrato de dimensões 725 Å X 725 Å. Nesse trabalho, eles observaram que o formato dos grãos depositados ficavam alongados na direção de incidência das partículas, e também que a anisotropia uniaxial induzida foi causada principalmente pela mudança de anisotropia de forma devido à mudança de formato desses grãos. Além disso, também verificaram que havia uma mudança na diminuição da magnetização de saturação dos filmes conforme era esperado pela diminuição da densidade. Em suma, eles concluíram que o efeito de auto-sombreamento ("*self-shadowing*") era o mecanismo mais importante para o surgimento da anisotropia magnetocristalina uniaxial nos filmes de Fe depositados por evaporação oblíqua. Como o formato dos grãos deve mudar com a inclinação, a taxa de deposição também deve ser alterada. Mendes (MENDES, 2009) observou que a taxa de deposição do Permalloy e do Cobre pode ser descrita por uma função polinomial que possui um único máximo próximo de 30° e cai para ângulos maiores. Portanto, em se tratando de amostras depositadas sob *sputtering*

oblíquo, faz-se necessário recalibrar a taxa de deposição dos alvos usados. Outros trabalhos realizados com o intuito de verificar e entender como a presença de *buffer-layers* induz anisotropias em filmes depositados por *sputtering* foram feitos em anos posteriores. Para mais detalhes, ver (MICHIJIMA et al., 1999; MCMICHAEL et al., 2000; UMLOR, 2005; YU et al., 2008).

2.5.4 Anisotropia de superfícies e interfaces

Outro tipo de anisotropia especialmente importante para os filmes finos é a anisotropia proveniente das interfaces desses filmes. Em 1954, Néel (NÉEL, 1954) previu que a descontinuidade introduzida na interface de um filme magnético poderia gerar uma anisotropia devido aos momentos orbitais não compensados. A interface pode ser entre filmes de diferentes materiais, entre o filme e o substrato ou entre a superfície superior e o espaço livre. Devido à essa quebra de simetria, a energia passa a conter termos dependentes dos cossenos diretores α_i 's que não apresentavam no caso do sistema tridimensional (GETZLAFF, 2007). Fenomenologicamente, a energia de superfície é escrita como

$$E_{\perp} = -k_{eff} \cos^2 \theta = - \left(k_V + \frac{2k_{\perp}}{t} \right) \cos^2 \theta \quad (2.77)$$

onde as contribuições de volume e superfície foram explicitadas. O fator 2 surge para levar em consideração as duas superfícies do filme. Note que a energia de forma para um filme fino, equação 2.67, e a energia de superfície possuem a mesma dependência com θ . Portanto, é comum adicionar as duas formas de energia, de modo que $(2\pi M_S^2 - 2k_{\perp}/t) \cos^2 \theta$ é a contribuição das duas energias. Nesse caso, a contribuição de volume é incorporada no termo dipolar.

Existe uma espessura crítica que estabelece o limiar entre a magnetização ficar perpendicular ou ao longo do plano do filme, isto é, a competição entre as anisotropias de forma, magnetocristalina, etc, e a anisotropia de superfícies e interfaces. Nessa situação, $k_{eff} = 0$, e portanto:

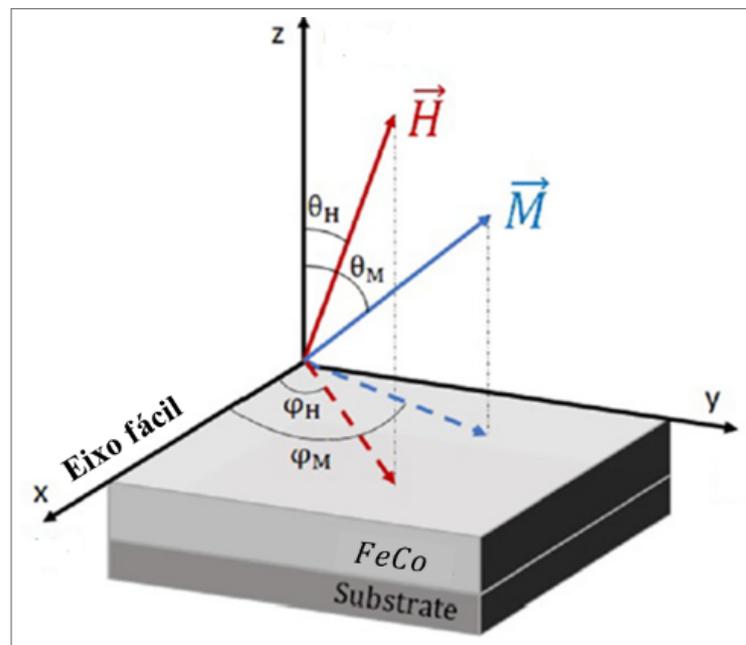
$$t_{critico} = - \frac{2k_{\perp}}{k_V} \quad (2.78)$$

Concluimos que para um filme fino com $k_V < 0$, a condição $t < t_c$ leva a magnetização para um estado perpendicular ao plano da superfície, enquanto que $t > t_c$ estabelece a magnetização no plano.

2.6 MÉTODO DE ENERGIA APLICADO À RESSONÂNCIA FERROMAGNÉTICA EM FILMES FINOS

Nessa seção devemos considerar as energias magnéticas envolvidas nos filmes de $Fe_{75}Co_{25}$ investigados por FMR. A figura 10 ilustra o sistema de referência usado para definir os termos de energia livre magnética mais relevantes.

Figura 10 – Ilustração esquemática do sistema de referência adotado nos cálculos. As orientações do vetor de magnetização \vec{M} e do campo magnético aplicado \vec{H} são dadas pelos ângulos azimutais ϕ_M e ϕ_H , e pelos ângulos polares θ_M e θ_H , respectivamente.



Fonte: Próprio autor

Como a liga de $Fe_{75}Co_{25}$ é policristalina, não devemos ter contribuições de anisotropia cúbica. As contribuições das energias de anisotropia de forma, de superfície e de anisotropia uniaxial no plano são dadas, respectivamente, pelas equações 2.67, 2.77 e 2.76. Então temos que determinar a energia potencial do sistema magnetizado na presença do campo magnético, que é justamente a energia Zeeman. Como a energia Zeeman do sistema é, em unidades CGS, dada por $E_{Zeeman} = -\vec{M} \cdot \vec{H}$, então assumindo o campo e a magnetização em coordenadas esféricas, $\vec{M} = M(\sin \theta_M \cos \phi_M \hat{x} + \sin \theta_M \sin \phi_M \hat{y} + \cos \theta_M \hat{z})$ e $\vec{H} = H(\sin \theta_H \cos \phi_H \hat{x} + \sin \theta_H \sin \phi_H \hat{y} + \cos \theta_H \hat{z})$, obtemos:

$$E_{Zeeman} = -M_s H_r [\sin \theta_M \sin \theta_H \cos (\phi_M - \phi_H) + \cos \theta_M \cos \theta_H], \quad (2.79)$$

em que H_r é o valor do campo de ressonância. Portanto, a energia envolvendo as interações

magnéticas será:

$$E = -M_s H_r [\sin \theta_M \sin \theta_H \cos(\phi_M - \phi_H) + \cos \theta_M \cos \theta_H] + \quad (2.80)$$

$$+ \left(2\pi M_s^2 + \frac{2K^S}{t} \right) \cos^2 \theta_M + K_{u//} \sin^2 \theta_M \sin^2(\phi_M - \phi_u),$$

em que M_s é a magnetização de saturação e $K_{u//}$ está denotando a constante de anisotropia uniaxial no plano.

2.6.1 Solução numérica para os parâmetros de anisotropias e ressonância

Como visto anteriormente, para determinar os parâmetros importantes associados ao espectro de ressonância, é preciso minimizar a energia do sistema. Como as energias foram expandidas em função da magnetização, deveríamos minimizar o hamiltoniano da equação 2.80 em relação aos ângulos θ_M e ϕ_M . Contudo, para medidas com campo no plano da amostra, vale a seguinte restrição: $\theta_M = \theta_H = \pi/2$. Derivando 2.80 em relação à ϕ_M e θ_M , temos:

$$\left(\frac{\partial E}{\partial \phi_M} \right)_{\theta_M = \theta_H = \pi/2} = H_r M_s \sin(\phi_M - \phi_H) + 2K_{u//} \sin 2(\phi_M - \phi_u) = 0 \quad (2.81)$$

$$H_r \sin(\phi_M - \phi_H) = -\frac{H_{u//} \sin 2(\phi_M - \phi_u)}{2}, \quad H_{u//} = \frac{2K_{u//}}{M_s}$$

$$\left(\frac{\partial E}{\partial \theta_M} \right)_{\theta_H = \pi/2} = -H_r M_s \cos \theta_M \cos(\phi_M - \phi_H) - \left(2\pi M_s^2 - \frac{K^S}{t} \right) 2 \cos \theta_M \sin \theta_M \quad (2.82)$$

$$+ 2K_{u//} \sin \theta_M \cos \theta_M \sin^2(\phi_M - \phi_u)$$

$$\left(\frac{\partial E}{\partial \theta_M} \right)_{\theta_H = \theta_M = \pi/2} = 0$$

O resultado em 2.81 é particularmente importante para determinar os ângulos azimutais de equilíbrio da magnetização para cada direção do campo magnético aplicado. Precisamos agora obter os termos envolvidos no cálculo da frequência do modo uniforme de FMR, equação 2.40.

Tomando as segundas derivadas da energia, obtemos:

$$\left(\frac{\partial^2 E}{\partial \theta_M^2} \right)_{\theta_M = \theta_H = \pi/2} = H_r M_s \cos(\phi_M - \phi_H) + 2(2\pi M_s^2 - K^S/t) - 2K_{u//} \sin^2(\phi_M - \phi_u) \quad (2.83)$$

$$= M_s [H_r \cos(\phi_M - \phi_H) + 4\pi M_{eff} - H_{u//} \sin^2(\phi_M - \phi_u)]$$

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial^2 E}{\partial \phi_M^2} \right)_{\theta_M = \theta_H = \pi/2} &= H_r M_s \cos(\phi_M - \phi_H) - 2K_{u//} \cos(\phi_M - \phi_u) \\ &= M_s [H_r \cos(\phi_M - \phi_H) - H_{u//} \cos(\phi_M - \phi_u)] \end{aligned} \quad (2.84)$$

$$\left(\frac{\partial^2 E}{\partial \phi_M \partial \theta_M} \right)_{\theta_M = \theta_H = \pi/2} = \left(\frac{\partial^2 E}{\partial \phi_M \partial \theta_M} \right)_{\phi_M = \theta_H = \pi/2} = 0 \quad (2.85)$$

Substituindo os resultados em 2.83, 2.84 e 2.85 na equação geral para o modo uniforme de FMR (2.40), ficamos com:

$$\left(\frac{\omega}{\gamma} \right)^2 = [H_r \cos(\phi_M - \phi_H) + 4\pi M_{eff} - H_{u//} \sin^2(\phi_M - \phi_u)] [H_r \cos(\phi_H - \phi_M) + H_{u//} \cos 2(\phi_M - \phi_u)] \quad (2.86)$$

Da equação 2.86 podemos exprimir $H_r = H_r(\phi_H, \phi_u, \phi_M, H_u, M_{eff}, \gamma)$, que é a raiz do polinômio de grau 2 na equação 2.86. Como temos $H_r(\phi_H)$ medidos experimentalmente, determinamos os demais parâmetros fazendo o cálculo numérico de $H_r(\phi_H)$ usando 2.86 e a condição de equilíbrio dada por 2.81. Do melhor ajuste numérico extraímos os seguintes parâmetros: $H_{eff} = 4\pi M_{eff} = (4\pi M_s - 2K^s/t)$, H_u , ϕ_u e o fator g . A partir da expressão para a largura de linha de FMR, equação 2.41, determinamos o parâmetro de amortecimento de Gilbert α . Para tanto, usamos os resultados para as segundas derivadas (equações 2.83 e 2.84) para obter:

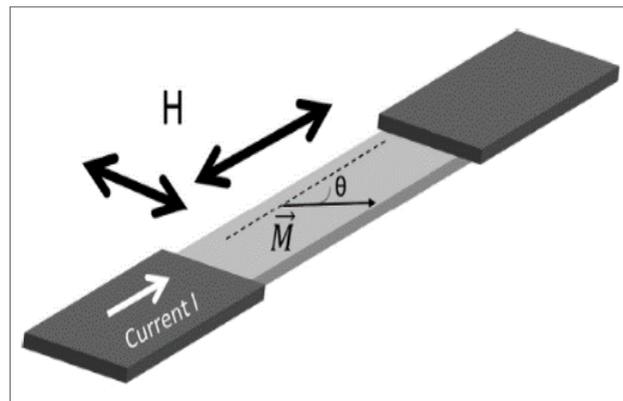
$$\Delta H = \frac{2\alpha}{\sqrt{3}M} \left(2H_r \cos(\phi_M - \phi_H) + 4\pi M_{eff} - H_u \sin^2(\phi_M - \phi_u) - H_u \cos(\phi_M - \phi_u) \right) \frac{\partial \omega}{\partial H} \quad (2.87)$$

2.7 O FENÔMENO DA MAGNETORRESISTÊNCIA

O problema do transporte eletrônico com polarização de spin, através de estruturas confinadas, é também de interesse atual, e se constitui numa das áreas de atividades em spintrônica. Para se ter sucesso no transporte eletrônico com polarização de spin, é importante que o tamanho das amostras seja menor do que o livre caminho médio de spin. Dessa maneira a corrente não perde a informação sobre a polarização de spin por espalhamento tipo *spin flip*.

Por essa razão, as amostras devem ser confinadas em pelo menos uma das dimensões. A principal contribuição para o efeito de magnetorresistência em metais magnéticos vem do efeito da magnetorresistência anisotrópica (AMR), que foi detectado pela primeira vez por Lord Kelvin em 1856 (THOMSON, 1857). O efeito AMR surge da dependência da resistência elétrica de um material com o ângulo θ entre a direção da corrente elétrica aplicada e direção local da magnetização dentro do material, como ilustrado pela figura 11.

Figura 11 – Configuração para medida do efeito AMR.



Fonte: Próprio autor

É verificado que a dependência da resistência do filme devido ao efeito AMR pode ser descrita por:

$$R(\theta) = R_{\perp} + (R_{\parallel} - R_{\perp}) \cos^2 \theta, \quad (2.88)$$

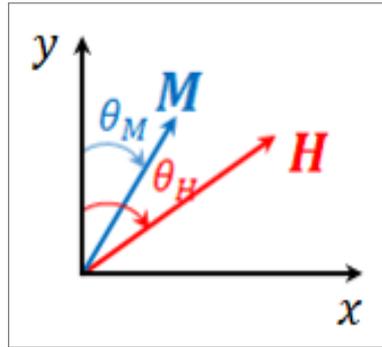
onde R_{\perp} é a resistência do material na configuração de corrente transversal à magnetização e R_{\parallel} é a resistência do material na configuração de corrente ao longo da magnetização. Na prática não conhecemos o ângulo θ , mas sim o ângulo θ_H , que é o ângulo que o campo magnético aplicado faz com o sentido da corrente. Para descobrir a posição de equilíbrio do vetor magnetização em relação a um eixo de referência (eixo fácil de magnetização), minimizamos a densidade de energia livre magnética, a qual é composta de apenas duas contribuições:

$$E = -\mu_0 \vec{M} \cdot \vec{H} + K_u \left(\frac{\hat{u} \cdot \vec{M}}{M} \right)^2 \quad (\text{SI}), \quad (2.89)$$

em que K_u é a densidade de energia de anisotropia uniaxial e \hat{u} é o vetor unitário ao longo do eixo de anisotropia (aqui escolhido como o eixo y , ver figura 12).

É comum escrever a equação 2.89 em termos de um campo efetivo de anisotropia uniaxial dado por $\mu_0 H_u = (2K_u/M)\hat{u}$. Assim, a equação 2.89 é normalmente escrita nos livros textos

Figura 12 – Configuração dos vetores \vec{M} e \vec{H} em relação ao eixo fácil (eixo y).



Fonte: Próprio autor

como:

$$E = -\mu_0 \vec{M} \cdot \vec{H} + \frac{\mu_0}{2} (\vec{H}_u \cdot \vec{M})^2 = -\mu_0 H M \cos(\theta_H - \theta_M) + \frac{\mu_0}{2} H_u M \cos^2 \theta_M \quad (2.90)$$

Observe que: (i) se $K_u > 0$, o eixo \hat{u} é um eixo duro; (ii) se $K_u < 0$, o eixo \hat{u} é um eixo fácil. Minimizando E em relação à θ_M , obtemos uma relação entre o campo aplicado H e o campo de anisotropia uniaxial H_u , dada por:

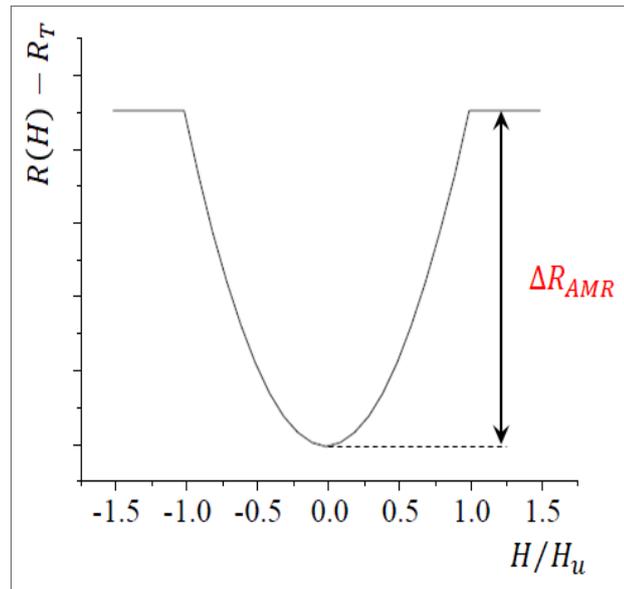
$$\frac{1}{H_u} = -\frac{\cos \theta_M \sin \theta_M}{H_x \cos \theta_M - H_y \sin \theta_M}, \quad (2.91)$$

onde H_x e H_y são as componentes do campo aplicado ao longo dos eixos de x e y , respectivamente. Para o campo aplicado perpendicular ao eixo fácil ($H_y = 0$), obtemos $\cos \theta_M = -H/H_u$, de modo que podemos escrever a equação 2.88 como:

$$R(\theta) = R_{\perp} + (R_{\parallel} - R_{\perp}) \left(\frac{H}{H_u} \right)^2, \quad (2.92)$$

A figura 13 mostra uma curva típica de magnetorresistência AMR na situação do campo aplicado perpendicular ao eixo fácil, que de acordo com a equação (6) é uma parábola. Com esta medida podemos medir o campo de anisotropia uniaxial H_u e a magnetorresistência AMR ΔR_{AMR} . O efeito da magnetorresistência anisotrópica pode ser usado como ferramenta para investigação de fenômenos mais sofisticados na área de spintrônica.

Figura 13 – Curva característica da magnetorresistência anisotrópica para o campo aplicado perpendicular ao eixo fácil. Quando $H = H_u$ a amostra tem a magnetização saturada.



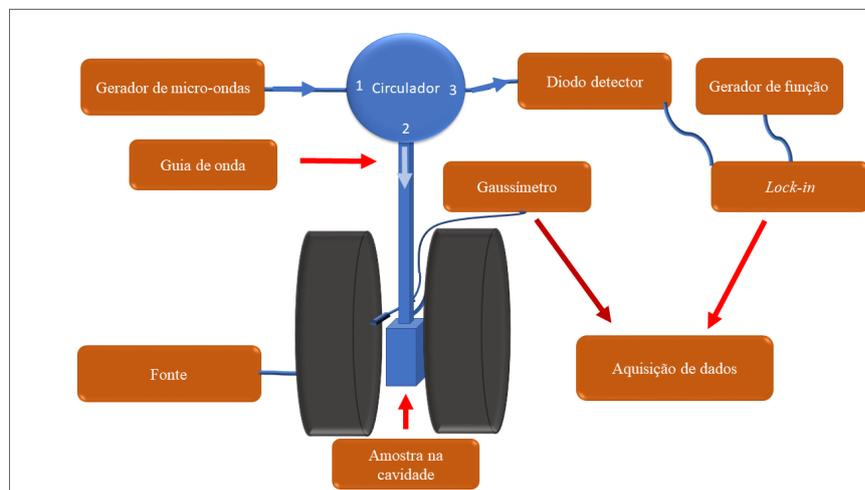
Fonte: Próprio autor

3 TÉCNICAS EXPERIMENTAIS

3.1 RESSONÂNCIA FERROMAGNÉTICA EM FILMES FINOS

A ressonância ferromagnética (FMR) ocorre quando aplicamos simultaneamente numa amostra ferromagnética (FM), um campo magnético DC (H_0) e um campo AC ($h_{rf}e^{i\omega t}$) perpendiculares entre si, onde $H_0 \gg h_{rf}$. Para campos $H_0 \sim \text{kOe}$, $f = (\omega/2\pi) \sim \text{GHz}$, portanto na banda X de micro-ondas, como discutido anteriormente. Existem duas configurações experimentais: (1) usando cavidade ressonante onde a frequência é fixada na frequência de ressonância da cavidade e o campo DC varia até passar pelo campo de ressonância, onde ocorre a absorção da radiação incidente; (2) o campo DC é fixo e a frequência da micro-ondas é variável até passar pela frequência de ressonância, onde ocorre a absorção da radiação incidente. Na segunda configuração a estrutura de micro-ondas é não ressonante, e baseada em linha de fita. A configuração com linha de fita tem três desvantagens: (1) o campo de RF não é uniforme sobre a amostra; (2) o campo elétrico de RF pode induzir efeitos elétricos se a amostra FM for condutora; e (3) não permite a variação angular na medida. Por outro lado, tem a vantagem de poder variar a frequência de ressonância. Um diagrama esquemático representando o *setup* experimental é mostrado na figura 14, onde utilizamos a configuração com cavidade ressonante.

Figura 14 – Diagrama de bloco da montagem experimental de FMR. Embora não esteja apresentado na figura, também utilizamos um osciloscópio para identificar a frequência da cavidade ressonante contendo a amostra. Embora a bobina de modulação não está sendo mostrada, fica subtendido que o gerador de funções é que alimenta a bobina de modulação com um sinal AC de baixa intensidade. Para a cavidade na configuração utilizada, precisamos usar uma onda modulante de aproximadamente 100kHz.



Fonte: Próprio autor

A radiação proveniente do gerador de micro-ondas é enviada ao circulador por meio de uma linha de transmissão (como um cabo coaxial). Um circulador encaminha esse sinal até a cavidade ressonante onde está localizada a amostra, enquanto o sinal que retorna da amostra é direcionado à um diodo retificador de alta frequência (o detector), e após isso o sinal retificado passa por um amplificador de alto ganho. Como a potência absorvida pela amostra é proporcional ao seu volume, o sinal de FMR em filmes finos é pouco intenso e, portanto, é necessário utilizar técnicas especiais de detecção para aumentar a relação sinal-ruído. Isso é feito usando pares de bobinas de Helmholtz para criar um campo magnético com frequência de alguns kHz e que se superpõe ao campo estático, de modo a ocorrer a modulação. O sinal modulado é então enviado à um amplificador sintonizado sensível à fase (mais conhecido como lock-in), o qual aumenta a razão sinal-ruído por ordens de magnitude. Devido à modulação do campo magnético, o sinal gerado pelo lock-in corresponde à derivada da absorção Lorentziana da amostra.

Com o intuito de deixar mais claro para iniciantes no assunto, a seguir está apresentado brevemente e com mais detalhes os principais componentes usados na montagem de FMR, que também serão, em parte, usados na montagem do efeito AMR.

- **Circulador**

O papel do circulador é selecionar o caminho de entrada e saída do sinal, sendo que o sinal aplicado numa porta deve sair na porta imediatamente adjacente. A matriz de espalhamento de um circulador de três portas ideal pode ser representada por:

$$S = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \end{pmatrix}$$

Assim, um circulador de 3 portas com sinal de entrada aplicado na porta 1 teria como porta de saída a porta 2; um sinal de entrada aplicado na porta 2 teria como porta de saída a porta 3; um sinal aplicado na porta 3 sairia na porta 1. O sinal do gerador de microondas é encaminhado, através do circulador, ao longo do braço até a cavidade ressonante.

- **Diodo detector**

O diodo usado é um diodo retificador de onda de alta frequência. Como o diodo permite

somente a passagem da corrente elétrica em uma direção, então um sinal correspondente à uma tensão alternada é transformado em um sinal DC (um dos semi-ciclos da onda é eliminado). Esses detectores funcionam como retificadores simples que amostram o pico de RF enquanto carregam uma capacitância para manter a tensão de pico e descarregam a capacitância na carga lentamente. Por isso, também é conhecido como detector de pico.

- Amplificador Lock-in

Esses amplificadores são usados para detectar sinais AC muito baixos, como da ordem de nanovolts, mesmo na presença de fontes de ruídos de amplitudes muito maiores. Todo *lock-in* utiliza uma frequência de referência, seja de um gerador de onda ou do oscilador do próprio *lock-in*. Todos os sinais com frequências diferentes da frequência de referência são substancialmente rejeitados. Contudo, o que diferencia o *lock-in* de outros amplificadores é o fato deles usarem a técnica de detecção sensível à fase. O *lock-in* realiza a operação matemática de multiplicar todos os sinais de entrada por um sinal sincronizado com a frequência de referência. Para ficar mais claro, seja ψ o seguinte sinal de entrada advindo possivelmente de várias fontes, sendo uma delas com a mesma frequência do valor de referência do *lock-in* (ω_{Ref}):

$$\psi = V_1 \sin(\omega_1 t) + V_2 \sin(\omega_2 t) + \dots + V_n \sin(\omega_{ref} t) + \dots \quad (3.1)$$

em que V_n é a amplitude do sinal com frequência ω_n . Se o *lock-in* realiza a operação de multiplicar 3.1 por $\sin(\omega_{Ref} t)$, então em um limite contínuo teremos:

$$\begin{aligned} \int_0^T [\sin(\omega_{Ref} t)] [V_1 \sin(\omega_1 t) + V_2 \sin(\omega_2 t) + \dots + V_n \sin(\omega_{ref} t) + \dots] \\ = \int_0^T \sin(\omega_{Ref} t) V_n \sin(\omega_{ref} t) \propto V_n \end{aligned} \quad (3.2)$$

Ou seja, apenas a componente do sinal com a frequência igual ou extremamente próxima da frequência de referência (assumimos o limite contínuo ao fazer uma integração e não um somatório) é passada como saída, e o sinal detectado é proporcional à amplitude dessa componente. Para explicar a detecção sensível à fase, consideremos o sinal de referência do *lock-in*, $V_{Ref}(t)$ e o sinal de entrada no *lock-in* gerado pelo experimento

$V_{exp}(t)$, tais que:

$$V_{Ref}(t) = V_{Ref0} \sin(\omega_{Ref}t + \theta_{Ref}) \quad (3.3)$$

$$V_{exp}(t) = V_{exp0} \sin(\omega_{exp}t + \theta_{exp}),$$

ou seja, eles podem ter fases diferentes. Ao realizar a operação de multiplicar os sinais, temos:

$$\begin{aligned} V_{Ref}(t)V_{exp}(t) &= V_{Ref0} \sin(\omega_{Ref}t + \theta_{Ref})V_{exp0} \sin(\omega_{exp}t + \theta_{exp}) = (3.4) \\ &= \frac{V_{Ref0}V_{exp0}}{2} [\cos[(\omega_{Ref} - \omega_{exp})t + \theta_{Ref} - \theta_{exp}] + \cos[(\omega_{Ref} + \omega_{exp})t + \theta_{Ref} + \theta_{exp}]] \end{aligned}$$

Na sequência utiliza-se um filtro passa-baixa para eliminar a componente de alta frequência, $\omega_{Ref} + \omega_{exp}$, bem como teremos $\omega_{Ref} \simeq \omega_{exp}$ pela análise de *Fourier*. Portanto:

$$V_{lockin} = \frac{V_{Ref0}V_{exp0}}{2} \cos(\theta_{exp} - \theta_{Ref}) \quad (3.5)$$

Assim, o sinal de saída do *lock-in* é ligeiramente maior quando o sinal de entrada está em fase com o sinal de referência do *lock-in*. Nesse sentido, o sinal precisa estar mantido em fase com a referência do *lock-in*.

- Gerador de RF

O gerador de microondas usado é o da *Agilent Technologies* E8257D, que gera sinais na faixa de frequências 256 kHz - 31.8 GHz. Aqui é suficiente saber que a onda de RF é alimentada através de um cabo coaxial entre a saída no gerador e entrada no circuito de micro-ondas. Como as medidas de FMR são feitas sob frequência constante, então o modo de operação CW (*Constant Wave*) é o utilizado.

- Cavidade ressonante

A determinação das frequências de ressonância e a distribuição dos campos elétrico e magnético em uma cavidade ressonante é um problema de livro texto da eletrodinâmica clássica (JACKSON, 1999). Considerando que as ondas numa cavidade ressonante são estacionárias e que obedecem às condições de contorno nas superfícies (no caso delas estiverem se propagando na direção do eixo z, então por exemplo $E_x(z=0) = E_y(z=0) = E_x(z=l) = E_y(z=0) = 0$), se obtém 2 modos de propagação para uma cavidade de dimensões a, b e d:

$$\psi_{mn}(z, x) = H_0 \cos \frac{m\pi z}{a} \cos \frac{n\pi z}{b}, \quad n, m = 0, 1, 2, \dots \quad (3.6)$$

$$\psi_{mn}(z, x) = E_0 \sin \frac{m\pi z}{a} \sin \frac{n\pi x}{b}, \quad n, m = 1, 2, 3, \dots, \quad (3.7)$$

cada uma com frequência dada por:

$$\omega_{mnp} = \frac{1}{\sqrt{\mu\epsilon}} \sqrt{\left(\frac{m\pi}{a}\right)^2 + \left(\frac{n\pi}{b}\right)^2 + \left(\frac{p\pi}{d}\right)^2}, \quad p = 0, 1, 2, \dots \quad (3.8)$$

As equações 3.6 e 3.7 correspondem aos modos de propagação transversal magnético (TM) e transversal elétrico (TE), respectivamente. Por isso as cavidades ressonantes são classificadas como TM_{mnp} e TE_{mnp} . A cavidade utilizada para medidas no plano foi a TE_{102} , cujo fator de qualidade é próximo de 3000.

- Bobinas de modulação e gerador de funções

As bobinas de modulação servem para modular o campo externo e são alimentadas por um amplificador de corrente que amplifica o sinal do gerador de funções. Utilizamos dois tipos de cavidade de microondas: (i) uma comercial cujas bobinas de modulação operam em 100 kHz; (ii) uma de fabricação doméstica cujas bobinas de modulação operam em 1,2 kHz.

3.2 SPUTTERING

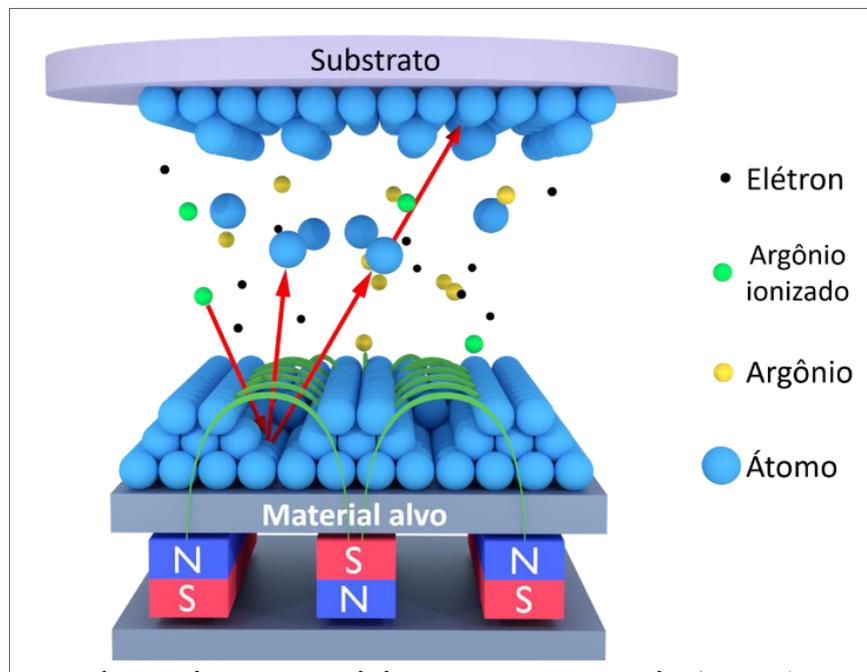
Os métodos para a deposição de filmes finos podem ser divididos em duas categorias: (1) deposição física, na qual átomos ou moléculas do material fonte são vaporizados por processos físicos como evaporação térmica ou bombardeio da fonte por um feixe energético de elétrons (e-beam), fótons (PLD - *Pulsed Laser Deposition*) ou íons (sputtering); (2) deposição química, que depende de uma reação química com vapor contendo os constituintes do filme que são incidentes em um substrato para produzir um filme da composição desejada (CVD - *Chemical Vapor Deposition*, MBE - *Molecular Beam Epitaxy*, etc.). A deposição física é normalmente realizada em alto vácuo ou UHV - *Ultra High Vacuum* para evitar a contaminação do filme pela atmosfera ambiente, enquanto a deposição química geralmente utiliza um gás transportador inerte e pode até ser realizada à pressão atmosférica. O processo mais utilizado para a deposição de filmes magnéticos é a evaporação catódica (sputtering), que também pode ser dividido em categorias, conforme veremos adiante.

O processo de *sputtering* foi primeiro observado em 1852, quando Grove (e depois também Busen) notou a deposição de material do cátodo nas paredes internas de um tubo em que ocorria uma descarga DC, e o que se entendeu por volta dessa época foi a desintegração

do material devido à irradiação na superfície do cátodo por causa de partículas ionizadas altamente energéticas (WASA; KANNO; KOTERA, 2012).

A figura 15 é uma representação ilustrativa do que ocorre dentro da câmara onde ocorre o processo de *sputtering*. O processo consiste essencialmente na colisão de íons contra uma superfície de um alvo sólido (geralmente metálico), para que partículas arrancadas do alvo sejam transportadas em direção a um substrato (localizado no ânodo) e fiquem depositadas, por condensação, em sua superfície. Assim, é necessário primeiro ionizar átomos para que os mesmos sejam acelerados em direção ao cátodo e colidam com o alvo. Geralmente usa-se argônio porque é um gás inerte (não reage com o alvo), tem peso atômico médio (resulta numa alta taxa de deposição) e é relativamente barato. O *magnetron sputtering* é uma técnica de deposição envolvendo um plasma gasoso que é gerado e confinado no espaço imediatamente acima do alvo. A superfície do alvo é bombardeada pelos íons de Ar, e os átomos do material são arrancados com uma certa energia cinética. Esses átomos viajam através do ambiente de baixo vácuo e se depositam em um substrato para formar um filme fino.

Figura 15 – Representação ilustrativa do processo de evaporação catódica com magnetos (*magnetron sputtering*).



Fonte: (GONSALVES, 2019)

Para que esse processo ocorra nas condições apropriadas, algumas etapas devem ser observadas:

Evacuação da câmara: Nessa etapa a câmara onde será realizado o processo de *sputte-*

ring é levada à um nível de pressão muito baixa, chamada pressão base (tipicamente de 10^{-7} torr). Normalmente, é preciso esquentar a câmara por cerca de 2 horas, utilizando lâmpadas incandescentes de alta potência, para a evaporação de vapor de água presente nas paredes da câmara.

Ionização do Ar e formação do plasma: Primeiro, é injetado argônio de alta pureza (99.999 %) na câmara, a qual é mantida sobre um processo de evacuação por uma bomba turbo e uma bomba mecânica. A pressão de trabalho é da ordem de 3 mtorr. Para obter os íons Ar^+ e fazê-los acelerar em direção ao cátodo, é aplicada uma tensão DC ou RF a depender da natureza do material do alvo. Para alvos metálicos, uma fonte de alta tensão DC é suficiente, uma vez que o fluxo de corrente pode ser mantido entre os eletrodos metálicos. Em contrapartida, para um material alvo isolante, caso fosse aplicada uma voltagem DC os íons de argônio iriam acumular na parte da frente da superfície do alvo isolante (terminal negativo), de modo que a descarga não pode ser sustentada. Contudo, utilizando uma fonte RF é possível evitar essa acumulação de cargas positivas na superfície do alvo isolante e, portanto, é possível manter a emissão de átomos do material isolante do alvo acelerados em direção ao substrato. A colisão de íons Ar^+ com o alvo pode liberar elétrons secundários, de modo que o processo de ionização do argônio é:



Para iniciar a geração de plasma, a alta tensão é aplicada entre o cátodo (negativo) – comumente localizado diretamente atrás do alvo de pulverização – e o ânodo – comumente conectado ao aterramento elétrico. Os elétrons que estão presentes no gás de pulverização são acelerados para longe do cátodo colidindo com os átomos próximos do gás de sputtering, causando mais ionização. Os íons de Ar são agora acelerados em direção ao cátodo, carregado negativamente, levando a colisões de alta energia com a superfície do alvo. Um canhão de *magnetron sputtering* usa ímãs muito fortes para confinar os elétrons do plasma na superfície do alvo ou perto dela. O confinamento dos elétrons não apenas leva a um plasma de maior densidade e taxas de deposição aumentadas, mas também evita danos que seriam causados pelo impacto direto desses elétrons com o substrato ou filme em crescimento. A deposição por *magnetron sputtering* não requer fusão nem evaporação do material de interesse, levando a muitas vantagens sobre outras técnicas de deposição, tais como: (i) quase todos os materiais podem ser depositados por magnetron sputtering independentemente de sua temperatura de

fusão; (ii) as fontes podem ser dimensionadas e posicionadas em qualquer lugar da câmara; (iii) filmes de ligas e compostos podem ser depositados mantendo a composição semelhante à do alvo. Além disso, o *magnetron sputtering* permite realizar algumas reações químicas durante a deposição, por exemplo, adicionando-se oxigênio ou nitrogênio (juntamente com Ar) na câmara. Esta última técnica é conhecida como sputtering reativo. Para detalhes sobre os primeiros projetos de construção de *magnetron sputtering*, ver (WASA; HAYAKAWA, 1969).

Pré-sputtering: Como as condições ambientais podem introduzir impurezas nos alvos de *sputtering*, estes alvos são submetidos à um processo de pré-sputtering, de modo a arrancar as primeiras camadas atômicas do alvo, que podem estar "contaminadas". Para que essas camadas com possíveis impurezas não sejam depositadas no substrato, é utilizado um obturador (*shutter*) entre o disco onde se localizam os substratos e o alvo. Os substratos devem ter sido previamente limpos, visto que passaram por um processo cuidadoso de limpeza de várias etapas.

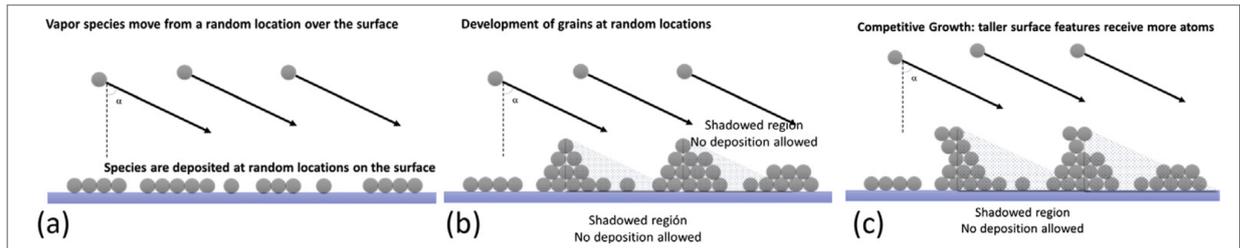
Deposição: Finalmente, rotacionamos o *shutter* para permitir que os átomos arrancados do alvo passem através da abertura e sejam depositados no substrato. É desnecessário dizer que tanto os canhões do *sputtering*, como a abertura do *shutter* e os substratos precisam estar suficientemente alinhados para permitir a deposição. Em particular, no nosso caso o sistema de *sputtering* consiste de 3 canhões e um disco com nove posições disponíveis para as amostras, sendo os canhões paralelos entre si.

3.2.1 Deposição por *sputtering* oblíquo

O principal efeito capaz de explicar a morfologia das nano-colunas criadas sob deposição por *sputtering* oblíquo é o efeito de sombreamento ou *self shadowing*. A figura 16 explica bem o fenômeno em questão.

Embora seja verificado empiricamente que o ângulo de rotação das nano-colunas também dependa da natureza química do material, a obtenção de relações geométricas capazes de explicar o ângulo de rotação das nano-colunas formadas têm sido estudadas a bastante muito tempo. Por exemplo, as regras da tangente e do cosseno podem ser empregadas para tentar explicar a direção aproximada das nano-colunas para ângulos oblíquos que não sejam muito

Figura 16 – Figura ilustrativa dos primeiros estágios do efeito *Self-Shadowing*. "Espécies" de partículas vaporizadas chegam de maneira randômica até o substrato. Como pode ser observado, a acumulação dessas espécies provoca um sombreamento em certas zonas da, o que impede com que partículas sejam depositadas nessas regiões.



Fonte: (BARRANCO et al., 2016)

grandes ($< 60^\circ$) (BARRANCO et al., 2016):

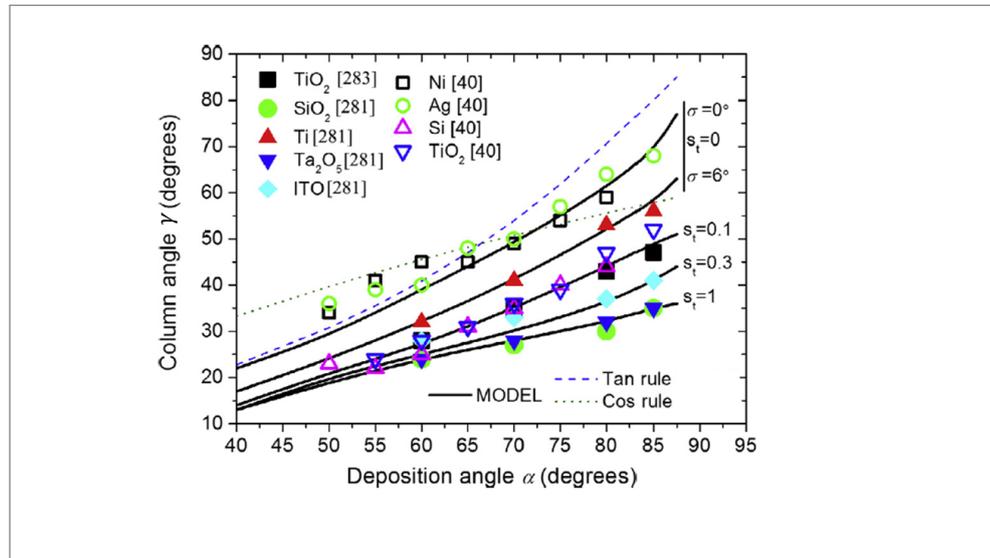
$$\tan \alpha = 2 \tan \gamma \quad (3.10)$$

$$\gamma = \alpha - \arcsin(1 - \cos \alpha)/2,$$

em que γ seria o ângulo de inclinação da nano-coluna e α é o ângulo oblíquo entre a normal da superfície do substrato e a direção do feixe de partículas, o qual está mostrado na figura 16. Entretanto, as expressões em 3.10 desconsideram totalmente fatores como composição química do material e características do processo de deposição. A regra do cosseno pode funcionar para alguns materiais, mas falha para outros. O gráfico mostrado na figura 17 mostra a diferença observada segundo o modelo de *surface trapping* e o resultado experimental. Duas grandezas importantes que estão associadas ao mecanismo de *Surface Trapping* são a *Surface trapping probability* s_t e a variância σ associada ao ângulo oblíquo médio α , o qual é justamente a média da distribuição gaussiana (ver figura 18). A diferença básica entre os modelos balísticos típicos e o mecanismo de *surface trapping* é que este assume que as partículas evaporadas podem desviar de suas trajetórias retilíneas (caso balístico) e atingir regiões que estariam sombreadas. É nesse sentido que surge o conceito de região sombreada efetiva (BARRANCO et al., 2016).

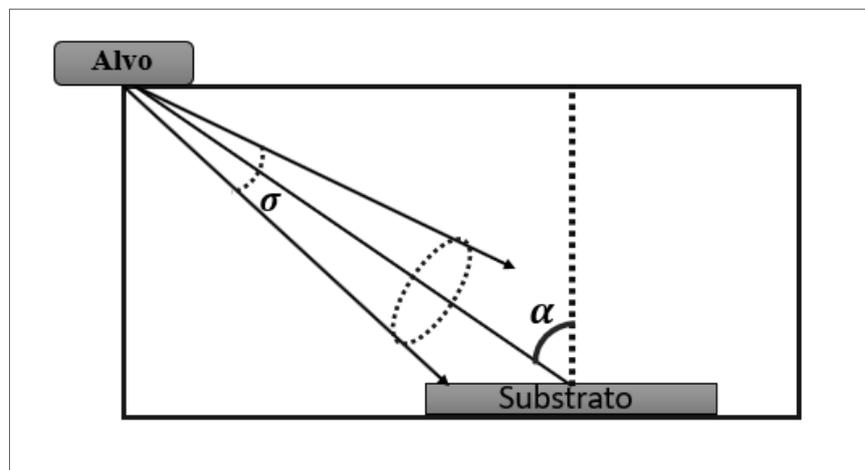
Para o nosso caso da deposição por *magnetron sputtering*, em que o processo de espalhamento devido ao gás de Ar provoca, em alguma medida, um redirecionamento aleatório das partículas, ainda pode ser observado uma direção preferencial de crescimento das nano-colunas (BARRANCO et al., 2016).

Figura 17 – Resultados do modelo de "surface trapping" para vários valores de s_t (Surface trapping probability) e σ (variância do ângulo α) e para vários materiais, juntamente com dados obtidos experimentalmente.



Fonte: Os colchetes denotam as referências. São elas (KRAUSE et al., 2010; ZHU et al., 2012). As curvas correspondentes à regra da tangente e cosseno também estão presentes (ALVAREZ et al., 2014). A figura foi adaptada de (BARRANCO et al., 2016)

Figura 18 – Esquema ilustrativo da distribuição das partículas evaporadas em direção ao substrato segundo um modelo gaussiano. No nosso sistema, o alvo está imediatamente acima do substrato, o qual está inclinado com ângulo β .



Fonte: Próprio autor

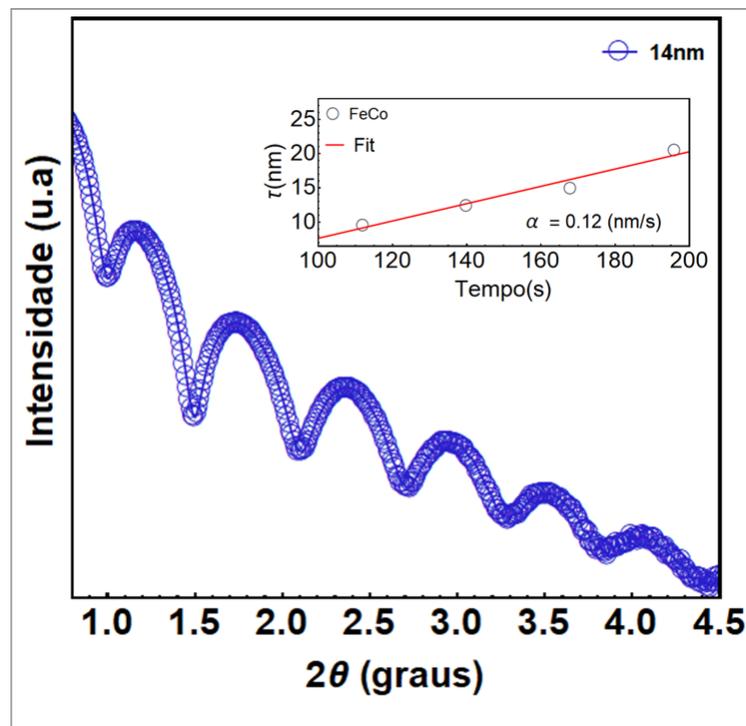
3.2.2 Calibração da taxa de deposição do alvo de $Fe_{75}Co_{25}$

De modo a obter as espessuras das camadas depositadas, foi necessário primeiro determinar qual a taxa de deposição do material do alvo. Para tanto, foram depositadas por sputtering camadas de $Co_{25}Fe_{75}$ sobre um substrato de silício cuja área da superfície foi parcialmente coberta para evitar a deposição do material, e assim permitir a determinação da altura do

degrau devido ao filme fino. Os tempos de deposição foram 30, 35 e 40 minutos. Para medir a altura do degrau foi usado um perfilômetro AlphaStep D100 (KLA Tencor). Determinamos uma taxa de 4,29 nm/min.

Para determinar a taxa de deposição das amostras depositadas sob *sputtering* oblíquo de 40°, foram realizadas medidas de refletividade de raios-X nas amostras. Para tanto, foi utilizado um difratômetro de Raios-X com radiação k_{α} do cobre ($\lambda = 1.541 \text{ \AA}$). A figura 19 mostra as franjas de Kiessig de uma das amostras (com o ajuste numérico), juntamente com um *inset* da taxa de deposição, determinada através da inclinação da curva da espessura em função do tempo. Medidas de refletividade de raios-X para amostras com β diferentes estão dispostas no anexo A.

Figura 19 – Franjas de Kiessig do $Si/SiO_2/Fe_{75}Co_{25}$ obtidas por medidas de refletividade, as quais possibilitam estimar a espessura da camada do filme fino, bem como sua rugosidade. A intensidade está em unidades arbitrárias. A intensidade está em unidades arbitrárias.



Fonte: Próprio autor

Para determinar a espessura de cada filme podemos usar as posições (2θ) das franjas dos máximos de refletividade, os quais podem ser expressos usando a relação:

$$\sin^2 \alpha = \sin^2 \alpha_c + \left(\frac{\lambda}{2t} \right) n^2, \quad (3.11)$$

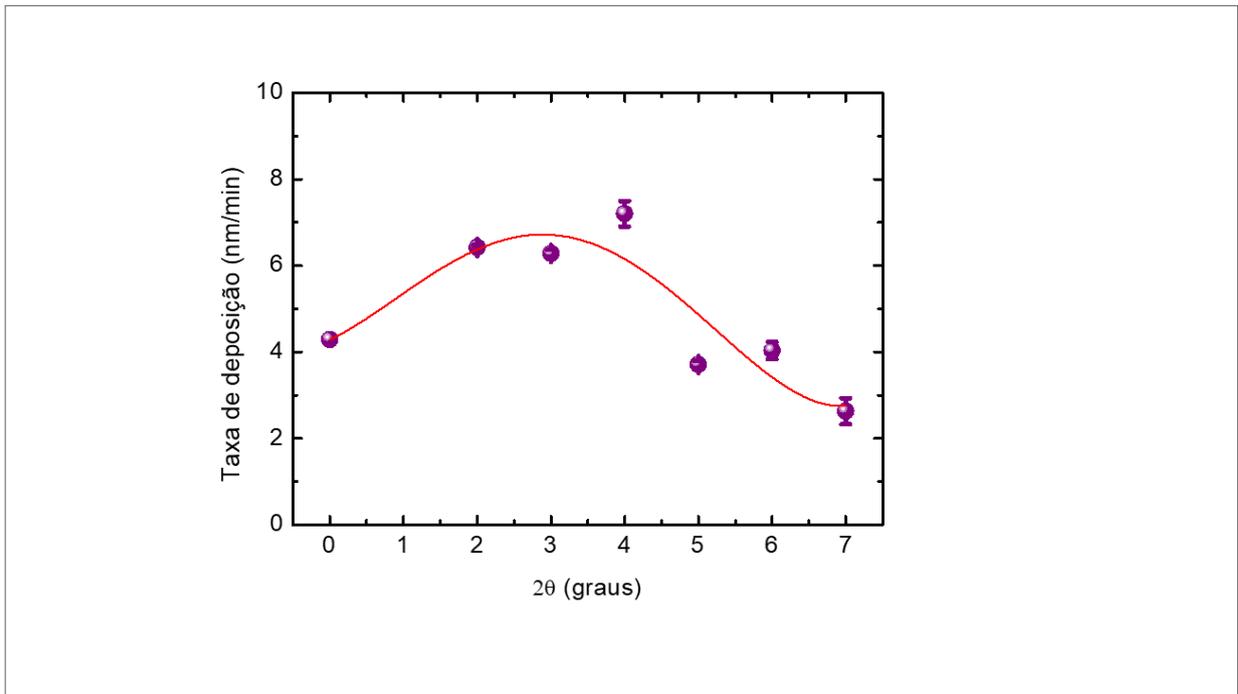
em que t é a espessura do filme, n é a ordem dos picos, λ é o comprimento de onda de Raios-X utilizado, e α e α_c são os ângulos refletido e crítico, respectivamente. Assim, o fator

$\lambda/2t$ pode ser obtido tomando a inclinação da reta de $\sin^2 \alpha$ versus n^2 . Nesse caso, é preciso fazer o ajuste das formas das franjas de Kiessing medidas utilizando a equação 3.11, de modo a determinar os parâmetros do ajuste ($\sin^2 \alpha$, $\sin^2 \alpha_c$ e n^2). Assim, obtendo a espessura t para diferentes instantes, obtivemos uma taxa de deposição de $0,12\text{nm}/\text{s} = 7,2\text{nm}/\text{min}$ para as amostras crescidas sob *sputtering* oblíquo de 40° . Outra maneira mais simples para determinar a espessura e , portanto, a taxa de deposição, é utilizar o vetor de espalhamento \vec{q} , cuja magnitude é

$$q = \frac{4\pi \sin \theta}{\lambda}, \quad (3.12)$$

em que q é calculado para cada ângulo na posição 2θ associado a cada pico das franjas de Kiessing. Nesse caso, as espessuras t podem ser determinadas usando $t = 2\pi/b$, sendo b a inclinação da reta do gráfico de q vs n . A figura 20 mostra a taxa de deposição do alvo de $Fe_{75}Co_{25}$ em função do ângulo β .

Figura 20 – Taxa de deposição em função do ângulo de crescimento oblíquo.

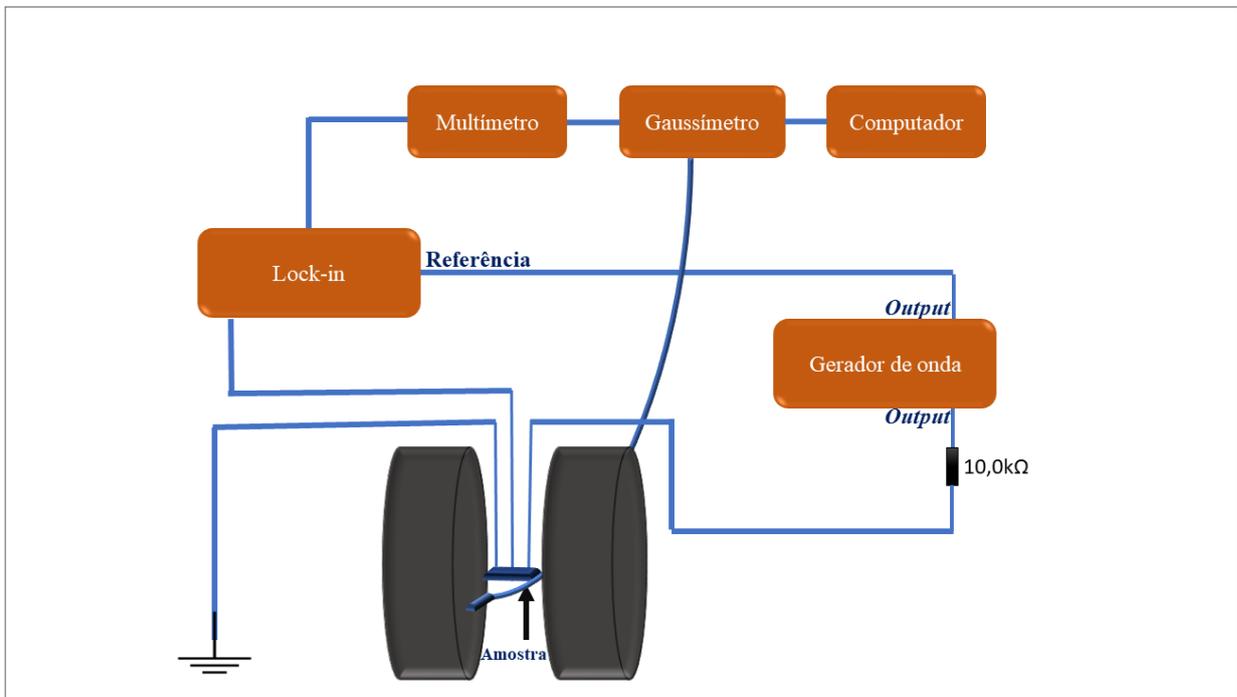


Fonte: Próprio autor

3.3 AMR - ANISOTROPIC MAGNETORESISTANCE

Para medir os efeitos de AMR nas amostras de $Si/SiO_2/Fe_{75}Co_{25}$ utilizamos o sistema que está ilustrado na figura 21.

Figura 21 – Diagrama de bloco da montagem experimental referente ao efeito de AMR.

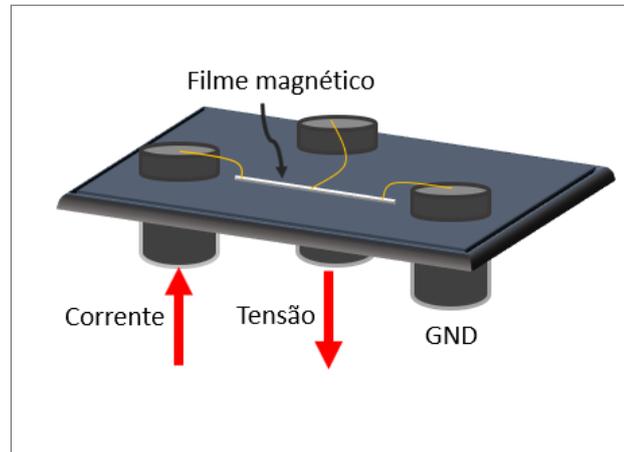


Fonte: Próprio autor

Primeiramente, o sinal de referência (sinal de saída do gerador de onda) deve estar conectado com a referência do *lock-in*. Como nosso gerador de onda é um gerador de tensão e não de corrente, precisamos pôr um resistor em série com a fonte de tensão para termos uma fonte de corrente praticamente ideal. No caso, usamos um resistor de $10,0k\Omega$. A corrente passa através da amostra enquanto que o sinal de tensão em terminais da amostra é amplificado pelo *lock-in* e lido pelo multímetro (poderia ser lido diretamente no *lock-in*, mas por problemas técnicos isso não foi possível) e enviado ao computador, bem como o valor de campo lido pelo gaussímetro. O programa para aquisição dos dados de tensão e campo foi desenvolvido em *Python*. Basicamente, os sinais medidos na amostra podem ser representados conforme a figura 22 ou a figura 23. Utilizamos o método de 4 pontas. Após passar pelo resistor, a corrente segue para a amostra através de um cabo BNC e chega até ela por fios muito finos. O terminal do meio leva o sinal que será lido como tensão pelo *lock-in*, enquanto o terminal GND da base é simplesmente o "terra" do sistema. O contorno da carcaça retangular também

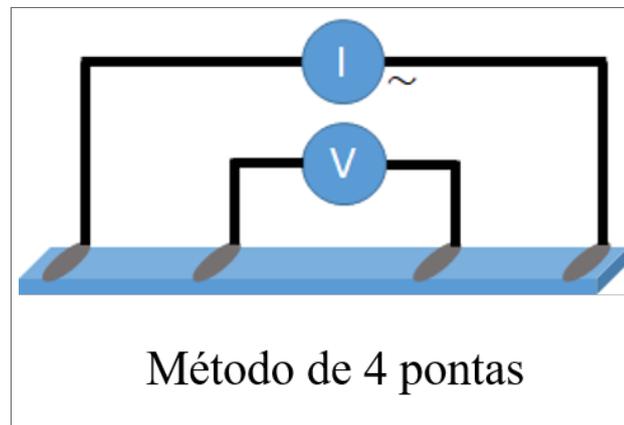
funciona como terra para o sistema.

Figura 22 – Representação simplificada da base contendo a amostra (um filme fino em formato de tira). No nosso experimento, essa base fica mantida em uma caixa retangular, de modo a ser possível mantê-la fixa.



Fonte: Próprio autor

Figura 23 – Ilustração do método de 4 pontas, bastante utilizado para fazer medidas de magnetorresistência.



Fonte: Próprio autor

Idealmente, seria melhor realizar medidas para qualquer orientação do filme fino em relação ao campo magnético estático, mas focamos apenas em medidas feitas com campo perpendicular, paralelo e a 45° em relação à direção do filme, porque não tivemos um bom sistema capaz de rotacionar sem haver muito ruído causado por vibrações.

4 RESULTADOS E DISCUSSÃO

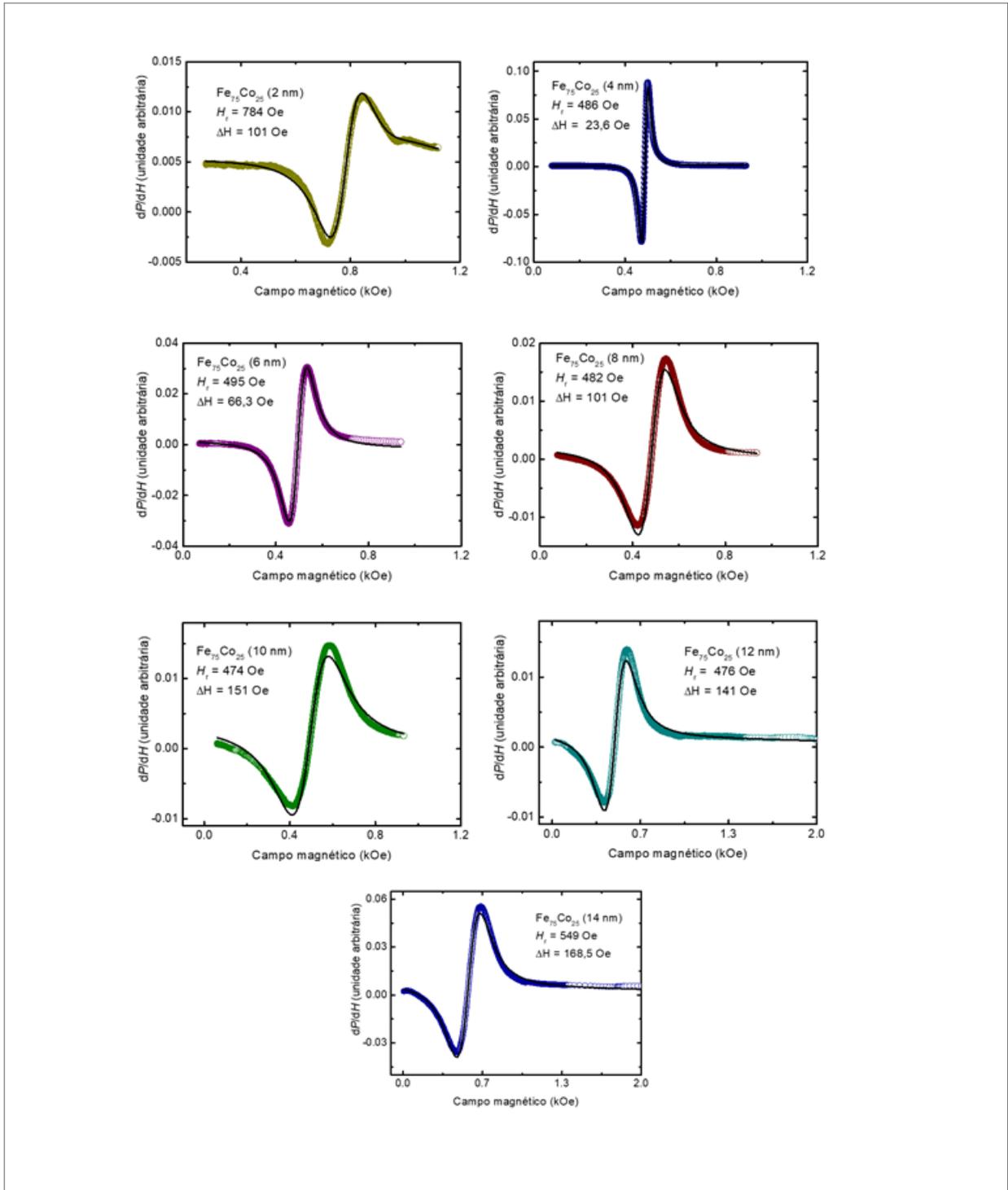
Neste capítulo apresentamos os principais resultados obtidos nessa dissertação de mestrado, onde estudamos propriedades magnéticas em filmes de $Fe_{75}Co_{25}$ utilizando as técnicas de ressonância ferromagnética e medidas de magnetorresistência. Foram crescidas várias séries de filmes de $Si(001)/Fe_{75}Co_{25}(t)$ por sputtering DC. Inicialmente variamos a espessura dos filmes desde 2 nm até 14 nm e medimos a dependência angular do campo de ressonância e largura de linha para cada amostra. Uma segunda série de filmes foi crescida usando a técnica de *sputtering oblíquo*, onde a normal ao plano do substrato de Si faz um ângulo β com a direção do fluxo de átomos (ver figura 27). Investigamos amostra com os seguintes valores do ângulo β : 0° , 10° , 20° , 25° , 30° , 35° e 40° .

4.1 PROPRIEDADES DOS FILMES DE $Fe_{75}Co_{25}$ CRESCIDOS COM $\beta = 0^\circ$.

Inicialmente preparamos uma série de filmes de $Fe_{75}Co_{25}$ crescidos sobre substratos de Si(001) à temperatura ambiente com os seguintes parâmetros de deposição: Pressão de base $\approx 2 \cdot 10^{-7}$ torr, pressão de trabalho $3 \cdot 10^{-3}$ torr. O tempo de deposição variou para cada filme de forma que obtivemos filmes com espessuras 2 a 14 nm, com intervalos de 2 nm entre cada amostra, num total de 7 amostras. Uma terceira série de amostra foi crescida fixando-se o ângulo $\beta = 40^\circ$ e variando a espessura.

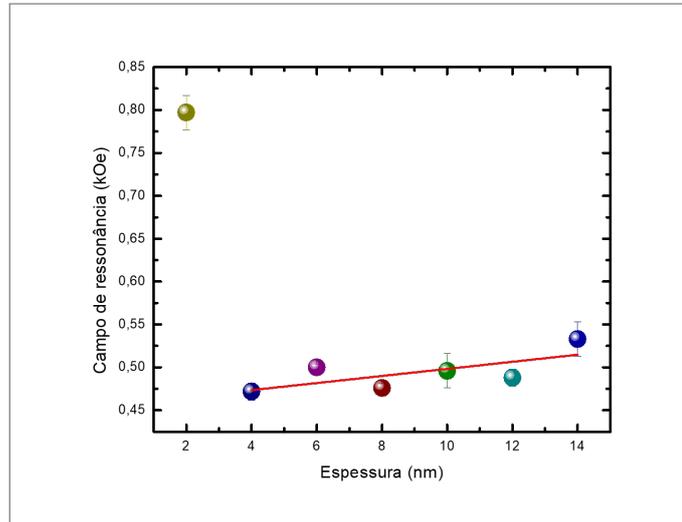
A figura 24 mostra curvas representativas de FMR para cada espessura. As figuras 25 e 26 mostram a dependência do campo de ressonância médios e da largura de linha em função da espessura dos filmes de $Si(001)/Fe_{75}Co_{25}$, respectivamente. Como eles foram depositados por sputtering com ângulo $\beta = 0^\circ$, a anisotropia no plano é desprezível. Cada ponto foi obtido tomando a média de 10 medidas. Observamos um mínimo na largura de linha para a amostra fabricada com 4 nm, o que pode indicar que o amortecimento seria mínimo nessa espessura. Também notamos que o campo de ressonância varia pouco para espessuras de 4 nm até 14 nm, cuja pequena variação que pode ser atribuída à anisotropia de superfície. Para o filme de 2 nm, o campo de FMR apresentou um valor muito grande, da ordem de 2 vezes o valor esperado. Essa diferença poderia ser atribuída ao fato de que o filme muito fino cresce bastante estressado (expandido) e à medida que a espessura aumenta o filme relaxa a sua estrutura cristalina. Esse é um assunto que merece ser investigado mais detalhadamente.

Figura 24 – Curvas de FMR obtidas com frequência de 9.46 GHz para diferentes espessuras do $Fe_{75}Co_{25}$. As linhas pretas contínuas foram obtidas do ajuste numérico com a derivada de uma função Lorentziana.



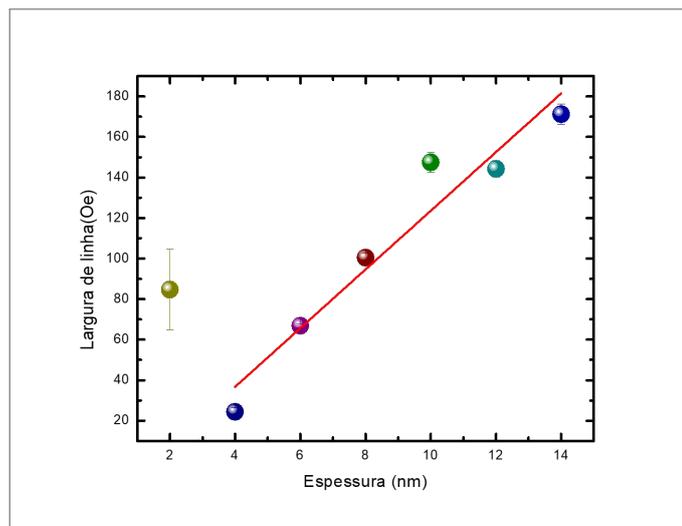
Fonte: Próprio autor

Figura 25 – Valores médios (média de 10 valores) para o campo de ressonância em função da espessura do filme de $Fe_{75}Co_{25}$. Exemplos de curvas correspondentes aos pontos obtidos estão dispostas na figura 24, com suas respectivas cores. As retas sólidas em vermelho servem de guia para os olhos.



Fonte: Próprio autor

Figura 26 – Valores médios (média de 10 valores) para a largura de linha em função da espessura do filme de $Fe_{75}Co_{25}$. Exemplos de curvas correspondentes aos pontos obtidos estão dispostas na figura 24, com suas respectivas cores. As retas sólidas em vermelho servem de guia para os olhos.

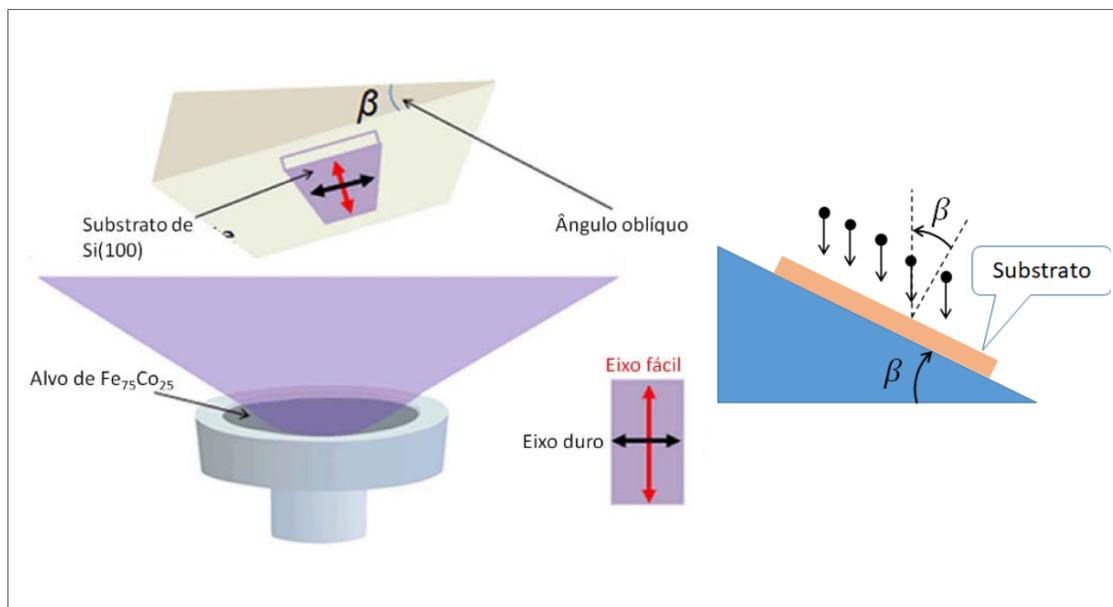


Fonte: Próprio autor

4.2 CAMPO DE RESSONÂNCIA E LARGURA DE LINHA EM FUNÇÃO DO ÂNGULO DE CRESCIMENTO OBLÍQUO

Com explicado no capítulo 3, filmes magnéticos crescidos obliquamente, isto é, quando a normal ao plano do substrato de Si faz um ângulo β com a direção do fluxo de átomos (ver Figura 27), apresentam uma forte anisotropia no plano. Essa configuração induz o crescimento de microestruturas colunares inclinadas em relação ao plano do substrato. As estruturas colunares induzem eixos de anisotropia induzida fácil e duro como ilustrado na figura 27.

Figura 27 – Ilustração do esquema de deposição oblíquo utilizado.



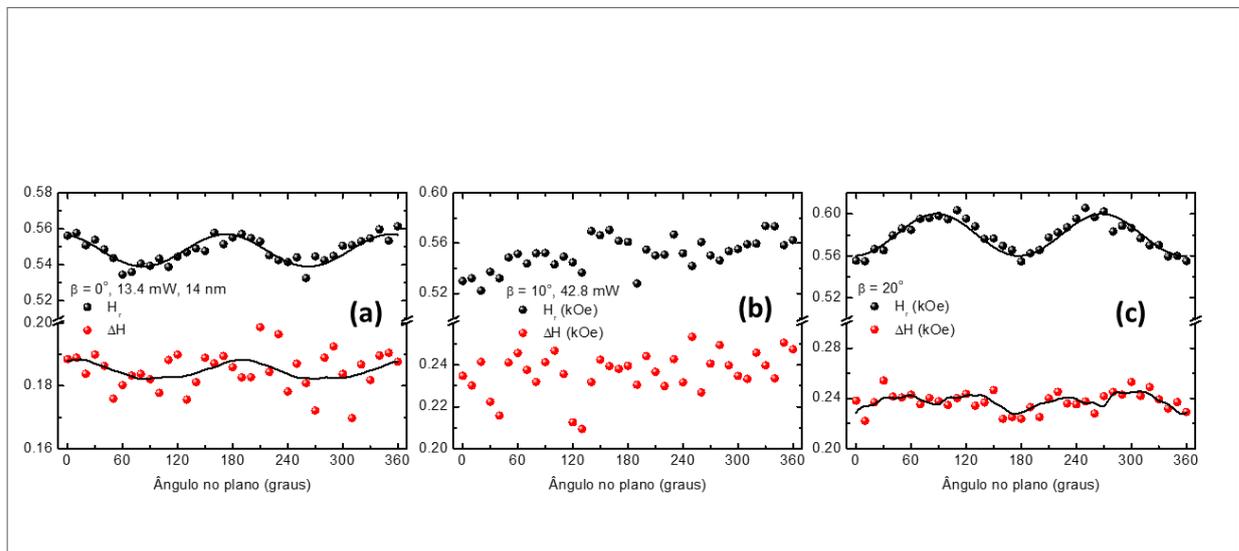
Fonte: Próprio autor

Enquanto filmes policristalinos depositados em incidência normal possuem anisotropia desprezível (ferromagnetos macios), os filmes crescidos de maneira inclinada apresentam um eixo fácil perpendicular à direção de projeção da deposição, como indicado pela seta vermelha da figura 27. A seguir apresentamos resultados de medidas para uma série de filmes crescidos com a mesma espessura, mas com diferentes ângulos de inclinação.

A figura 28 mostra a dependência do campo de ressonância (símbolos pretos) e largura de linha (símbolos vermelhos) em função do ângulo azimutal (ϕ), para os filmes de $Fe_{75}Co_{25}$ crescidos com $\beta = 0^\circ$, $\beta = 10^\circ$ e $\beta = 20^\circ$. O filme crescido com $\beta = 0^\circ$ apresenta uma pequena anisotropia uniaxial espontânea (tipo C2), como pode ser visto pelos símbolos pretos do gráfico (a). O eixo duro de anisotropia ocorre para $\phi = 0^\circ$. A dependência da largura de linha com o ângulo azimutal apresenta uma pequena simetria, como visto pelos símbolos

vermelhos da figura 28(a). A figura 28(b) apresenta H_r e ΔH em função de ϕ para o filme crescido com $\beta = 10^\circ$. Observe que a simetria uniaxial espontânea existente no filme crescido a $\beta = 0^\circ$ (figura (a)) desapareceu completamente. A nossa hipótese é que a anisotropia induzida pelo crescimento oblíquo com $\beta = 10^\circ$ destrói completamente a anisotropia espontânea. Essa hipótese se confirma quando analisamos o filme crescido a $\beta = 20^\circ$ (figura 28(c)). Nesse caso, a anisotropia induzida pelo crescimento oblíquo já se estabelece completamente, e o eixo em $\phi = 0^\circ$, que era um eixo duro na figura 28(a), passa a ser um eixo fácil, como mostrado na figura 28(b). A largura de linha já apresenta uma simetria planar, indicando o papel da anisotropia induzida na relaxação da magnetização. As curvas sólidas são ajuste numéricos obtidos com as equações discutidas no capítulo 2. A partir destes ajustes, extraímos parâmetros físicos importantes que serão discutidos no final dessa seção.

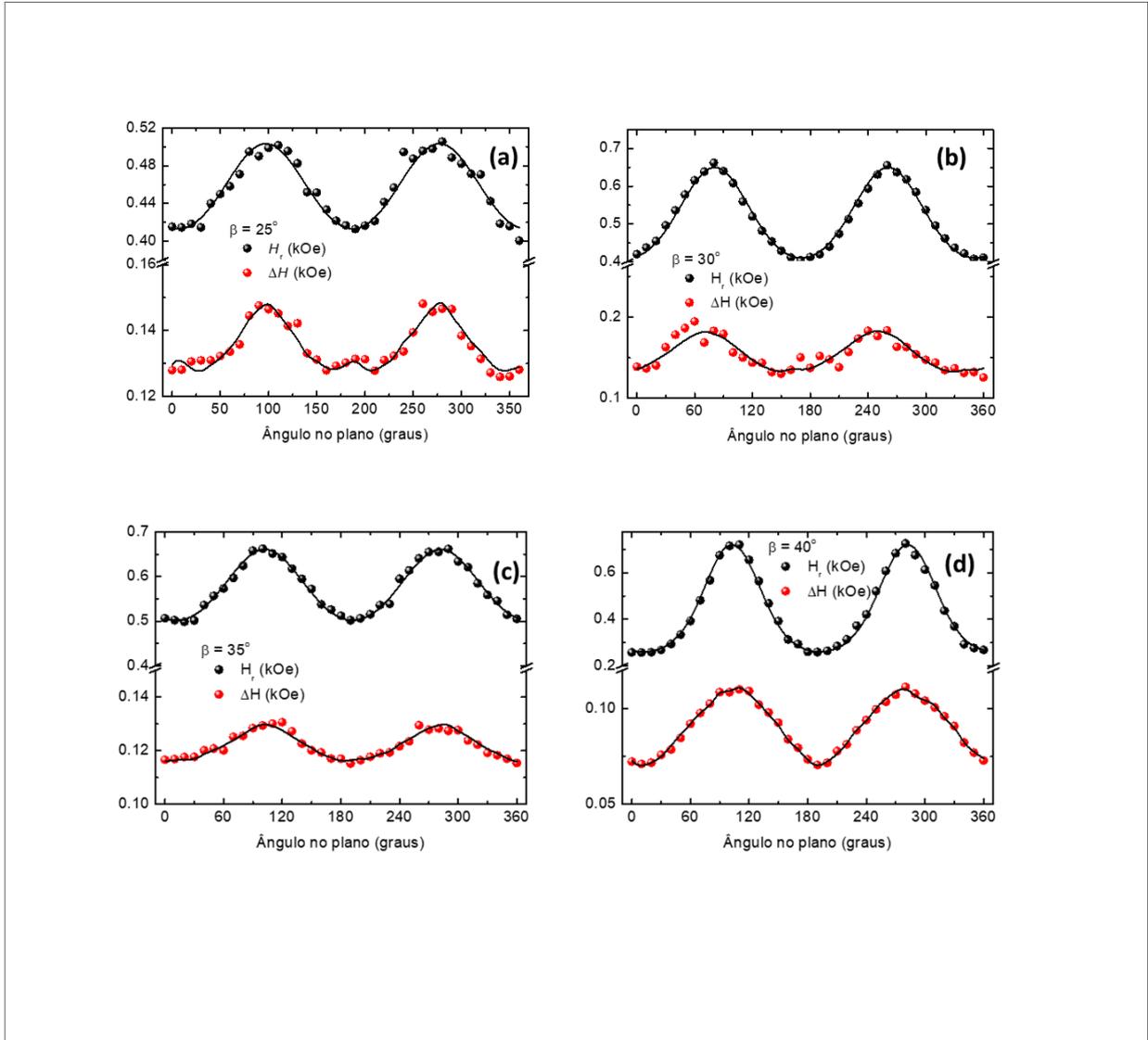
Figura 28 – Campos de ressonância (curva preta) e larguras de linha (curva vermelha) em função do ângulo ϕ no plano, para amostras fabricadas com diferentes ângulos de crescimento oblíquo. A largura de linha e o campo de ressonância referente à medida com $\beta = 10^\circ$ não foram possíveis de serem ajustados.



Fonte: Próprio autor

A figura 29 mostra os resultados de medidas de H_r e ΔH em função de ϕ para os filmes crescidos com $\beta = 25^\circ$ (a), $\beta = 30^\circ$ (b), $\beta = 35^\circ$ (c) e $\beta = 40^\circ$ (d). Observa-se claramente o aumento da anisotropia uniaxial no plano dos filmes em função do ângulo oblíquo de crescimento. A dependência da largura de linha segue a mesma simetria do campo de ressonância, o que é compatível com o mecanismo de espalhamento de dois mágnons. Esse já era de certa forma um resultado esperado, pois a microestrutura colunar deve funcionar como defeito para ativar o mecanismo de espalhamento de dois mágnons como será discutido mais adiante.

Figura 29 – Campos de ressonância (curva preta) e larguras de linha (curva vermelha) em função do ângulo ϕ no plano, para amostras fabricadas com diferentes ângulos de crescimento oblíquo. Nota-se o aumento da anisotropia induzida devido ao crescimento oblíquo. O formato das curvas planares de ΔH para $\beta \geq 20^\circ$ são típicos do mecanismo de espalhamento de 2-mágnons (CHENG et al., 2018).

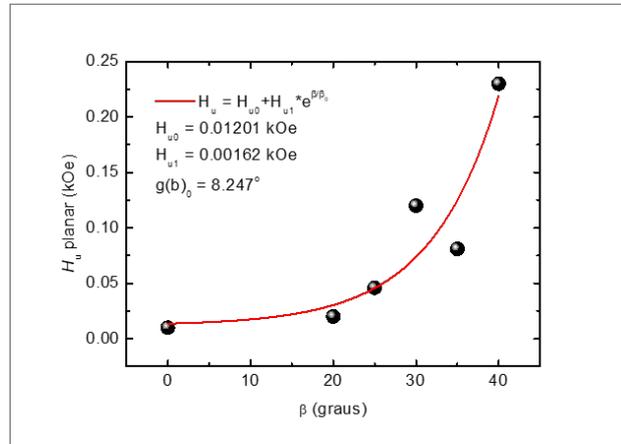


Fonte: Próprio autor

A figura 30 mostra a dependência do valor campo de anisotropia uniaxial extraído dos ajustes numéricos (curvas sólidas da figura 30) em função do ângulo de crescimento oblíquo. A curva sólida vermelha foi ajustada como uma função exponencial do tipo $H_u = H_{u0} + H_{u1}e^{\beta/\beta_0}$. Do ajuste exponencial obtivemos $H_{u0} = 12$ Oe, $H_{u1} = 1,6$ Oe e $\beta_0 = 8,247$. O ajuste exponencial mostra que a taxa de variação da grandeza H_u proporcional a H_u , porém como H_u é proporcional ao ângulo de deposição oblíquo, o que podemos explicar fazendo $dH_u/d\beta = aH_u$, cuja solução é a exponencial acima. O aumento de H_u é esperado, pois uma direção preferencial de crescimento das nanocolunas é imposta pela inclinação do substrato. Filmes de

Py, por exemplo, já eram conhecidos há bastante tempo por terem uma anisotropia induzida advinda do crescimento inclinado (SMITH, 1959).

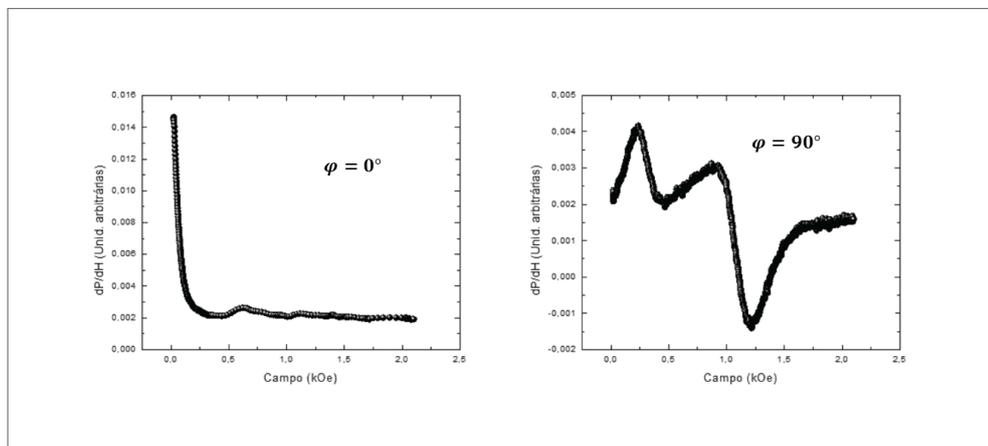
Figura 30 – Campo de anisotropia uniaxial em função do ângulo de crescimento oblíquo.



Fonte: Próprio autor

Vale a pena mencionar que crescemos filmes com $\beta > 40^\circ$, porém tivemos dificuldades de detectar sinais de FMR para todos os ângulos no plano do filme. A figura 31 mostra curvas de FMR para um filme de $Fe_{75}Co_{25}(14nm)$ crescido com $\beta = 50^\circ$ para os ângulos no plano $\phi = 0^\circ$ (eixo fácil) e $\phi = 90^\circ$ (eixo duro). Observe que o sinal de FMR não está definido quando o campo externo é aplicado ao longo do eixo fácil. Atribuímos isso ao fato do campo de anisotropia uniaxial ser muito forte. A interpretação é simples. Se escrevermos a equação de ressonância de forma simplificada como

Figura 31 – Curvas de FMR para um filme de $Fe_{75}Co_{25}(14nm)$ crescido com ângulo $\beta = 50^\circ$, para o campo aplicado nos eixos fácil ($\phi = 0^\circ$) e duro ($\phi = 90^\circ$). A presença dos dois picos de ressonância pode ser explicado.



Fonte: Próprio autor

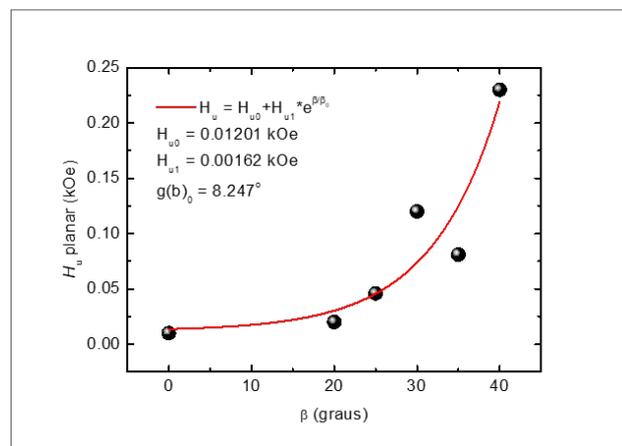
$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = (H_0 + H_u + 4\pi M_{eff})(H_0 + H_u), \quad (4.1)$$

podemos observar que como o lado esquerdo da equação é constante, se aumentarmos H_u , o campo de ressonância H_0 deve diminuir. Isso explica a razão de não podermos medir a curva de FMR em $\phi = 0^\circ$. Para medirmos esse sinal, teríamos que ter usado uma cavidade com frequência de ressonância muito maior. Observe que o campo de FMR, quando aplicado paralelo ao eixo duro $\phi = 90^\circ$, fica da ordem de 1,0 kOe. O campo de FMR que era da ordem de 0,5 kOe (ver figura 29) aumento de duas vezes. O comportamento para filmes crescidos em ângulos $\beta = 50^\circ$, 60° e 70° merecem ser investigados a posteriori. Provavelmente o comportamento da curva mostrado na figura 30 terá que ser corrigido.

Resultados semelhantes foram verificados em outros trabalhos para outros tipos de filmes, por exemplo em (MENDES et al., 2010). Os eixos fácil e difícil de anisotropia são intercambiados para $\beta \geq 20^\circ$: o que antes era um eixo fácil, se torna um eixo duro de magnetização.

A existência de dois modos de ressonância detectados para $\phi_H = 90^\circ$ pode ser também explicada facilmente através das relações de dispersão da frequência de FMR em função do campo aplicado ao longo dos eixos fácil e duro. A figura 32 foi obtida numericamente utilizando a equação 2.86, para H aplicado ao longo do eixo fácil, $\phi_H = 0^\circ$, (curva vermelha) e H aplicado ao longo do eixo duro, $\phi_H = 90^\circ$, (curva preta). A curva em azul representa a região de magnetização não saturada e foi desenhada qualitativamente.

Figura 32 – Curvas de frequência versus H, obtidas utilizando a equação 2.86 com os seguintes parâmetros: $4\pi M_{eff} = 18$ kG, $H_u = 0,6$ kOe, $\gamma = 2,9$ GHz/kOe. A curva em azul foi traçada qualitativamente.



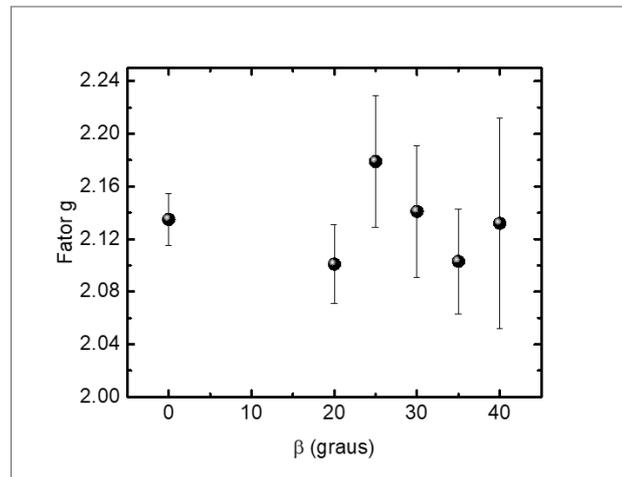
Fonte: Próprio autor

Como utilizamos uma frequência de RF fixa (técnica de FMR com cavidade), temos a possibilidade de excitar dois modos de ressonância quando H é aplicado paralelo ao eixo duro,

representados pelas duas bolas pretas. O primeiro modo de ressonância, que ocorre em baixos valores de campos, ocorre na região onde a magnetização não está saturada (1ª bola preta). O segundo modo de ressonância, que ocorre em altos valores de campos, ocorre na região onde a magnetização está saturada (2ª bola preta). Observe que não observamos uma curva de absorção para H aplicado ao longo do eixo fácil, pois a linha preta tracejada não corta a curva vermelha. Essa interpretação explica as curvas mostradas na figura 32. Assim, a investigação de FMR em filmes crescidos com $\beta > 50^\circ$ deve ser realizada com frequências acima de 11 GHz.

O fator g de Landé obtido a partir dos ajustes está descrito como função do ângulo na figura 33.

Figura 33 – Fator g em função do ângulo de crescimento oblíquo.



Fonte: Próprio autor

Embora o sinal do fator g seja uma convenção (a depender da convenção de o momento magnético de spin \vec{m}_s e do spin \vec{S} terem sinais opostos), ele pode ser escrito como $g = 2 + 2m_l/m_s$. Esse valor pode ser interpretado como sendo uma medida do acomplamento spin-órbita ou do momento angular orbital suprimido (*orbital momentum quenching*) (AZZAWI; HINDMARCH; ATKINSON, 2017). Em resumo, como os elétrons são afetados pelo potencial eletrostático advindo da rede cristalina, principalmente para sólidos iônicos, a depender do tipo de simetria da rede o seu potencial (expandido em harmônicos esféricos $Y_{l,m}(\theta, \phi)$) poderá ter termos nulos e termos com $m \neq 0$ que se cancelam mutuamente. Dizemos então que o momento angular orbital está suprimido ("*quenching*"). Mas para o caso dos elementos 3d, os quais possuem uma interação spin-órbita não nula, e cuja energia é muito menor do que a do potencial cristalino (WHITE; WHITE; BAYNE, 1983), então uma pequena "parte" desse

momento orbital passa a não ser mais suprimido, e podemos dizer que o acoplamento spin-órbita "*unquenches*" parcialmente o momento orbital. Observando a figura 33, notamos que $g > 2$ para todas os ângulos de crescimento, resultado diferente do obtido dos resultados variando a espessura, como veremos posteriormente.

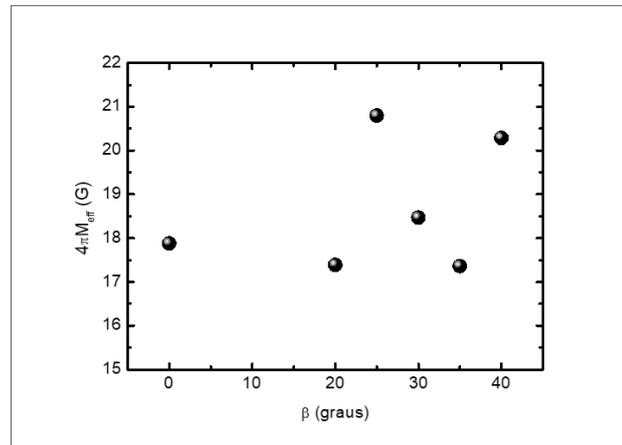
A presença do momento orbital não suprimido possui uma implicação muito importante para o material: o surgimento da anisotropia magnetocristalina. Como a anisotropia uniaxial aumenta com o ângulo de inclinação β , então seria esperado alguma dependência específica do fator g com o aumento da inclinação, visto que a anisotropia uniaxial é justamente induzida pelo crescimento inclinado das nano-colunas. Todavia, o fator g em função de β parece um tanto aleatório. Ou seja, não pudemos obter nenhuma conclusão sobre esse resultado até agora.

No caso da magnetização efetiva em função do ângulo β , essa relação não parece ter uma explicação clara (ver figura 34). Sabemos que $4\pi M_{eff}$ pode aumentar com a espessura e saturar rapidamente. Mas como a taxa de deposição muda com a inclinação, então seria esperado uma mudança no valor de $4\pi M_{eff}$. Mas essa variação é muito pequena para justificar o resultado. Provavelmente o ângulo de crescimento provoque um aumento da porosidade dos filmes e isto influencia no valor da magnetização efetiva. Por exemplo, comparando $\beta = 40^\circ$ com $\beta = 0^\circ$, esperaríamos um aumento da magnetização efetiva, como de fato ocorreu. Em suma, o valor obtido para $4\pi M_{eff}$ não parece depender somente das espessuras dos filmes. Apenas fixando as espessuras dos filmes, mas fazê-los crescer com diferentes inclinações deve ser a maneira direta para determinar a dependência da magnetização efetiva com β . Como as espessuras foram estimadas a posteriori, então assumimos que associado ao ângulo β as espessuras seriam diferentes.

Finalmente, o parâmetro de amortecimento α está mostrado na figura 35. O fato de termos valores plotados de α apenas para ângulos $\beta > 20^\circ$ se deve à dificuldade de obter valores de α por meio do ajuste numérico para as curvas que apresentam pouca ou nenhuma simetria na largura de linha, como é o caso das curvas para $\beta = 20^\circ$, 10° e 0° .

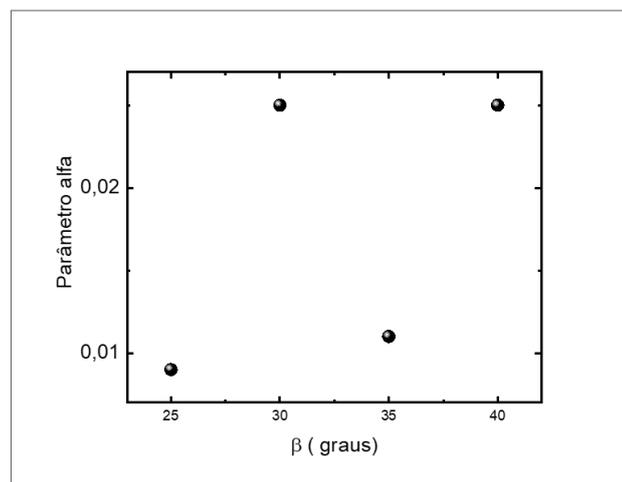
Assumindo que o mecanismo de espalhamento de 2-mágnons é ativado pelo aumento na microestrutura colunar, então α deveria aumentar para ângulos β maiores. Mas não notamos uma tendência clara de aumento do amortecimento observando a figura 35. É sabido que a magnitude do espalhamento de 2-mágnons depende do substrato no qual o filme é crescido, pois a qualidade cristalina dependerá do substrato utilizado. Cheng *et al* (CHENG *et al.*, 2018) notaram que os filmes crescidos sobre substrato de MAO ($MgAlO_4$) possuem uma intensidade

Figura 34 – Magnetização efetiva em função do ângulo de crescimento oblíquo.



Fonte: Próprio autor

Figura 35 – Parâmetro de amortecimento determinado numericamente para diferentes ângulos de crescimento oblíquo.



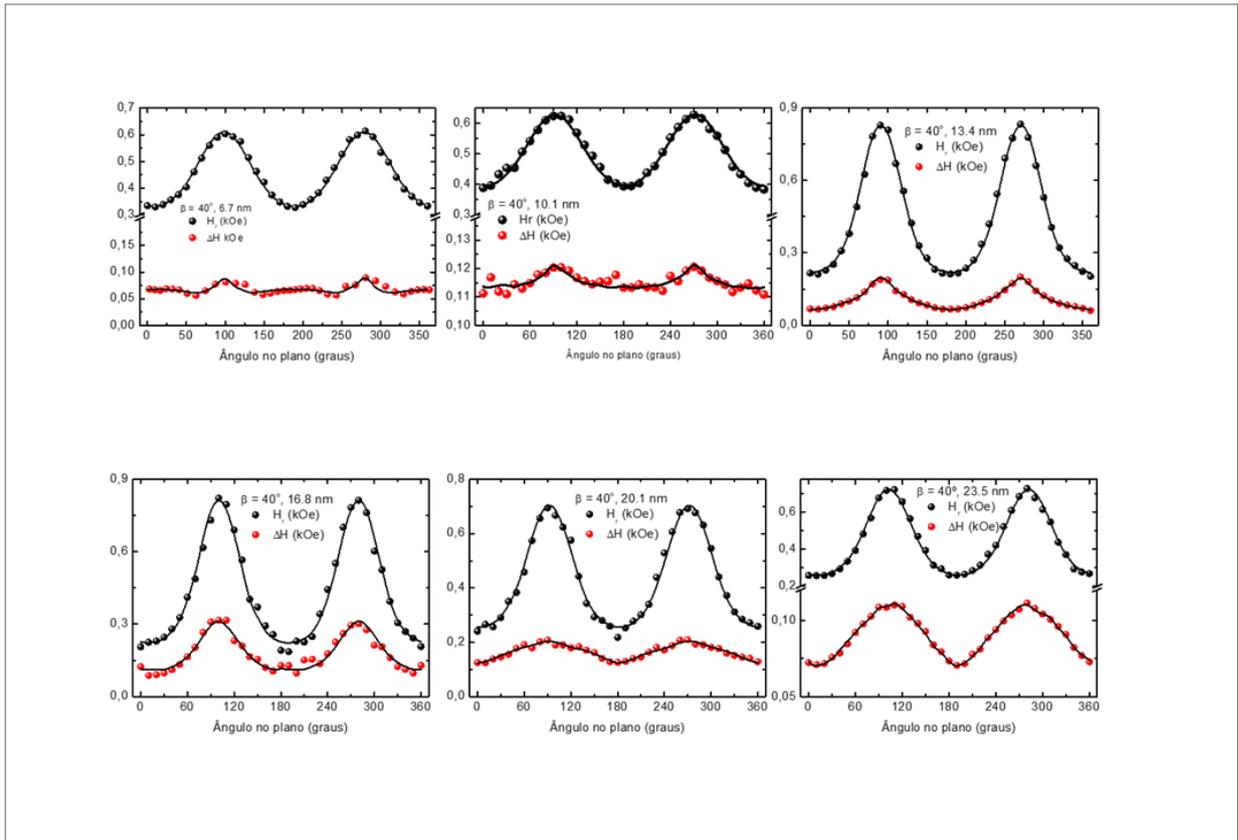
Fonte: Próprio autor

de espalhamento de 2-mágnons claramente menor do que os filmes fabricados sobre MgO, o que é esperado considerando a melhor qualidade cristalina e menor densidade de defeitos apresentados pelos filmes depositados sobre MAO comparados com os depositados sobre MgO. No caso do nosso trabalho, os filmes foram produzidos com o mesmo substrato de Si(001), e os filmes crescidos com maiores β apresentaram maiores anisotropias, o que nos leva a postular que o crescimento oblíquo acarretou no aumento do espalhamento de 2-mágnons (e de fato, observando as figuras 28, o "formato" típico desse espalhamento se torna mais proeminente, ver (CHENG et al., 2018)). Contudo, esse efeito não parece ser relevante para o aumento do amortecimento nas nossas amostras.

4.3 PROPRIEDADES DOS FILMES DE $Fe_{75}Co_{25}$ CRESCIDOS COM $\beta = 0^\circ$.

Crescemos mais uma série de filmes de $Si(001)/Fe_{75}Co_{25}(t)$, onde o ângulo β foi fixado em 40° e a espessura t variou de 6.7 nm a 23.5 nm. As medidas ajustadas do campo de ressonância e largura de linha em função do ângulo no plano estão dispostas na figura 36.

Figura 36 – Campos de ressonância (curva preta) e larguras de linha (curva vermelha) em função do ângulo ϕ no plano, para amostras fabricadas com diferentes espessuras.

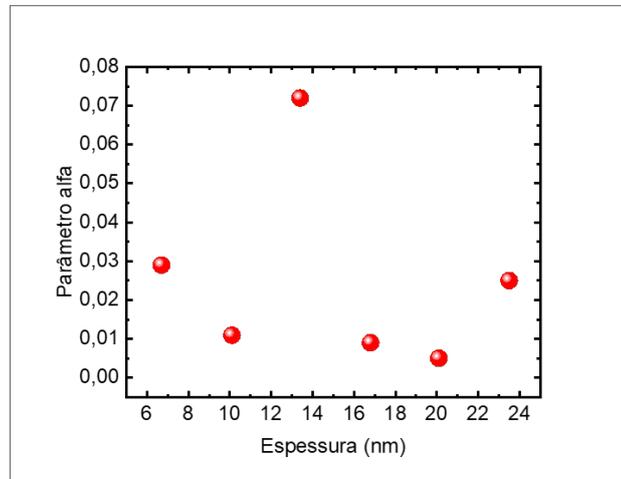


Fonte: Próprio autor

O parâmetro de amortecimento em função da espessura está descrito na figura 37.

É conhecido que o parâmetro de amortecimento total (α) da liga de FeCo depende da composição de Fe e Co na liga e claramente possui um mínimo na proporção de 25% Co e 75% Fe. A explicação para esse resultado tem sido atribuída ao fato de que nessa proporção a densidade de estados eletrônicos no nível de energia de *Fermi* é mínima (SCHOEN et al., 2016). Valores de parâmetros de amortecimento total < 0.0013 foram obtidos para $Fe_{75}Co_{25}$ crescidos sobre substrato de Si (EDWARDS; NEMBACH; SHAW, 2019). Valores próximos a estes também foram obtidos sobre outros substratos (CHENG et al., 2018). Como pode ser visto no gráfico mostrado na figura 37, o parâmetro de amortecimento está consideravelmente mais

Figura 37 – Parâmetro de amortecimento de Gilbert calculado numericamente para diferentes espessuras.



Fonte: Próprio autor

alto do que os valores reportados em outros trabalhos. Comparando com outros trabalhos (SCHOEN et al., 2016; EDWARDS; NEMBACH; SHAW, 2019; CHENG et al., 2018; LEE et al., 2017), entendemos que isso ocorre devido à forma com que o material foi crescido, sendo que o principal mecanismo de amortecimento da magnetização e, portanto, que contribui para o aumento do parâmetro de amortecimento, é o espalhamento de 2-mágnons (CHENG et al., 2018).

Para filmes finos homogêneos (sem microestrutura interna) a principal fonte de espalhamento de dois mágnons vem da superfície, que funciona como o espalhador que ajusta a conservação de momento dos mágnons espalhados. Para estes filmes, a dependência de α com a espessura t (se for primordialmente devido a 2 mágnons) é do tipo $1/t^2$ [2]. No caso dos nossos filmes, a fonte de espalhamento de 2-magnons deve ser a microestrutura colunar que se forma devido ao crescimento oblíquo. A figura 37 mostra claramente que o parâmetro alfa fica constante para todas as espessuras (exceto o ponto anômalo para $t = 13.5$ nm), confirmando a hipótese de que a estrutura colunar é o mecanismo prevalente de espalhamento de 2-mágnons. Embora o valor mínimo encontrado para o nosso trabalho foi de 0.005 ($t = 23.5$ nm, $\beta = 40^\circ$), os demais valores foram consideravelmente mais altos. Para filmes finos ferromagnéticos, é comum se observar uma tendência de aumento do parâmetro de amortecimento com a diminuição da espessura (AZZAWI; HINDMARCH; ATKINSON, 2017). Uma explicação que surgiu para esse fenômeno foi o espalhamento de elétrons de condução. Como sabemos, ferromagnéticos condutores tendem a possuir um maior amortecimento devido aos efeitos de espalhamento envolvendo os elétrons de condução quando comparados com os ferromagnetos

isolantes. Para observar os efeitos do espalhamento de elétrons na relaxação da magnetização, Ingvarsson *et al* (INGVARSSON *et al.*, 2002) fabricaram amostras de Permalloy com diferentes resistividades variando a espessura dos filmes e o ordenamento cristalino - produzindo filmes com baixo e alto ordenamento (deposição sob campo aplicado) - e verificaram que o parâmetro de amortecimento aumenta com o aumento da resistividade, a qual aumenta com a diminuição da espessura. Além disso, como a probabilidade de espalhamento de elétrons era menor para as estruturas com maior ordenamento, como deve ser, foi verificado que o amortecimento aumentou mais rapidamente para o estado desordenado à medida que a espessura diminuía a partir de um determinado valor. Azevedo *et al* utilizaram a teoria de espalhamento de 2-mágnons para explicar resultados experimentais de FMR em filmes de NiFe (Py). Como já bem fundamentado, a magnitude desse espalhamento aumenta rapidamente com a diminuição da espessura. Os resultados obtidos para as nossas amostras de $(Si/SiO_2)/Fe_{75}Co_{25}$ não mostram uma tendência linear do aumento de α com a espessura, embora seja observado pela figura 37 que amostras de maior espessura tendem a ter um fator α menor. É possível medir o parâmetro de amortecimento de Gilbert fazendo medidas da largura de linha no domínio da frequência, de modo que podemos usar a equação 2.28, $\Delta H = \Delta H_0 + \alpha\omega/\gamma$. Como já foi mencionado no capítulo 2, ΔH_0 é determinada apenas por mecanismos intrínsecos do material. No caso de haver uma contribuição do espalhamento de 2-mágnons para a largura de linha, frequentemente é usada a expressão análoga à equação 2.61, mas escrita em função da frequência (CHENG *et al.*, 2018):

$$\Delta H_{TMS} = \sum_{\langle x_i \rangle} \Gamma_{\langle x_i \rangle} \cos^2 [2(\phi_H - \phi_{\langle x_i \rangle})] \arcsin \left(\frac{\sqrt{\omega^2 + \left(\frac{\omega_0}{2}\right)^2 - \frac{\omega_0}{2}}}{\sqrt{\omega^2 + \left(\frac{\omega_0}{2}\right)^2 + \frac{\omega_0}{2}}} \right), \quad (4.2)$$

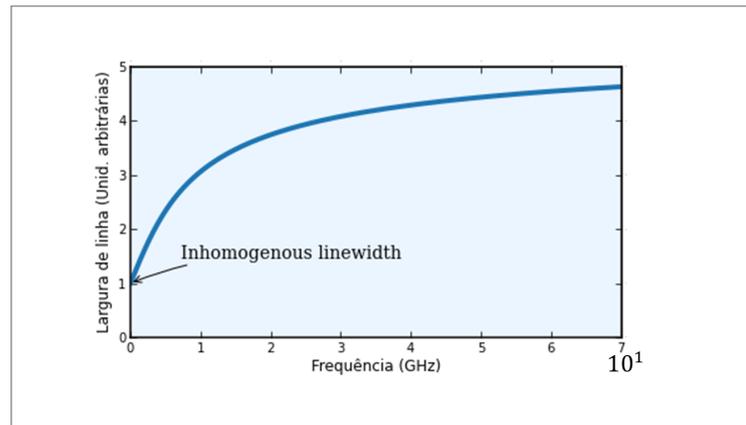
onde ω_0 é a frequência de ressonância do modo uniforme $k = 0$, $\phi_{\langle x_i \rangle}$ é o ângulo que descreve os eixos cristalográficos $\langle x_i \rangle$ e $\Gamma_{\langle x_i \rangle}$ é a magnitude do espalhamento de 2-mágnons ao longo desses eixos. Ao plotar o termo dependente da frequência ω mostrado na expressão para ΔH_{TMS} , obteremos um gráfico como o mostrado na figura 38:

Em contraste com a expressão linear 2.28, a largura de linha não mais decai linearmente com a diminuição da frequência.

O gráfico do fator g de Landé em função da espessura está mostrado na figura 39. A tendência de queda do fator g mostra que parte do momento orbital está passando a ser "suprimido".

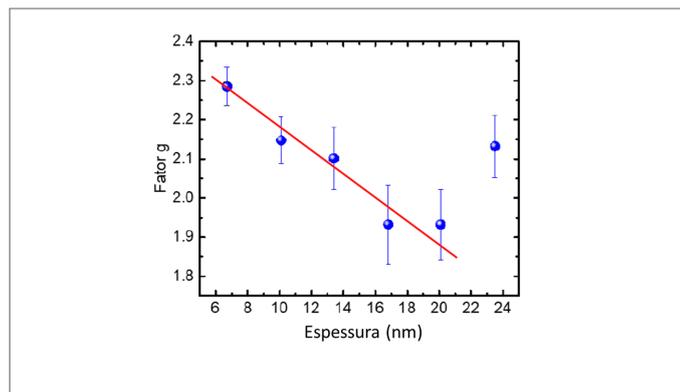
O gráfico referente à magnetização efetiva em função da espessura está mostrado na figura

Figura 38 – Contribuição do espalhamento de 2-mágnons para a largura de linha. A intersecção da curva com o eixo vertical é o que chamamos de "*Inhomogeneous linewidth*". Note que o eixo horizontal varia de 0 a 70 GHz.



Fonte: Próprio autor

Figura 39 – Fator g em função da espessura dos filmes de $Fe_{75}Co_{25}$. A linha sólida é um guia para os olhos.

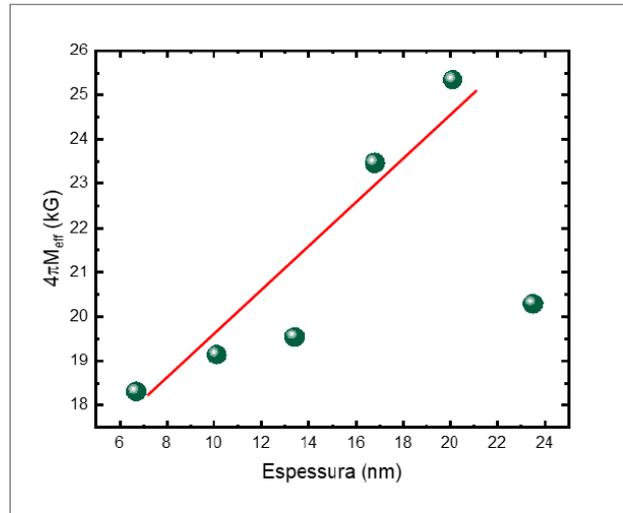


Fonte: Próprio autor

40. Esperaríamos que a magnetização efetiva aumentasse com a espessura do filme, mas essa tendência é seguida até o filme com espessura de 20.1 nm. A diminuição da magnetização efetiva para 23.5 nm não foi entendida. Ela pode ser atribuída à algum erro, embora o ajuste dos pontos ficaram iguais ou melhores que os demais (ver figura 36). O valor de $4\pi M_{eff}$, que é interpretado como um campo efetivo, uma vez que é a diferença entre o valor de saturação $4\pi M_S$ (2.46 kG para $MgO/Fe_{75}Co_{25}$, de acordo com (LEE et al., 2017)). e o campo de anisotropia fora do plano H_{\perp} , deveria aumentar e saturar para um determinado valor, igual ao valor do material em sua forma *bulk*.

Também plotamos gráficos do campo de anisotropia uniaxial em função da espessura dos filmes de $Fe_{75}Co_{25}$ (ver figura 41). A mudança abrupta do valor de H_u entre as espessuras de 10.1 nm e 13.4 nm não foi compreendida e precisaria ser melhor investigada fabricando amostras com espessuras intermediárias. Como o valor de 2.46 kG se refere ao valor da liga

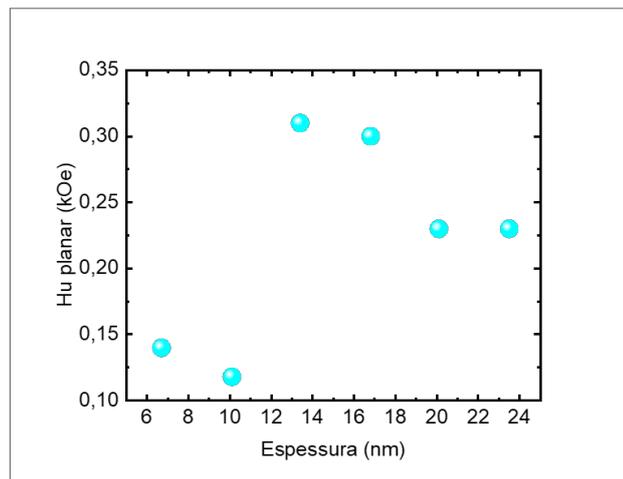
Figura 40 – Magnetização efetiva em função da espessura dos filmes de $Fe_{75}Co_{25}$. A linha sólida é um guia para os olhos.



Fonte: Próprio autor

de $Fe_{75}Co_{25}$ crescida por *sputtering* normal ($\beta = 0$), então não é possível garantir que esse valor não seja alterado pelo crescimento oblíquo, uma vez que a magnetização é a densidade de momento magnético e a microestrutura colunar pode possuir espaços vazios, implicando num maior volume total.

Figura 41 – Campo de anisotropia uniaxial no plano para diferentes espessuras do filme de $Fe_{75}Co_{25}$. $\beta = 40^\circ$.

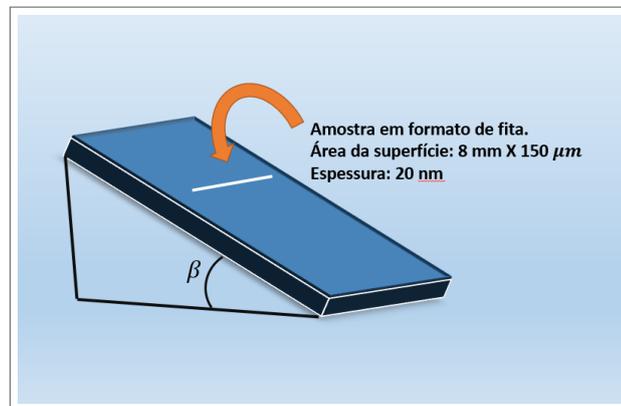


Fonte: Próprio autor

4.4 MEDIDAS DE MAGNETORRESISTÊNCIA ANISOTRÓPICA (AMR)

Realizamos uma investigação muito preliminar da magnetorresistência anisotrópica dos filmes de $Fe_{75}Co_{25}$ com o objetivo de entender o efeito do ângulo de crescimento oblíquo no transporte magnético. Para tanto, fabricamos amostras de $Fe_{75}Co_{25}$ utilizando a técnica de *sputtering* oblíquo com ângulo $\beta = 45^\circ$, conforme mostra a figura 42. Neste caso usamos máscaras de sombra vazadas com dimensões de 0,15 mm x 8 mm. Portanto, são fitas com razão de aspecto $l/w = 53$.

Figura 42 – Configuração utilizada para fabricar as amostras utilizadas para as medidas de AMR. Nesse caso, a anisotropia de forma e uniaxial estão na mesma direção, ao longo da fita.

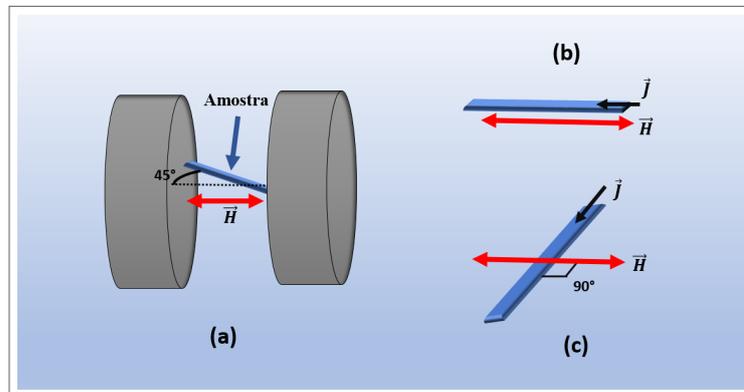


Fonte: Próprio autor

Realizamos medidas de AMR para as orientações de campo externamente aplicado paralelo e perpendicular à corrente, e também para uma orientação formando 45° entre o campo e a corrente (ver figura 43). As medidas feitas com campo perpendicular e paralelo à direção da tira estão dispostas na figura ???. As medidas feitas a 45° estão dispostas na figura ???. Todas elas foram realizadas em temperatura ambiente.

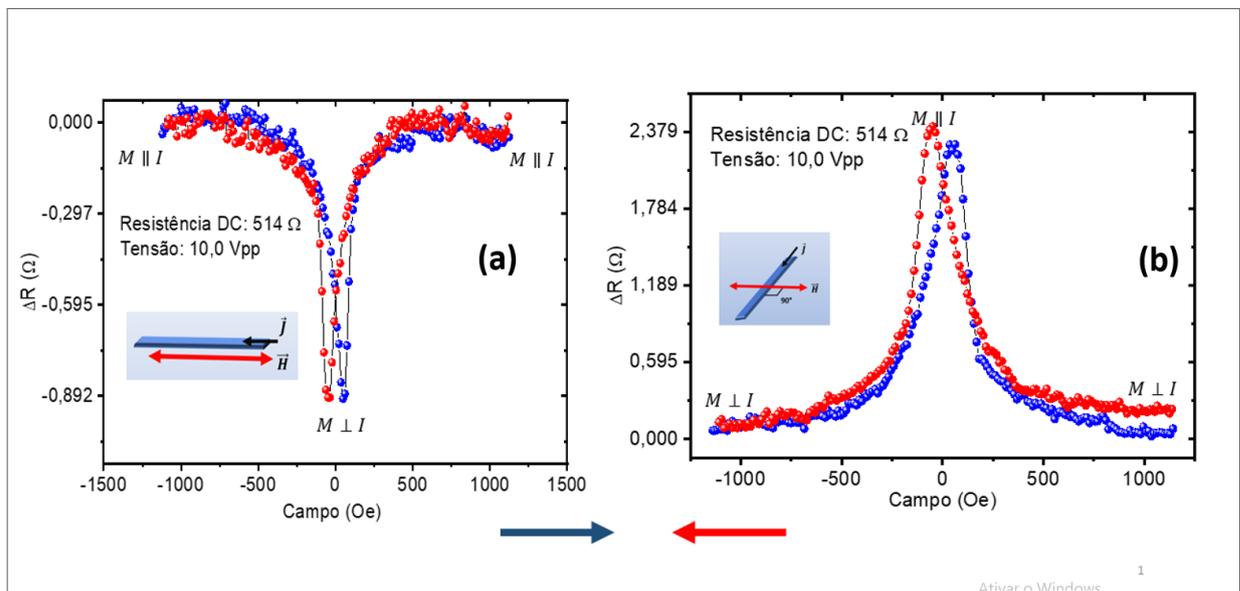
Para interpretar os resultados da figura 44, usaremos a expressão para a resistência AMR, equação 2.88. Observando a figura 44 (a), notamos que quando o campo magnético está alto, o vetor magnetização deve ficar na direção do campo. Então temos que $\theta = 0$ e, portanto, $R(\theta)$ é máximo. Quando o campo tende a zero, a magnetização não mais tenderá a ficar na direção do campo, de modo que $\theta \neq 0$ e, portanto, $R(\theta)$ é mínimo. Contudo, como a direção de fácil magnetização está ao longo da tira, então o fato de a magnetização não está mais alinhada ao longo do eixo de fácil magnetização provavelmente revela que deve ter ocorrido a quebra de domínios no material ferromagnético, conforme também mostrado em (RIJKS et al., 1997).

Figura 43 – Configurações usadas para as medidas de AMR. Fizemos medidas com campo fazendo ângulo de 45° em relação à direção da fita (figura a), ao longo da fita (figura b), numa direção perpendicular à direção da fita (figura c). As setas vermelhas indicam o sentido do campo magnético externamente aplicado. Iniciamos as medidas com a magnetização saturada para a direita. Em seguida diminuimos monotonicamente o valor da campo até inverter o seu sentido, levando à saturação da magnetização para a esquerda. Todas as medidas foram realizadas com o campo no plano da amostra.



Fonte: Próprio autor

Figura 44 – Medidas de AMR para o filme de $Fe_{75}Co_{25}$ (20 nm) em formato de tira, crescido sob *sputtering* oblíquo com ângulo $\beta = 45^\circ$.



Fonte: Próprio autor

No caso da figura 44 (b), quando o campo magnético está alto, o vetor de magnetização deve ficar na direção perpendicular à direção da fita (que é a direção do eixo de difícil magnetização). Assim, temos que $\theta \approx \pi/2$ e, portanto, $R(\theta)$ é mínimo. Quando o campo tende a zero, a direção do vetor magnetização deverá ficar em torno do eixo de fácil magnetização (ao longo da fita), de modo que $\theta \approx 0$ e, portanto, $R(\theta)$ é máximo.

Para realização de medidas de magnetorresistência anisotrópica (rever a figura 21), esta-

belecemos a frequência do sinal de saída do gerador em 1234,0 Hz. Como a potência elétrica dissipada pela amostra aumenta com a corrente ($P = Ri^2$), então pode ser difícil evitar o aquecimento da amostra (efeito joule) e, portanto, pode-se por vezes obter curvas que possuem algum tipo de *drift* e não voltam para o mesmo valor no final do ciclo de medida e são inclinadas. Para tanto, as medidas foram feitas aproximadamente 30 minutos após aplicar a tensão na amostra, de modo a termos um estado estacionário de temperatura.

Como visto no capítulo 3, o efeito responsável pela mudança da resistência nas nossas amostras é o efeito AMR. Como é um efeito gerado pelo espalhamento de elétrons de condução devido à interação deles com a magnetização, então uma abordagem utilizando a energia livre magnética pode ser feita. Para as medidas da figura 44, notamos a diferença na velocidade da mudança de magnetização quando o campo magnético varia: para o campo se aproximando de 0 por valores menores que 0 (curva azul - ida), existem mais pontos coletados, enquanto que quando o campo se afasta de 0 a quantidade de pontos é substancialmente menor. O efeito inverso ocorre para o caminho de volta - curva vermelha, isto é, a magnetização muda mais rapidamente quando o campo magnético está se aproximando de 0 por valores maiores que 0. O comportamento do efeito de AMR para estas estruturas precisa ser melhor investigado de maneira sistemática, de modo a podermos obter conclusões importantes acerca do transporte magnético nessas estruturas.

5 CONCLUSÃO E PERSPECTIVAS

Nesta dissertação eu tive oportunidade de aprender bastante sobre processos de crescimento de filmes magnéticos bem como sobre as caracterizações estruturais e magnéticas. A ideia inicial era investigar os efeitos de relaxação magnética nos filmes de $Fe_{75}Co_{25}$, que foram recentemente reportados na literatura como de baixa dissipação. A literatura aponta que o amortecimento da magnetização nesses filmes depende de muitos parâmetros físicos, tais como: condições e técnicas de deposição, do tipo de camada *buffer*, tipo de substrato, espessura, etc. Crescemos várias séries de filmes e investigamos suas propriedades magnéticas utilizando a técnica de FMR, onde medimos a dependência angular do campo de ressonância e da largura de linha, para cada amostra num total de cerca de 25 amostras.

Crescemos filmes com os substratos inclinados de um ângulo β em relação à direção de fluxo dos átomos ejetados pelo alvo. Os filmes crescidos com $\beta = 0$ graus, em função da espessura (t) mostram um mínimo da largura de linha para $t = 4$ nm. A variação da largura de linha com t merece uma investigação detalhada, pois estamos supondo que o filme cresce sob estresse (expansivo ou compressivo) e à medida que relaxa ocorre a acomodação da rede. Para essa investigação teremos que usar microscopia eletrônica de alta resolução e difratometria de Raios-X. Os filmes crescidos em função do ângulo β mostraram o aparecimento de um forte campo de anisotropia uniaxial no plano da amostra, que aumenta de forma exponencial com β . Crescemos uma série de filmes com β fixo em 40° e variamos a espessura. Tivemos resultados comparáveis com os valores encontrados na literatura (como o aumento de $4\pi M_{eff}$ com a espessura, o campo de anisotropia uniaxial H_u e o fator g), enquanto outros resultados não puderam ser bem explicados, como os valores altos do parâmetro de amortecimento α para a espessura de 14.3 nm ($\beta = 40^\circ$) e o comportamento não esperado dos valores do fator g , da magnetização $4\pi M_{eff}$ e do campo de anisotropia H_\perp para os filmes crescidos com $\beta = 40^\circ$ com as maiores espessuras (23.5 nm).

Também fizemos uma investigação preliminar das propriedades de transporte desses filmes utilizando medidas de magnetorresistência anisotrópica. A ideia é que a microestrutura colunar, induzida pelo crescimento oblíquo, deve de alguma forma modificar as propriedades de transporte magnético. Como esse foi um estudo muito preliminar, teremos que continuar fazendo a comparação com filmes crescidos em diferentes condições experimentais. As perspectivas de continuação desse trabalho são: (i) realizar medidas de FMR em frequências maiores para

detectar o campo de ressonância em todos os ângulos no plano; (ii) investigar a relaxação dos filmes crescidos sobre diferentes substratos. (iii) Dependência da relaxação com o tipo de *buffer layer*; (iv) Papel das microestruturas induzidas pelo crescimento nas medidas de magnetorresistência. (v) Um estudo por AFM (Microscopia de força atômica) para verificar a superfície das amostras.

REFERÊNCIAS

- ALVAREZ, R.; LOPEZ-SANTOS, C.; PARRA-BARRANCO, J.; RICO, V.; BARRANCO, A.; COTRINO, J.; GONZALEZ-ELIPE, A. R.; PALMERO, A. Nanocolumnar growth of thin films deposited at oblique angles: Beyond the tangent rule. *Journal of Vacuum Science & Technology B, Nanotechnology and Microelectronics: Materials, Processing, Measurement, and Phenomena*, American Vacuum Society, v. 32, n. 4, p. 041802, 2014.
- ARIAS, R.; MILLS, D. Extrinsic contributions to the ferromagnetic resonance response of ultrathin films. *Physical review B*, APS, v. 60, n. 10, p. 7395, 1999.
- AZZAWI, S.; HINDMARCH, A.; ATKINSON, D. Magnetic damping phenomena in ferromagnetic thin-films and multilayers. *Journal of Physics D: Applied Physics*, IOP Publishing, v. 50, n. 47, p. 473001, 2017.
- BARMAN, A.; SINHA, J. *Spin dynamics and damping in ferromagnetic thin films and nanostructures*. [S.l.]: Springer, 2018.
- BARRANCO, A.; BORRAS, A.; GONZALEZ-ELIPE, A. R.; PALMERO, A. Perspectives on oblique angle deposition of thin films: From fundamentals to devices. *Progress in Materials Science*, Elsevier, v. 76, p. 59–153, 2016.
- BLOEMBERGEN, N. On the ferromagnetic resonance in nickel and supermalloy. *Physical Review*, APS, v. 78, n. 5, p. 572, 1950.
- CHENG, Y.; LEE, A. J.; BRANGHAM, J. T.; WHITE, S. P.; RUANE, W. T.; HAMMEL, P. C.; YANG, F. Thickness and angular dependent ferromagnetic resonance of ultra-low damping $\text{Co}_{25}\text{Fe}_{75}$ epitaxial films. *Applied Physics Letters*, AIP Publishing LLC, v. 113, n. 26, p. 262403, 2018.
- DAMON, R. W.; ESHBACH, J. Magnetostatic modes of a ferromagnet slab. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, Elsevier, v. 19, n. 3-4, p. 308–320, 1961.
- EDWARDS, E. R.; NEMBACH, H. T.; SHAW, J. M. $\text{Co}_{25}\text{Fe}_{75}$ thin films with ultralow total damping of ferromagnetic resonance. *Physical Review Applied*, APS, v. 11, n. 5, p. 054036, 2019.
- GETZLAFF, M. *Fundamentals of magnetism*. [S.l.]: Springer Science & Business Media, 2007.
- GILBERT, T. L. A lagrangian formulation of the gyromagnetic equation of the magnetization field. *Phys. Rev.*, v. 100, p. 1243, 1955.
- GILBERT, T. L. A phenomenological theory of damping in ferromagnetic materials. *IEEE transactions on magnetics*, IEEE, v. 40, n. 6, p. 3443–3449, 2004.
- GONSALVES, I. N. *Estudo da dinâmica da magnetização em filmes finos de dissulfeto de tungstênio*. Master's Thesis (Master's Thesis), 2019.
- HOSHI, Y.; SUZUKI, E.; NAOE, M. Uniaxial magnetic anisotropy of iron thin films deposited by oblique incidence of deposition particles. *Journal of applied physics*, American Institute of Physics, v. 79, n. 8, p. 4945–4947, 1996.

- HUAI, Y. et al. Spin-transfer torque mram (stt-mram): Challenges and prospects. *AAPPS bulletin*, v. 18, n. 6, p. 33–40, 2008.
- INGVARSSON, S.; RITCHIE, L.; LIU, X.; XIAO, G.; SLONCZEWSKI, J.; TROUILLOUD, P.; KOCH, R. Role of electron scattering in the magnetization relaxation of thin ni 81 fe 19 films. *Physical Review B*, APS, v. 66, n. 21, p. 214416, 2002.
- JACKSON, J. D. *Classical electrodynamics*. [S.l.]: American Association of Physics Teachers, 1999.
- JÚNIOR, J. H. d. S. Fenômenos de spintrônica e magnônica em materiais magnéticos. Universidade Federal de Pernambuco, 2018.
- KNORR, T.; HOFFMAN, R. Dependence of geometric magnetic anisotropy in thin iron films. *Physical Review*, APS, v. 113, n. 4, p. 1039, 1959.
- KRAUSE, K. M.; TASCHUK, M. T.; HARRIS, K. D.; RIDER, D. A.; WAKEFIELD, N. G.; SIT, J. C.; BURIAK, J. M.; THOMMES, M.; BRETT, M. J. Surface area characterization of obliquely deposited metal oxide nanostructured thin films. *Langmuir*, ACS Publications, v. 26, n. 6, p. 4368–4376, 2010.
- LANDAU, L.; LIFSHITZ, E. On the theory of the dispersion of magnetic permeability in ferromagnetic bodies. In: *Perspectives in Theoretical Physics*. [S.l.]: Elsevier, 1992. p. 51–65.
- LEE, A. J.; BRANGHAM, J. T.; CHENG, Y.; WHITE, S. P.; RUANE, W. T.; ESSER, B. D.; MCCOMB, D. W.; HAMMEL, P. C.; YANG, F. Metallic ferromagnetic films with magnetic damping under 1.4×10^{-3} . *Nature communications*, Nature Publishing Group, v. 8, n. 1, p. 1–6, 2017.
- MCMICHAEL, R. D.; LEE, C.; BONEVICH, J. E.; CHEN, P.; MILLER, W.; JR, W. F. E. Strong anisotropy in thin magnetic films deposited on obliquely sputtered ta underlayers. *Journal of Applied Physics*, American Institute of Physics, v. 88, n. 9, p. 5296–5299, 2000.
- MENDES, J. B. S. *Investigação de relaxação e anisotropias magnéticas em filmes obliquamente depositados*. Master's Thesis (Master's Thesis) — Universidade Federal de Pernambuco, 2009.
- MENDES, J. B. S.; VILELA-LEAO, L. H.; REZENDE, S. M.; AZEVEDO, A. Possible interplay between intrinsic and extrinsic ferromagnetic damping mechanisms. *IEEE transactions on magnetics*, IEEE, v. 46, n. 6, p. 2293–2296, 2010.
- MEWES, C. K.; MEWES, T. Relaxation in magnetic materials for spintronics. *Handbook of Nanomagnetism: Applications and Tools*, Pan Stanford, p. 71–95, 2015.
- MICHIJIMA, M.; HAYASHI, H.; KYOHO, M.; NAKABAYASHI, T.; KOMODA, T.; KIRA, T. Oblique-incidence anisotropy in very thin ni-fe films. *IEEE transactions on magnetics*, IEEE, v. 35, n. 5, p. 3442–3444, 1999.
- NÉEL, L. Anisotropie magnétique superficielle et surstructures d'orientation. *Journal de Physique et le Radium*, Revue Générale de l'Electricité, v. 15, n. 4, p. 225–239, 1954.
- REZENDE, S. M. *Fundamentals of magnonics*. [S.l.]: Springer, 2020.

RIJKS, T. G.; LENCZOWSKI, S.; COEHOORN, R.; JONGE, W. D. In-plane and out-of-plane anisotropic magnetoresistance in ni 80 fe 20 thin films. *Physical Review B*, APS, v. 56, n. 1, p. 362, 1997.

SCHOEN, M. A.; THONIG, D.; SCHNEIDER, M. L.; SILVA, T.; NEMBACH, H. T.; ERIKSSON, O.; KARIS, O.; SHAW, J. M. Ultra-low magnetic damping of a metallic ferromagnet. *Nature Physics*, Nature Publishing Group, v. 12, n. 9, p. 839–842, 2016.

SMIT, J. Ferromagnetic resonance absorption in bafe_< 12> o_< 19>, a highly anisotropic crystal. *Philips Res. Rep.*, v. 10, p. 113–130, 1955.

SMITH, D. O. Anisotropy in permalloy films. *Journal of applied physics*, American Institute of Physics, v. 30, n. 4, p. S264–S265, 1959.

SUHL, H. Ferromagnetic resonance in nickel ferrite between one and two kilomegacycles. *Physical Review*, APS, v. 97, n. 2, p. 555, 1955.

THOMSON, W. Xix. on the electro-dynamic qualities of metals:—effects of magnetization on the electric conductivity of nickel and of iron. *Proceedings of the Royal Society of London*, The Royal Society London, n. 8, p. 546–550, 1857.

UMLOR, M. Uniaxial magnetic anisotropy in cobalt films induced by oblique deposition of an ultrathin cobalt underlayer. *Applied Physics Letters*, American Institute of Physics, v. 87, n. 8, p. 082505, 2005.

WALKER, L. Resonant modes of ferromagnetic spheroids. *Journal of Applied Physics*, American Institute of Physics, v. 29, n. 3, p. 318–323, 1958.

WASA, K.; HAYAKAWA, S. Low pressure sputtering system of the magnetron type. *Review of Scientific Instruments*, American Institute of Physics, v. 40, n. 5, p. 693–697, 1969.

WASA, K.; KANNO, I.; KOTERA, H. *Handbook of sputter deposition technology: fundamentals and applications for functional thin films, nano-materials and MEMS*. [S.l.]: William Andrew, 2012.

WHITE, R. M.; WHITE, R. M.; BAYNE, B. *Quantum theory of magnetism*. [S.l.]: Springer, 1983.

YU, M.; QIU, H.; CHEN, X.; WU, P.; TIAN, Y. Comparative study of the characteristics of ni films deposited on sio₂/si (100) by oblique-angle sputtering and conventional sputtering. *Thin Solid Films*, Elsevier, v. 516, n. 21, p. 7903–7909, 2008.

ZHU, H.; CAO, W.; LARSEN, G. K.; TOOLE, R.; ZHAO, Y. Tilting angle of nanocolumnar films fabricated by oblique angle deposition. *Journal of Vacuum Science & Technology B, Nanotechnology and Microelectronics: Materials, Processing, Measurement, and Phenomena*, American Vacuum Society, v. 30, n. 3, p. 030606, 2012.

ANEXO A – MEDIDAS DE REFLETIVIDADE PARA AMOSTRAS
FABRICADAS COM DIFERENTES ÂNGULOS DE CRESCIMENTO OBLÍQUO β

