UNIVERSIDADE DO ESTADO DO RIO GRANDE DO NORTE PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA MESTRADO EM FÍSICA

FRANCISCO IRANILDO FERREIRA DO NASCIMENTO
HISTERESE TÉRMICA EM BICAMADAS FM/AFM COMPENSADAS

MOSSORÓ/RN MARÇO/2010

FRANCISCO IRANILDO FERREIRA DO NASCIMENTO

HISTERESE TÉRMICA EM BICAMADAS FM/AFM COMPENSADAS

Dissertação apresentada ao Mestrado em Física da Universidade do Estado do Rio Grande do Norte, como requisito parcial para obtenção do título de Mestre em Física.

ORIENTADORA: Prof^a. Dr^a. Ana Lúcia Dantas.

FRANCISCO IRANILDO FERREIRA DO NASCIMENTO

HISTERESE TÉRMICA EM BICAMADAS FM/AFM COMPENSADAS

Dissertação apresentada ao Mestrado em Física da Universidade do Estado do Rio Grande do Norte, como requisito parcial para obtenção do título de Mestre em Física.

Aprovado em <u>22</u> / <u>03</u> / <u>2010</u>

Banca Examinadora

Orientadora Prof^a. Dr^a. Ana Lúcia Dantas UERN

Examinador Externo Prof. Dr. Artur da Silva Carriço UFRN

Examinador Interno Prof. Dr. Vamberto Dias de Mello UERN

No princípio criou Deus o céu e a terra.

A terra, porém, estava vazia e nua; e as trevas cobriam a face do abismo, e o Espírito de Deus era levado por cima das águas. Disse Deus: "Faça-se a luz!". Fez-se a luz. E viu Deus que a luz era boa; e dividiu a luz, das trevas. E chamou à luz dia, e às trevas noite, e da tarde e da manhã se fez o dia primeiro.

(Gênese, I, 1-6)

AGRADECIMENTOS

A Deus.

À minha família, pelo suporte, incentivo e compreensão, fortalecendo-me com palavras de estímulo e fazendo-me seguir até o final.

Em especial aos meus pais, Fernando José de Souza e Maria de Fátima de Souza, cujos exemplos de trabalho, educação e perseverança são minha maior inspiração.

À minha irmã, Fátima Maria de Souza Rebouças, não apenas por ser minha irmã, porque isso bastaria, mas por ela sempre ter feito questão de ser muito mais. Uma segunda mãe a quem só tenho a agradecer pela dedicação e carinho que me tem.

Aos meus irmãos, José Fernandes de Souza Rebouças, José Francinésio de Souza Rebouças, Francinésia Maria de Souza Rebouças e Maria José Rebouças Marques, e a minha tia Maria José Rebouças de Carvalho, por sempre estarem juntos a mim nesta fase tão importante de minha vida.

Meus tios ausentes, José Maurilo Rebouças, Alfredo Francisco Marques, Maria Dalva Rebouças Marques, e à minha avó Luduvina Carvalho do Rosário (in memorian), pois mesmo não estando presentes fisicamente, acredito que olham por mim.

Ao Ir. Antônio de Araújo Aguiar e ao Ir. Eduardo Régis pelos exemplos de vida e dedicação profissional.

A Aureliano Gomes de Carvalho, família e amigos pelo apoio no primeiro ano desse curso.

À minha orientadora, a Prof. Ana Lúcia Dantas, cuja integridade, humildade e dedicação profissional são exemplos a serem seguidos, pelo incentivo e simplicidade.

Ao Prof. Artur da Silva Carriço, pelo incentivo e exemplo profissional.

Ao meu Prof. Vamberto Dias Mello, que foi muito importante no início do curso, orientandome e motivando-me a seguir sempre em frente.

Aos meus amigos, Plínio Matos, Nonato Almeida, Arilson Galvão, Diogo Galvão, Daniel Galvão, Ênio Alves e Nyladih Souza, pelo apoio e companheirismo nos momentos de que necessitei.

Aos colegas do laboratório LUMEN - Campus Avançado da UERN em Natal, pela amizade e agradável convivência durante a minha permanência.

A todos os componentes do grupo de magnetismo e materiais magnéticos da UERN e da UFRN.

A todos os colegas da pós-graduação, pelas conversas nas quais partilhamos nossos conhecimentos e aprendemos física.

Aos professores e colegas do Departamento de Física da UERN - Mossoró, pela minha formação acadêmica.

A Gercleide Gomes da Silva, pela agradável companhia.

À UERN, por me proporcionar um curso de pós-graduação.

À CAPES, pelo apoio financeiro.

Por fim, a todos que, de uma forma ou de outra, contribuíram nesta conquista.

RESUMO

Histereses térmicas têm sido recentemente estudadas em um número significativo de sistemas nanoestruturados. O considerável interesse é voltado, principalmente, para aplicações magnetoeletrônicas, já que a pequena diferença de energia entre dois estados metaestáveis pode levar o sistema a uma bi-estabilidade térmica. Apresentamos um estudo teórico de histerese térmica de uma bicamada magnética consistindo em filme ferromagnético, com anisotropia cúbica cristalina, acoplado a um substrato antiferromagnético compensado. A histerese térmica ocorre se o intervalo de temperatura inclui a temperatura de reorientação (TR) do filme ferromagnético, abaixo da qual a frustração do acoplamento através da interface promove uma rotação de 90° na magnetização do FM e uma pequena variação angular nos spins do AFM próximos à interface. Consideramos um ciclo térmico, aquecimento e resfriamento, em um intervalo de temperatura que vai desde baixas temperaturas até temperaturas acima da temperatura de Néel do AFM, na presença de um campo externo aplicado ao longo do eixo fácil do AFM. A anisotropia da camada ferromagnética estabiliza o estado reorientado (IRS), em temperaturas abaixo de TR, e o estado alinhado com o campo (AS) em temperaturas acima. Existe um intervalo de temperatura, onde ambos os estados são estáveis. No processo de resfriamento, a transição para o estado reorientado acontece em temperaturas abaixo de TR, ao passo que no processo de aquecimento, a transição do estado reorientado para o estado alinhado acontece em temperaturas acima de TR. Nossos resultados indicam que, para um filme de12nm de Fe sobre o substrato MnF₂(110), a largura da histerese pode ser controlada pela intensidade do campo externo aplicado, com valores de 43K para um campo de 110Oe e 14K para campos de 2100e. Para filmes de 3nm de Fe sobre o substrato FeF₂(110), a largura da histerese é de 23 K em 1100e e 13 K para o campo de 300 Oe. Discutimos como a espessura do filme de ferro afeta o campo de tunelamento da largura da histerese térmica e também como o laço térmico pode ser usado para identificar a natureza, ferromagnética ou antiferromagnética, da energia de troca da interface.

Palavras-Chave: Histereses térmicas. Interface compensada. Bicamadas FM/AFM.

ABSTRACT

Thermal hysteresis have been recently studied in number significant of nanostructureds systems. The consider interest is turned, mainly, for magnetoelectronics aplications since a little difference of energy between two metastables states can conduct the system at one thermal bi-stability. We report a theoretical investigation of the thermal hysteresis of a magnetic bilayer consisting of a four-fold anisotropy ferromagnetic (FM) film exchange coupled with a two-sublattice compensated antiferromagnetic (AFM) substrate. The thermal hysteresis occurs if the temperature interval includes the reorientation transition temperature (TR), below which the frustration of the interface exchange coupling leads to a 90° rotation of the magnetization of the ferromagnetic layer and a small transverse canting of the substrate spins near the interface. We consider a temperature interval bounded by the Néel temperature, and calculate the heating and cooling curves in the presence of an external field along the easy axis of the AFM substrate. The anisotropy of the ferromagnetic layer stabilizes the reoriented state (IRS) below the reorientation temperature and the aligned state (AS), with the ferromagnetic layer magnetization along the external field direction, above the reorientation temperature. There is a temperature interval where both states are stable, and by crossing the TR from above, in the cooling branch of the thermal loop, or from below, in the heating branch, the transitions between the AS and IRS occur at different temperatures. For a 12nm thick iron film on a MnF₂(110) substrate, the temperature width of the thermal hysteresis can be tuned by the external magnetic field, with values of 43 K for a field of 110 Oe and of 14 K near 2100e. For a 3nm thick Fe film on an FeF₂(110) substrate, the thermal hysteresis width is 23 K at 110Oe and 13 K for a field of 300Oe. We discuss how the thickness of the iron film affects the field tuning of the thermal hysteresis width and also how thermal loops may be used to identify the nature, either ferromagnetic or antiferromagnetic, of the interface exchange energy.

Keywords: Thermal hysteresis, Compensated interface, FM/AFM bilayers.

LISTA DE FIGURAS

1.	A relação entre a variação da resistência eletrica e o campo magnético externo aplicado sobre uma multicamada composta por Fe/Cr. (Fig. 2 (1))
2.	Dispositivo de gravação magnética. (A) Multicamada magnética que compõe o sensor de leitura. (B) Ampliação esquemática do meio de gravação
3.	Esquema de gravação magnética termicamente assistida. (Fig. 4.1 (2))
4.	Arranjo de nanopartículas ferromagnéticas (FM) crescidas sobre um substrato antiferromagnético (AFM). Em evidência, o fluxo de campo magnético devido ao estado de magnetização da nanopartícula
5.	Curvas de histerese magnética, a 77K, de partículas de Co revestidas de CoO. A curva de linhas sólidas ocorre quando o material é resfriado a um campo de 10kOe enquanto que a de linhas pontilhadas ocorre na ausência de campo magnético externo. (Fig. 1 do artigo (3))
6.	Observação direta do alinhamento de spins ferromagnéticos por spins antiferromagnéticos
7.	Esquema de uma bicamada FM/AFM compensada
8.	A figura A) representa a estrutura cristalina do substrato estando o plano (110) sombreado porque é nele que o substrato é crescido. A figura B) representa uma idealização de como é o empilhamento de planos atômicos(110) mostrando alguns de seus spins. O spin central aparece com oito spins da sub-rede oposta como sendo seus primeiros vizinhos. (Fig. 2.3 da Ref. (4))
9.	Ângulos entre os spins e o eixo fácil do filme AFM. A abscissa enumera os planos atômicos do AFM a partir da interface. As curvas preta e azul representam as bicamadas Fe/FeF_2 e Fe/MnF_2 , respectivamente. (Fig. 2.6 da Ref. (4)

10.	Curvas de nível da energia magnética, ε , comparada com a energia magnética do estado uniforme para uma bicamada Fe(5)/FeF2(11). Θ_{FM} mede o ângulo entre os momentos magnéticos do Fe e o eixo fácil (eixo z), e J_{int}/J_{AFM} é a intensidade do acoplamento de interface em unidades do acoplamento de troca intrínseco do Fe/FeF ₂ . (Fig. 2.7 da Ref. (4))
11.	Curvas de nível da energia magnética, ε , comparada com a energia do estado uniforme para uma bicamada Fe(10)/FeF ₂ (11). (Fig. 2.8 da Ref. (4))
12.	Energia magnética comparada com a energia do estado uniforme, ε da bicamada (110)Fe/FeF ₂ para diferentes espessuras do filme FM. (Fig. 2.9 da Ref. (4))
13.	Energia magnética comparada com a energia do estado uniforme, ε , de bicamadas com diferentes substratos AFM. O número de planos dos filmes são $t_{FM}=10$ e $t_{AFM}=11$. (Fig. 2.10 da Ref. (4))
14.	Curva de nível da energia magnética comparada com a energia do estado não-acoplado, ε , da bicamada (10)Fe/(11)FeF ₂ compensada. O filme FM apresenta anisotropia com simetria $C-4$. (Fig. 2.11 da Ref. (4))
15.	Energia magnética comparada com a energia do estado não-acoplado, ε , da bicamada Fe/FeF $_2$ compensada. O filme FM tem anisotropia cristalina com simetria $C-4$ e sua espessura (em número de planos atômicos) está indicada em cada curva. (Fig. 2.12 da Ref. (4))
16.	Visão esquemática dos spins dos materiais na ausência (A) e na presença (B) de acoplamento entre filmes. (Fig. 2.13 da Ref. (4))
17.	Acoplamento de interface limiar em função do número de planos do filme FM. (Fig. 2.14 da Ref. (4))
18.	(a) Calor específico de uma bicamada de (110)Fe/FeF ₂ , com $N_{AFM} = 10$ e $N_{FM} = 11$. Os números nas curvas indicam os valores da troca de interface em unidades do campo de troca intrínseco do antiferromagnético (J_{AFM}). A temperatura é apresentada em

	energia de troca do antiferromagnético. Estados magnéticos próximos da temperatura
	de reorientação para (b) $J_{INT}=0.4J_{AFM}$ e (c) $J_{INT}=J_{AFM}$. (Fig. 1 do artigo
	(5))
19.	(a) Calor específico de uma bicamada de (110)Fe/FeF ₂ com N_{AFM} = 10 e N_{FM} = 5, para (a) T = 0.9 T_N e (b) T = 0.8 T_N . A constante de troca através da interface é dada por J_{INT} = J_{AFM} . O campo externo é apresentado em unidades do campo de troca AFM e o calor específico é mostrado em unidades da energia de troca do AFM. As duas curvas em cada figura correspondem ao acoplamento de interface J_{INT} > 0 e J_{INT} < 0. Note que
	para acoplamento ferromagnético a transição ocorre para pequenos valores de campo externo. (Fig. (3) do artigo (5))
20.	Calor específico de uma bicamada de (110)Fe/FeF ₂ com N_{AFM} = 10 e N_{FM} = 10, para (a) $T = 0.6T_N$ e (b) $T = 0.8T_N$. A constante de troca através da interface é $J_{INT} = J_{AFM}$. O campo externo é apresentado em unidades do campo de troca AFM e o calor específico é mostrado em unidades da energia de troca do AFM. As duas curvas em cada figura correspondem ao acoplamento de interface ferromagnético e antiferromagnético. (Fig. (4) do artigo (5))
21.	Calor específico de uma bicamada de (110)Fe/FeF ₂ com N_{AFM} = 11 e N_{FM} = 10. A temperatura é apresentada em unidades da temperatura de Néel e o calor específico é mostrado em unidades de E_{exch}/T_N . Um campo externo H = 0.007 é usado e as curvas são para N_{FM} = 5, 10, 20. Para N_{FM} = 20 não são vistos picos no calor específico. (Fig. (5) do artigo (5))
22.	Calor específico de uma bicamada de (110)Fe/FeF ₂ com $N_{AFM} = 11$ e $N_{FM} = 10$. Os números nas curvas indicam o valor do acoplamento de interface em unidades da constante de troca intrínseca do AFM. A temperatura é apresentada em unidades da temperatura de Néel e o calor específico é mostrado em unidades de E_{exch}/T_N . Nota-se que para anisotropia cristalina a intensidade da interface de troca não afeta fortemente a posição do pico no C_V . (Fig.(5) do artigo (5))
23.	Louis Néel; 1904 – 2000. (Fig. 1 da Ref. (6))

unidades da temperatura de Néel e o calor específico é apresentado em unidades da

24.	Geometria de nanoestruturas típicas: (a) cadeia de partículas finas, (b) <i>striped</i> de nanofio, (c) nanofio cilíndrico, (d) nanojunção, (e) <i>step</i> de superfície vicinal, (f) nanopontos, (g) antipontos e (h) <i>particulate medium</i> . (Fig. 2 da Ref. (7))
25.	Ilustração das três principais fases na super-rede Fe/Gd. Na fase <i>Gd-alinhado</i> a média térmica dos momentos do Gd é alta e estão alinhados com o campo externo. Na fase <i>Fe-alinhado</i> à mais alta temperatura os momentos do Gd são pequenos e os momentos do Fe alinham com o campo. (Fig. (1) da Ref. (8))
26.	Limites de estabilidades para os estados em que o Fe ou o Gd estão alinhados com o campo magnético aplicado. Para baixos campos aplicados ambos estados, acima de uma faixa dos valores de magnetização para o Gd, são estáveis. (a) mostra o diagrama de fase para um forte acoplamento interfacial antiferromagnético e (b) apresenta o diagrama de fase para acoplamento interfacial antiferromagnético menor. Como o acoplamento antiferromagnético é aumentado, a região onde ambos estados são estáveis também aumenta. (Fig. (2) do artigo (8))
27.	Curva teórica de histerese térmica para uma multicamada finita e infinita de Fe/Gd. A célula unitária é Gd ₁₇ /Fe ₂₃ em ambos os casos. O campo aplicado é 300 Oe. (Fig. 5 da Ref. (8))
28.	Magnetização como função da temperatura para três amostras em série de $[\text{Co}_{t}/(\text{Gd}_{0.47}\text{Co}_{0.53})100 \text{ Å}]_{\times 20}/\text{Co}_{t} \text{ com } t = 25 \text{ Å}(\lozenge), 30 \text{ Å}(\circ), e 40 \text{ Å}(\bullet)$ apresentando uma sensibilidade da temperatura de compensação com a variação da espessura. Os campos aplicados durante o experimento foram de $50Oe$ para $t = 25 \text{ Å} \text{ e } 30 \text{ Å} \text{ e } 100Oe$ para $t = 40 \text{ Å}$. (Fig. 4 da Ref. (9)
29.	Magnetização em função da temperatura durante o ciclo térmico de aquecimento e resfriamento para uma amostra com espessura $t=40$ Å submetidas a diferentes campos magnéticos: $H=10$ (•), 20 (•), 40 (°), e 500 Oe (\Diamond). O campo foi aplicado alongo do eixo fácil. A indicação de cada medida é indicada pelas setas, como também a posição da temperatura de compensação (T_{comp}) e a temperatura de reversão (T_r) em cada caso. A histerese térmica só não é vista quando o campo aplicado for de 500 Oe.

30. Esboço esquemático da estrutura magnética de cada super-rede e a magnetização total das amostras ao longo de um laço experimental completo de <i>M</i> versus <i>T</i> . A seta grossa representa o momento total da super-rede Gd _{0.47} Co _{0.53} /Co, a fina corresponde a super-rede do Co, e a seta acima dessas duas é associada com a magnetização total da amostra (note que a magnetização é zero na T_{comp}). A direção do campo magnético externo durante o experimento é indicado no topo da figura. As linhas pontilhadas comparam dois estados equivalentes (mesma temperatura) antes e depois da reversão da magnetização. (Fig. 7 da Ref. (9))
31. (Color online) Laços de histerese térmica tirados em ambas direções, fácil (círculos cheios) e difícil(círculos abertos), da anisotropia sobre a amostra, com $t=40$ Å a diferentes campos: $H=200e$ [painel (a)], $H=300e$ [painel (b)], e $H=500e$ [painel (c)]. Note que a temperatura de reversão não depende da anisotropia, mas a forma de mínimo, correspondendo às reversões dinâmicas, é muito diferente. A linha pontilhada a $200K$ marca a posição da temperatura de compensação, independente do campo e anisotropia. (Fig. 9 da Ref. (9)).
32. Dependência da temperatura de momento magnético para CoNi(1.5nm)/Gd(2nm) para diferentes campos magnéticos externos e larguras de histereses térmicas como uma função do campo aplicado. No topo da figura, as setas finas e grossas indicam os momentos do Gd e o CoNi respectivamente. Em (a) momentos magnéticos com respeito a direção do campo externo são apresentados em torno das temperaturas de transição T_1 e T_2 . As linhas verticais ilustram a região onde as duas fases coexistem. Em (b) e (d) as setas são usadas para indicar a direção durante a medida: resfriamento de 300 a 50 K (setas azuis) seguido pelo processo de aquecimento (setas vermelhas). (Fig. 1 da Ref. (10))
33. Dependência da temperatura do momento magnético para (CoNi _{2nm} /Gd _{2nm}) para diferentes campos magnéticos externos. As linhas verticais apresentam a região onde

as duas fases coexistem. A direção durante a medida é indicada pela seta. Em (a), a H

= 500e, o ponto inicial para medida é 300K e não é observado transição de fase. Em

(b), a H = 50Oe, o ponto inicial para medida é 10K e a transição de fase de primeira

ordem é observada durante o processo de aquecimento. (Fig. (4) do artigo

34.	Histerese termica com aumento dos campos magneticos externos para liga de $[\text{Co}_{0.8}\text{Gd}_{0.2}]_{2nm}$. As direções de magnetização do Co e do Gd são mostradas como setas pretas e brancas, respectivamente. O campo magnético externo, \mathcal{H} , aponta para a direita como mostrado na figura. (Fig. 1 da Ref. (11))
35.	Cálculos teóricos para magnetização em função da temperatura para liga de [Co _{0.772} Gd _{0.228}] _{2nm} . A teoria está em bom acordo com os resultados experimentais da Fig. 34. (Fig. 2 da Ref. (11))
36.	Fase Helimagnética. (Fig. 3.1 da Ref. (12))
37.	Histerese térmica de 16 camadas de filme de Dy. (a) Magnetização para $H=1.5kOe$ (curvas de símbolo aberto) e $H=0.05kOe$. (b) Esquema de arranjo de spin em um filme de Dy de 16 camadas em que a foto corresponde à secção de aquecimento para o campo externo de $1.5kOe$ e os valores da temperatura estão indicados a cada linha. Em (a), as linhas (pontilhadas) contínuas são para os processos de aquecimento (resfriamento) e a magnetização é mostrada em unidades de μ_B . (Fig. 1 e Fig. 3 da Ref. (13))
38.	Histerese térmica de 8 camadas de filme de Dy. (a) Magnetização para $H=1.5kOe$ (curvas de símbolo aberto) e $H=0.05kOe$. (b) Esquema de arranjo de spin em um filme de Dy de 8 camadas em que a foto corresponde à secção de aquecimento para o campo externo de $1.5kOe$ e os valores da temperatura estão indicados a cada linha. Em (a), as linhas (pontilhadas) contínuas são para os processos de aquecimento (resfriamento) e a magnetização é mostrada em unidades de μ_B . (Fig. 2 e Fig. 3 da Ref. (13))
39.	(a) apresenta uma configuração ferrimagnética onde os momentos do Dy estão todos alinhados com o campo externo e os momentos do Fe são antiparalelos. (b) apresenta uma estrutura ferromagnética com todos os momentos magnéticos paralelos ao campo aplicado. (c) uma estrutura onde os momentos do Dy mostram uma estrutura helicoidal (<i>H</i>). (d) apresenta uma estrutura hélice-alternada (<i>AH</i>) onde a direção da hélice reverte perto do meio do filme. (e) apresenta um estado <i>fan</i> no qual também tem

reversão da direção da helicidade dentro do filme, mas permite ao final do filme

	apontar ao longo do campo externo. (f) apresenta um estado antiferromagnético. (Fig. 1 da Ref. (14))
40.	Magnetização de tricamadas de Fe ₂₀ /Dy ₁₂ /Fe ₂₀ para ambos os processos de aquecimento e resfriamento. Note que as transições e as histereses térmicas são ambas tuneláveis por um pequeno campo magnético externo. (Fig. 2 da Ref. (14)) 56
41.	A figura mostra o sistema de matrizes de dots FM/AFM como também a estrutura de um ponto (dot) que é composto por <i>N</i> células cúbicas
42.	(S) Histerese térmica de pontos de $Fe(30nm \times 15nm \times 15nm)/NiO$. O ciclo térmico é realizado com o campo magnético externo aplicado em sentido oposto ao campo de interface tal como é representado na parte (T) da figura. [(Fig. 1 da Ref. (15)) e (Fig. 4.5 da Ref. (2))]
43.	Mapa de spins, à temperatura ambiente, das camadas da superfície e da interface que correspondem, respectivamente, aos pontos (a) e (b) que estão indicados na <i>Fig.</i> 42. As cores do fundo indicam o ângulo entre os momentos magnéticos e o eixo <i>z.</i> [(Fig. (2) do artigo (15)) e (Fig. (4.6) da tese (2))]
44.	Modificação da barreira de energia por efeitos de aumento de temperatura. (Fig. 4.3 da Ref. (2))
45.	Histerese térmica para $H = 3kOe$ de partículas de Fe com dimensões $30nm \times L(nm) \times L(nm)$. A escala, nesta figura, indica os valores de L. (Fig. 3 da Ref. (15))
46.	Componentes das magnetizações nas direções z e x como também os respectivos mapas de momentos magnéticos para uma partícula de $120nm \times 60nm \times 12nm$ de Fe num substrato antiferromagnético de NiO submetido a um campo magnético externo de $4kOe$. (Fig. 4 da Ref. (15)
47.	(a) Componente da magnetização ao longo do eixo fácil z para uma bicamada de Fe(9nm)/MnF ₂ (110), em unidades de μ_B , e (b) ângulo médio dos momentos magnéticos de spin FM com a direção [001] para um laço térmico sob um campo

	magnético externo de $H=190$ Oe ao longo do eixo z. Nos painéis, temos a
	configuração dos momentos magnéticos de spin da camada FM (símbolos cinza) e o
	substrato AFM para pontos selecionados (à esquerda para o aquecimento e à direita
	para resfriamento nos mesmos valores de temperatura). (Fig. 2 da Ref.
	(16))
48.	Largura da histerese térmica para bicamadas Fe(12nm)/MnF ₂ (110) e
	$Fe(3nm)/MnF_2(110)$ e para uma bicamada de $Fe(3nm)/FeF_2(110)$ (no <i>inset</i>). (Fig. 3 da
	Ref. (16))
49.	(a) Componente da magnetização ao longo do eixo z para uma bicamada de
	Fe(9nm)/MnF ₂ (110), em unidades de μ_B , e (b) Ângulo médio dos momentos
	magnéticos de spin FM com a direção [001] para um laço térmico sob um campo
	externo de $H = 2200$ e ao longo do eixo z. Nos painéis, temos a configuração dos
	momentos magnéticos de spin da camada FM (símbolos cinza) e o substrato AFM
	para pontos selecionados (à esquerda para o aquecimento e à direita para resfriamento
	nos mesmos valores de temperatura). (Fig. 4 da Ref. (16))
50.	(a) Componente da magnetização ao longo do eixo z em unidades de μ_B e (b) Ângulo
	médio dos momentos magnéticos de spin FM com a direção [001] para um laço
	térmico de uma bicamada de $Fe(3nm)/MnF_2(110)$ sob um campo externo de $H=$
	104Oe. As linhas contínuas (símbolos abertos) correspondem ao acoplamento, na
	interface, ferromagnético (antiferromagnético). (Fig. 5 da Ref
51.	Valor absoluto do momento líquido dos momentos magnéticos de spin AFM ao longo
	do eixo z e o campo de troca sobre os momentos magnéticos de spin da interface FM

ao longo do processo de aquecimento do laço térmico de uma bicamada de

 $Fe(3nm)/MnF_2(110)$ sob um campo externo de H=104Oe. A curva azul do símbolo

aberto e a curva preta do símbolo cheio correspondem ao valor absoluto do momento

líquido dos momentos magnéticos de spin da interface para energias de troca de

interface FM e AFM. A curva vermelha do símbolo fechado (eixo vertical direito)

apresenta a diferença no campo de troca de interface sobre os momentos magnéticos

de spin da interface FM entre os casos de acoplamento FM e AFM. As inserções

representam	esquematicamente a	configuração do	s momentos	magnéticos	de spin	da
interface par	a acoplamento de int	erface (a)FM e (b	AFM. (Fig.	6 da Ref. (1	6))	73

LISTA DE TABELAS

1. Comparação de propriedades típicas de materiais que exibem GMR	32
2. Tabela de histerese térmica	44
3. Tabela de histerese térmica do filme fino de Dy constituído por 16 camadas	52
4. Fe (12nm)/Mn <i>F</i> ₂ (110)	68

SUMÁRIO

LISTA DE FIGURAS	vi
LISTA DE TABELAS	XV
RESUMO	iv
ABSTRACT	v
CAPÍTULO 1	1
INTRODUÇÃO	1
CAPÍTULO 2	4
Bicamadas FM/AFM	4
2.1 Exchange bias	7
2.2 Reorientação	12
2.2.1 FM com simetria uniaxial	14
2.2.2 FM com simetria C – 4	17
2.2.3 Campo de interface limiar para a reorientação	19
2.3 Calor específico	22
CAPÍTULO 3	29
Histereses térmicas em sistemas magnéticos	29
3.1 Multicamadas magnéticas	32
3.1.1 Metais de transição/terras raras (MT/TR)	33
3.1.2 Filmes finos de Dy	48
3.1.3 Tricamadas de Fe _m /Dy _n /Fe _m e Gd _m /Dy _n /Gd _m	53
3.1.4 Dots ferromagnéticos/antiferromagnéticos (FM/AFM)	56
CAPÍTULO 4	62
Histereses térmicas em bicamadas FM/AFM compensadas	62
4.1 Bicamadas FM/AFM compensadas	62
4.2 O Modelo para bicamadas FM/AFM compensadas	63
4.3 Resultados	66
CAPÍTULO 5	77
CONCLUSÕES E PERSPECTIVAS	77
REFERÊNCIAS	80
APÊNDICE	87

Capítulo 1

Introdução

Uma das grandes áreas de destaque em Física da Matéria Condensada é chamada Magnetismo e Materiais Magnéticos. Pesquisadores teóricos e experimentais ao redor do mundo têm ampliado significativamente o potencial tecnológico de materiais magnéticos. Em particular, sistemas magnéticos nanoestruturados têm revolucionado a indústria de gravação magnética, dando origem à área chamada spintrônica.

O princípio da spintrônica deu-se com a descoberta do efeito da magnetoresistência gigante (GMR) (1), prêmio Nobel de Física em 2007 (17), que envolve processos físicos de gravação e leitura em meios magnéticos. A descoberta da magnetoresistência deu origem ao dispositivo conhecido como transistor de válvula de spin (18).

O esforço de pesquisa na busca da estabilização de nanopartículas tem dado origem a diversas alternativas para o aumento da densidade de gravação magnética. Entre elas, temos: a- estabilização de nanopartículas magnéticas através do acoplamento de troca com um substrato magnético estável, estratégia usada no transistor válvula de spin, nos sensores magnetoresistivos hoje usados em nossos computadores pessoais (Fig. 2); b- gravação termicamente assistida (TAMR) (19), que viabiliza o uso de materiais com altas anisotropias (Fig. 3) sendo uma técnica baseada no aquecimento da região de gravação com um LASER (Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation); e c- arranjos estruturados de nanopartículas ferromagnéticas, com armazenamento de um bit por partícula (Fig. 4) (2, 15, 20).

A estratégia de armazenamento de dados para leitura digital, binária, baseia-se na existência de dois estados magnéticos possíveis, associados aos bits zero e um. Quanto menores as nanopartículas, menor será a área associada a um bit e maior será a densidade de gravação. Os sensores usados para a leitura de dados armazenados em meios magnéticos (os discos rígidos dos computadores pessoais, por exemplo) identificam as unidades básicas da linguagem digital (bit zero ou bit um) pela direção do campo de fuga da partícula magnética. O sensor é composto por uma camada ferromagnética (FM) acoplada, através de um separador não magnético, com uma camada FM de referência, cuja ordem magnética é garantida pelo substrato antiferromagnético (AFM). Como as bicamadas FM/AFM exibem efeitos magnetoresistivos a campos magnéticos externos relativamente mais baixos, as

propriedades magnéticas desse sistema tornaram-se alvos de intensos estudos pela comunidade científica. Eis a razão que nos impulsiona.

O progresso na spintrônica não é separável do desenvolvimento do nanomagnetismo. Em particular, a engenharia de propriedades magnéticas a nível atômico em multicamadas foi desenvolvida em paralelo com a GMR, capacitando-a (21). É por isso que uma rica variedade de estruturas e comportamentos é possível, na qual podemos combinar ferromagnetos com não magnetos, ferromagnetos com ferromagnetos, ferromagnetos com antiferromagnetos, ferromagnetos com magnetos helicoidais etc (22).

É fato que muitos efeitos físicos novos ocorrem em conexão com a redução da extensão espacial do sistema sobre investigação. No presente caso, campos magnéticos foram usados para ler ou escrever a informação armazenada na magnetização, em que "é medida" a orientação local de momentos magnéticos de spins em ferromagnetos. O armazenamento magnético de informação binária de engenharia exige uma barreira de energia entre as duas orientações opostas da magnetização, capaz de impedir a inversão térmica excitada. Essa anisotropia magnética tem várias origens concorrentes, sendo que a mais forte é geralmente a anisotropia de forma, embora a anisotropia magnetocristalina seja o principal efeito usado em gravação (21). Isso torna as multicamadas representantes de uma nova classe de materiais na qual efeitos de superfície e interface influenciam fundamentalmente as propriedades do material inteiro, visto que tais efeitos podem ser controlados pelo padrão da camada (22). As fases magnéticas de multicamadas são, ainda, funções da temperatura, do campo externo aplicado, de parâmetros intrínsecos e, principalmente, de sua composição.

Nesta dissertação, desenvolvemos um estudo sobre bicamadas FM/AFM compensadas. A camada FM possui anisotropia cúbica cristalina *C-4* e foi crescida ao longo do plano (110), coincidindo paralelamente com o plano no qual foi crescida a camada AFM que funciona como substrato. Uma vez que determinamos que os átomos constituintes da nossa bicamada estejam rigidamente juntos, podemos desprezar efeitos de interdifusão. Efeitos de rugosidade também foram desprezados no nosso estudo. As dimensões do sistema, no plano da amostra, são tais que os efeitos de bordas são desprezados. Consequentemente, podemos modelar o sistema com duas cadeias lineares de spin, com duas sub-redes por plano (no AFM e no FM) que se repetem indefinidamente.

O material FM da bicamada em questão é o Fe, com o parâmetro de rede de a = 1.5Å e temperatura de Curie (T_C) de 1043K. Para substratos usamos o MnF₂ e o FeF₂ cujas temperaturas de Néel são, respectivamente, $T_N = 67K$ e $T_N = 78K$. A grande diferença entre os

campos de anisotropia desses materiais antiferromagnéticos tornou-se um fator discrimante entre os estados magnéticos das bicamadas Fe/FeF₂ e Fe/MnF₂. Algumas propriedades magnéticas particulares das bicamadas merecem destaque devido à sua atual relevância tecnológica, a saber: o exchange bias e a reorientação da magnetização da camada ferromagnética. O exchange bias, que depende de inúmeras variáveis como a anisotropia do material FM e a natureza da interface do AFM, é um efeito extrínseco da bicamada FM/AFM, pois depende muito do campo magnético externo, embora esteja associado a efeitos de interface na bicamada e não seja um reflexo da estrutura magnética da interface. Por sua vez, o fenômeno de reorientação da magnetização do filme FM na bicamada FM/AFM compensada ocorre simultaneamente ao fenômeno do deslocamento da histerese e é um efeito intrínseco da estrutura magnética da interface do substrato antiferromagnético.

A spintrônica impulsionou estudos de histereses térmicas em sistemas nanoestruturados. Nesse contexto, a pequena diferença de energia entre dois estados metaestáveis pode levar o sistema a uma bi-estabilidade térmica. Nosso trabalho consiste no estudo teórico de histerese térmica de uma bicamada magnética que consiste em um filme ferromagnético com anisotropia cúbica cristalina (simetria C-4), acoplado a um substrato antiferromagnético compensado.

No Capítulo 2, apresentamos um estudo de algumas propriedades magnéticas de bicamadas FM/AFM, como, por exemplo, *exchange bias*, efeitos de interface, reorientação da magnetização da camada FM e calor específico. No Capítulo 3, são descritos os efeitos de histereses térmicas em diversos sistemas nanoestruturados. O Capítulo 4 contempla o estudo de histereses térmicas em bicamadas FM/AFM compensadas. Por fim, no Capítulo 5, apresentamos nossas conclusões e algumas perspectivas.

Capítulo 2

Bicamadas FM/AFM

Uma das grandes áreas de destaque em Física da Matéria Condensada é chamada Magnetismo e Materiais Magnéticos. Pesquisadores teóricos e experimentais ao redor do mundo têm ampliado significativamente o potencial tecnológico de materiais magnéticos. Em particular, sistemas magnéticos nanoestruturados têm revolucionado a indústria de gravação magnética, dando origem à área chamada spintrônica.

O princípio da spintrônica deu-se com a descoberta do efeito da magnetoresistência gigante (GMR) (1), prêmio Nobel de Física em 2007 (17), que envolve processos físicos de gravação e leitura em meios magnéticos. A magnetoresistência é a variação percentual da resistividade $\Delta R/R_0$, com respeito ao seu valor na ausência de campo, por efeito de um campo magnético externo aplicado (Fig. 1). A viabilidade técnica é limitada a uma combinação de alta magnetoresistência com baixo campo de saturação.

A descoberta da magnetoresistência deu origem ao dispositivo conhecido como transistor de válvula de spin (18). O dispositivo de válvula de spin consiste em camadas ferromagnéticas acopladas magneticamente através de uma camada não magnética e exibe magnetoresistência gigante.

A partir de então, um dos desafios da indústria magneto-eletrônica tem sido produzir sistemas magnéticos que permitam aumentar a densidade de gravação magnética e, ao mesmo tempo, desenvolver sensores mais eficientes, permitindo a leitura de dados em campos magnéticos fracos. A busca de meios magnéticos de alta densidade de gravação requer partículas pequenas, densamente arranjadas em camadas finas. A fim de atingir uma maior densidade de armazenamento de dados, o caminho não pode ser simplesmente a miniaturização do sistema. Há um limite microscópico intransponível. A diminuição do tamanho das partículas magnéticas, na tentativa de aumentar a densidade, é limitada por um fenômeno conhecido como superparamagnetismo, que consiste em uma instabilidade da ordem magnética produzida pela energia térmica (23). A ordem magnética de pequenas partículas é estabilizada pela energia de anisotropia magnética. Essa energia é proporcional ao número de átomos magnéticos da partícula. Partículas pequenas têm energia de anisotropia comparável à energia térmica. Portanto, a ordem magnética da nanopartícula se degrada e inviabiliza o uso da partícula em meios de gravação.

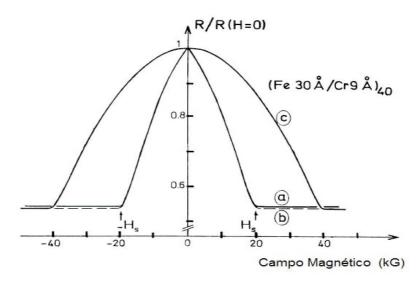


Figura 1: A relação entre a variação da resistência elétrica e o campo magnético externo aplicado sobre uma multicamada composta por Fe/Cr. (Fig. 2 (1)).

O desenvolvimento de técnicas avançadas de crescimento de materiais e o potencial tecnológico de partículas magnéticas têm direcionado grande esforço de pesquisadores, da academia e da indústria, em busca do controle do limite superparamagnético, seja para aplicações em gravação magnética ou em sistemas biomédicos. A barreira de energia que estabiliza partículas magnéticas é KV, sendo K a constante de anisotropia do material e V, o volume da nanopartícula. A estabilidade da ordem magnética requer $KV > k_B T$ (k_B é a constante de Boltzmann e T é a temperatura). Uma forma de manter a barreira de energia, diminuindo o volume da partícula, é aumentar a anisotropia. A dificuldade no uso de materiais de alta anisotropia está na necessidade de altos campos magnéticos para gravação e, consequentemente, nas altas correntes nos equipamentos eletrônicos.

O esforço de pesquisa na busca da estabilização de nanopartículas tem dado origem a diversas alternativas para o aumento da densidade de gravação magnética. Entre elas, temos: a- estabilização de nanopartículas magnéticas através do acoplamento de troca com um substrato magnético estável, estratégia usada no transistor válvula de spin, nos sensores magnetoresistivos hoje utilizados em nossos computadores pessoais (Fig.2); b- gravação termicamente assistida (TAMR) (19), que viabiliza o uso de materiais com altas anisotropias (Fig. 3), sendo uma técnica baseada no aquecimento da região de gravação com um LASER (Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation), tornando a energia térmica (k_BT) maior do que a barreira de energia (KV), viabilizando a gravação em campos relativamente

baixos; e c- arranjos estruturados de nanopartículas ferromagnéticas, com armazenamento de um bit por partícula (Fig. 4) (2, 15, 20).

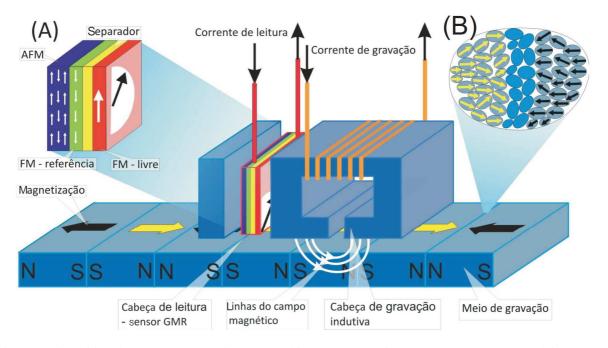


Figura 2: Dispositivo de gravação magnética. (A) Multicamada magnética que compõe o sensor de leitura. (B) Ampliação esquemática do meio de gravação.

A estratégia de armazenamento de dados para leitura digital, binária, baseia-se na existência de dois estados magnéticos possíveis, associados aos bits zero e um, como podemos ver na Fig. 2. A gravação é feita por uma cabeça indutiva que gera um campo magnético sobre o meio de gravação em um dos dois sentidos de uma direção fixa. A região do meio de gravação, associada a um bit, corresponde a um número de aproximadamente 1000 nanopartículas (veja Fig. 2 (b)). Consequentemente, quanto menores as nanopartículas, menor será a área associada a um bit e maior será a densidade de gravação. Os sensores usados para a leitura de dados armazenados em meios magnéticos (os discos rígidos dos computadores pessoais, por exemplo) identificam as unidades básicas da linguagem digital (bit zero ou bit um) pela direção do campo de fuga da partícula magnética (veja Fig. 2 (a)). O sensor é composto por uma camada ferromagnética (FM) acoplada, através de um separador não magnético, com uma camada FM de referência, cuja ordem magnética é garantida pelo substrato antiferromagnético (AFM).

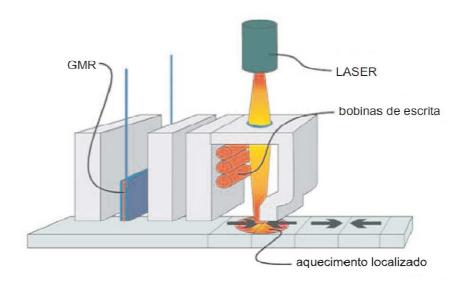


Figura 3: Esquema de gravação magnética termicamente assistida. (Fig. 4.1 (2))

Sendo assim, do ponto de vista tecnológico, é de fundamental importância o entendimento das propriedades magnéticas de bicamadas FM/AFM que exibem propriedades particulares, como, por exemplo, *exchange bias* (deslocamento do centro da histerese magnética) e reorientação da magnetização do ferromagnético.

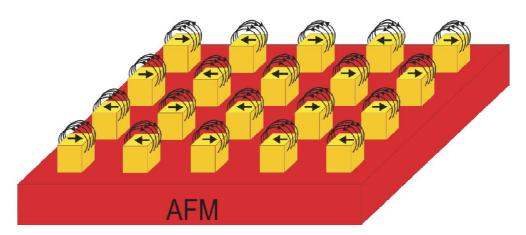


Figura 4: Arranjo de nanopartículas ferromagnéticas (FM) crescidas sobre um substrato antiferromagnético (AFM). Em evidência, o fluxo de campo magnético devido ao estado de magnetização da nanopartícula.

2.1 Exchange bias

O fenômeno *exchange bias*, deslocamento do centro da histerese de H=0, foi verificado primeiramente por Meiklejohn e Bean em 1956 em partículas esféricas finas e compactas de cobalto (Co) revestidas com uma casca de óxido de cobalto (CoO), a que chamaram de "nova anisotropia magnética". Foi observado que quando o material era resfriado a partir de 77K, na ausência de campo magnético externo, a curva de histerese era centrada em H=0, mas quando o material era resfriado na presença de um intenso campo magnético externo (H=10kOe), o centro da histerese era deslocado da origem (3).

Devido ao crescente potencial tecnológico de sistemas constituídos de materiais ferromagnéticos acoplados a antiferromagnéticos, o deslocamento da histerese foi investigado nos mais variados sistemas magnéticos que apresentam interface FM/AFM, tais como filmes finos, materiais não homogêneos, pequenas partículas, multicamadas de filmes finos e filmes FM depositados sobre substratos AFM.

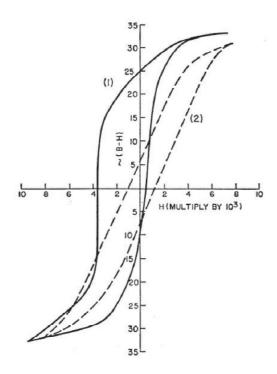


Figura 5: Curvas de histerese magnética, a 77K, de partículas de Co revestidas de CoO. A curva de linhas sólidas ocorre quando o material é resfriado a um campo de 10kOe enquanto que a de linhas pontilhadas ocorre na ausência de campo magnético externo. (Fig. 1 do artigo (3))

Por causa do avanço na tecnologia de crescimento de materiais nas duas últimas décadas, as multicamadas têm sido amplamente estudadas. Interfaces FM/AFM podem ser efetivamente controladas e, consequentemente, caracterizadas, além de serem significativamente utilizadas em dispositivos magnetoeletrônicos. Outra grande vantagem das

multicamadas reside no fato de alguns aspectos do efeito serem comensuráveis apenas nessas estruturas, como é o caso da orientação do campo externo, da dependência com as espessuras das camadas magnéticas e da desordem interfacial (24).

Grande parte dos estudos sobre o *exchange bias* em bicamadas foi realizado em filmes finos de metais de transição oxidados, tais como Co/CoO, Ni/NiO, Fe/FeO e em filmes de NiFe acoplados a um óxido AFM (25–42). Quando Meiklejohn e Bean propuseram seu modelo, previram campos de *bias*, intensidade do deslocamento do centro de simetria da histerese magnética, com magnitude superior àqueles observados para a interface FM/AFM não compensada. No entanto, o modelo simples não esclarece o fenômeno *bias* quando o plano de interface do antiferromagnético é completamente compensado (43).

Em 1964, foi feito o primeiro sistema composto só por filmes metálicos. Consistia em uma bicamada de Ni $_{80}$ Fe $_{20}$ /Mn, a qual dava origem ao composto antiferromagnético, Fe $_x$ Ni $_y$ Mn $_{1-x-y}$, na interface com a temperatura de transição maior que a temperatura ambiente (44). Posteriormente, foram feitos estudos em bicamadas do tipo FM/Fe $_{50}$ Mn $_{50}$ e FM/Ni $_x$ Mn $_x$. Essas duas ligas são atraentes devido a sua temperatura de transição, T_N , acima da temperatura ambiente; a do FeMn, por exemplo, é de aproximadamente 220°C (45).

Todavia, a evidência experimental do efeito de *exchange bias* em bicamadas FM/AFM tem se vinculado a um tratamento térmico da amostra. As amostras são resfriadas a partir de temperaturas acima da temperatura de Néel do AFM na presença de um campo externo aplicado, chamado campo de resfriamento (*H_r*). Embora o *exchange bias* esteja associado a efeitos de interface na bicamada, verificou-se que existe uma grande dependência do campo de *bias* com o campo de resfriamento *H_r*. Ainda que os primeiros modelos de *exchange bias* tivessem sugerido que o deslocamento é uma medida do campo de troca através da interface, os resultados experimentais derrubam essa tese. É esperado que a intensidade do campo de troca através da interface seja da ordem dos campos de troca intrínsecos dos materiais envolvidos. Contudo, a intensidade do campo de *exchange bias* medida tem sido, aproximadamente, 1000 vezes menor do que os campos de troca intrínsecos dos materiais ferromagnéticos e antiferromagnéticos. Porém, há evidências experimentais de que o perfil de magnetização da camada ferromagnética é moldado pelo padrão de magnetização na interface do AFM (46) (ver Fig. 6), o que significa que o campo de troca através da interface deve ser maior do que a intensidade do campo de deslocamento da histerese.

Estudos realizados mostram que o *exchange bias* também ocorre em bicamadas FM/AFM compensadas e apresenta valores de mesma ordem de grandeza daqueles encontrados na bicamadas FM/AFM não compensadas (4). Este fato fortifica a asserção de

que o *exchange bias* (EB) não é um reflexo da estrutura magnética da interface e possui, como citado anteriormente, valores de campo que diferem em muito daqueles dos campos de troca dos momentos magnéticos dos dois materiais através da interface (4).

Embora seja difícil entender o EB em substratos compensados do ponto de vista macroscópico, a partir do qual a magnetização líquida do material antiferromagnético é nula, o fenômeno tem sido interpretado como resultado da formação de domínios na camada AFM (47), do acoplamento não colinear entre os momentos magnéticos interfaciais, da transferência de ondas de spin entre as camadas ou da existência de momentos AF residuais não compensados na interface (48).

Sendo assim, o que percebemos é que o acoplamento através da interface gera o deslocamento da histerese, mas não necessariamente o deslocamento é a medida da intensidade do campo de interface. Resultados experimentais mostram que, embora antiferromagnéticos compensados em bicamadas FM/AFM exibam *exchange bias*, o efeito só é exibido após o resfriamento da amostra, a partir da temperatura de Néel do AFM, na presença de um campo externo aplicado. Como exemplo, CoO (100), NiO (100), NiO (110), FeF₂ (110), FeF₂ (101), MnF₂ (110), FeMn (111) e FeMn (001) (47).

A função do substrato, na válvula de spin onde ocorre o efeito GMR, é, portanto, de estabilizar domínios magnéticos no filme de referência, e tal estabilidade é exercida através do acoplamento magnético entre os dois materiais.

É evidente que detalhes a respeito do substrato, tais como o momento magnético líquido dos spins das sub-redes estar compensado ou não compensado, alteram o valor do campo de *exchange bias*. Ou seja, o campo de acoplamento através da interface da camada antiferromagnética segura os momentos magnéticos de spin da camada ferromagnética em condições normais. Estamos considerando a constante de troca de acoplamento fornecida através de medidas de trabalhos experimentais feitas sobre uma grande área da interface e não aquela feita sob regiões microscópicas da interface. Logo, estamos levando em conta valores médios para o campo de troca. Outro detalhe a ser esclarecido acerca das bicamadas é que, na interface, existem rugosidades que contribuem para diminuição do campo de *bias* nos filmes finos texturizados, mas esse comportamento dos filmes finos com relação a tais rugosidades não segue uma regra geral, porque existem alguns sistemas que se comportam ao contrário e há até outros que se tornam insensíveis, fazendo parecer que essa conduta independe de a estrutura magnética da interface apresentar-se como compensada ou não compensada (24, 43).

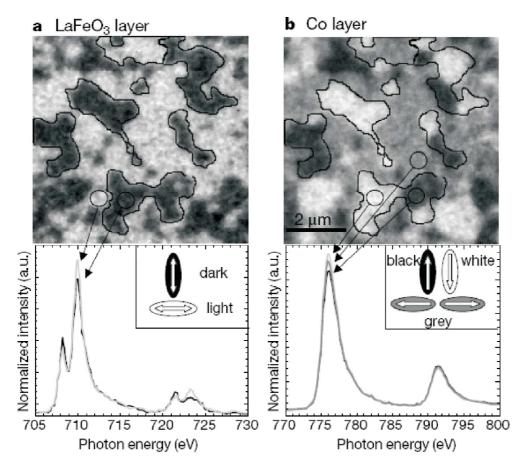


Figura 6: Observação direta do alinhamento de spins ferromagnéticos por spins antiferromagnéticos

Em virtude do considerável número de variáveis do sistema, não existe uma conclusão fechada a respeito do campo de troca de interface. Contudo, são vários os modelos que tentam explicar quantitativa e qualitativamente o deslocamento da histerese. Existem pesquisadores, como Mauri (43, 49), que defendem a idéia de que campo de *bias é* reduzido quando paredes de domínio são nucleadas paralelamente à interface, fazendo diminuir a intensidade do campo aplicado para acontecer a reversão da magnetização (43). Malozemoff (50–52) interpreta o fenômeno EB em termos de campos de troca através da interface aleatório, devido a rugosidades na interface, sendo que seu modelo apresenta características que dependem de detalhes da microestrutura (43). Porém, na década de 90, foram publicados vários resultados experimentais sobre *exchange bias* que não puderam ser compreendidos pelas teorias disponíveis.

Estudos experimentais, em cunhas de NiFe/FeMn (53), mostraram que o campo de *exchange bias* é função das densidades do NiFe (ferromagnético) e FeMn (antiferromagnético), assim como da orientação do FeMn. Foi mostrado que há uma densidade crítica do AFM para iniciar o deslocamento de histerese (EB), assim como existe

uma tendência de a magnetização do material ferromagnético orientar-se perpendicularmente ao eixo fácil do material AFM (53).

O fenômeno de "exchange bias" depende de várias variáveis de um sistema FM/AFM. Dentre elas, existem a anisotropia do material ferromagnético e a natureza da interface do antiferromagnético. Com relação a anisotropia do material ferromagnético, ela pode ser uniaxial ou cúbica. No caso da anisotropia cúbica em camadas ferromagnéticas finas a magnetização é restrita ao plano da amostra, consequentemente, existem apenas dois eixos fáceis. A natureza da interface do antiferromagnético pode ser parcial, completamente compensada ou não compensada.

Em interfaces completamente compensadas, o *exchange bias* aparece quando a amostra é submetida a um tratamento térmico, resfriamento, na presença de campo aplicado (4).

Schuller e colaboradores (54) mostraram que o deslocamento da histerese magnética em bicamadas Fe/FeF₂ pode ser negativo ou positivo em relação à origem. Quando a amostra FM/AFM compensada é resfriada a partir da temperatura de Néel do AFM na presença de baixos campos magnéticos aplicados, poderá haver formação de domínios gerando um momento líquido na interface oposto ao campo aplicado. Nesse caso, o deslocamento da histerese será oposto ao da amostra resfriada na presença de altos campos aplicados, onde o momento líquido da interface estará no sentido do campo aplicado (54). Portanto, o fenômeno do *exchange bias* é também função da intensidade do campo aplicado no processo de resfriamento.

2.2 Reorientação

Como já visto anteriormente, as bicamadas têm sido muito utilizadas pela indústria de leitura e armazenamento de dados. O efeito magnetoresistivo é obtido com menores campos magnéticos externos quando utilizamos o dispositivo válvula de spin que possui uma bicamada FM/AFM na sua constituição. Eis um dos motivos pelos quais se têm estudado tanto as bicamadas e o porquê de explicar a reorientação em tais sistemas.

O fenômeno de reorientação da magnetização do filme ferromagnético crescido sobre um substrato antiferromagnético (Fig. 7) compensado ocorre simultaneamente ao fenômeno de deslocamento da histerese. Na Fig. 7, apresentamos esquematicamente um substrato antiferromagnético compensado com eixo fácil ao longo do eixo z e a camada ferromagnética

com anisotropia uniaxial, coincidindo com o eixo fácil do substrato ou com anisotropia cúbica C4 - zx, no caso de filmes finos. Devemos acrescentar que o fenômeno da reorientação, ao contrário do *exchange bias*, é um efeito intrínseco da estrutura magnética da interface do substrato antiferromagnético.

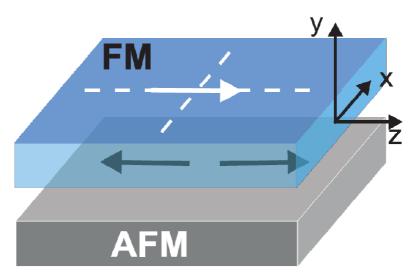


Figura 7: Esquema de uma bicamada FM/AFM compensada.

A reorientação trata do efeito da magnetização da camada ferromagnética que em princípio está sobre um eixo fácil e pode ser reorientada em uma direção perpendicular, fazendo um ângulo de 90° em relação ao eixo de anisotropia do substrato antiferromagnético. Essa reorientação ocorre em consequência da frustração do acoplamento, através da interface, e também da magnetização da camada ferromagnética com a do substrato antiferromagnético compensado.

O campo de troca através da interface em bicamadas FM/AFM compensadas resulta dos momentos magnéticos de spin do substrato AFM (ver Fig. 8) e sua influência sobre a reorientação dos momentos magnéticos de spin da camada FM não pode ser encarada como única. Devemos atentar também para a interação que o sistema sofre devido à energia Zeeman, ou melhor, é necessário observarmos o fenômeno de reorientação como uma resposta do sistema quando nele competem o campo de interface e o campo magnético externo. Estudos anteriores (5), mostram que em bicamadas de um ferromagneto uniaxial sobre um substrato antiferromagnético compensado, há um limiar de campo de interface (J^*_{int}) para que haja reorientação da magnetização do filme FM (4), evidenciando que há também uma competição entre as energias de anisotropia uniaxial e de troca através da interface.

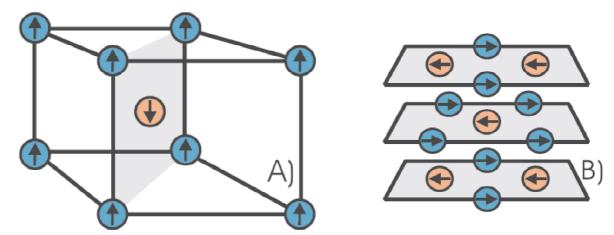


Figura 8: A figura A representa a estrutura cristalina do substrato estando o plano (110) sombreado porque é nele que o substrato é crescido. A figura B representa uma idealização de como é o empilhamento de planos atômicos (110) mostrando alguns de seus spins. O spin central aparece com oito spins da sub-rede oposta como sendo seus primeiros vizinhos. (Fig. 2.3 da Ref. (4))

2.2.1 FM com simetria uniaxial

Tanto a simetria de anisotropia magnética do FM quanto a intensidade do acoplamento de troca da interface (H_{int}) são parâmetros que nos guiam ao estudarmos a reorientação de bicamadas com anisotropia uniaxial da camada FM. O estado *canted* no AFM está limitado a alguns planos atômicos próximos da interface e desaparece por volta do terceiro plano atômico (Fig. 2.6 da tese de doutorado de M. L. Silva (4)).

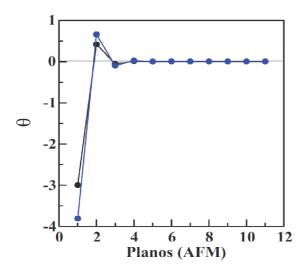


Figura 9: Ângulos entre os spins e o eixo fácil do filme AFM. A abscissa enumera os planos atômicos do AFM a partir da interface. As curvas preta e azul representam as bicamadas Fe/FeF_2 e Fe/MnF_2 , respectivamente. (Fig. 2.6 da Ref. (4))

Os resultados apresentados na Fig. 9 correspondem ao perfil da estrutura magnética do AFM quando o acoplamento de interface é igual ao valor limiar para reorientação. O acoplamento entre os filmes é 80% do acoplamento intrínseco de cada AFM para o estado reorientado $J_{int} = 0.8J_{AFM}$ (4). É evidente que o estado *canted* se reafirma à medida que a intensidade do acoplamento de interface cresce.

A energia magnética do sistema é calculada em função do ângulo (Θ_{FM}) dos momentos magnéticos da superfície livre do filme FM para diferentes valores do acoplamento de interface J_{int} . O estado reorientado ocorre quando a energia magnética exibe um mínimo de $(\Theta_{FM}) = 90^{\circ}$. Este é o modelo adotado por Koon (43).

Também foram mostradas em resultados anteriores (Figuras 10 e 11) curvas de nível da energia magnética da bicamada comparada com a energia do estado uniforme $\delta E = E(\Theta_{FM})$ – E(0). Os parâmetros de anisotropia são os mesmos utilizados na Fig. 9 e o acoplamento de troca intrínseco do FM é $J_{FM} = 10J_{AFM}$. A energia é escrita em unidades da energia de troca intrínseca do filme AFM, $\varepsilon = \delta E/E_{tr}$, onde $E_{tr} = ZJ_{AFM}S^2_{AFM}$ (4).

Para valores negativos de ε , os momentos magnéticos do ferromagneto estão ao longo do eixo y (estado reorientado), consequentemente $\Theta_{FM} = 90^{\circ}$. Para valores positivos de ε , é favorecida a direção da magnetização do filme FM ao longo do eixo de anisotropia z (eixo de anisotropia).

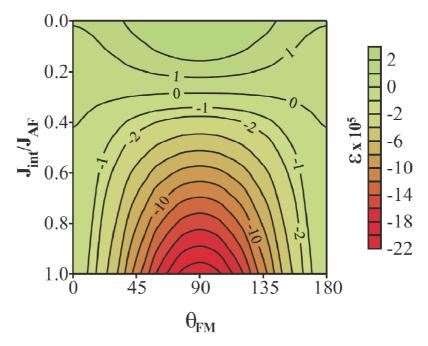


Figura 10: Curvas de nível da energia magnética, ε , comparada com a energia magnética do estado uniforme para uma bicamada Fe(5)/FeF₂(11). Θ_{FM} mede o ângulo entre os momentos magnéticos do Fe e o eixo fácil (eixo z), e J_{int}/J_{AFM} é a intensidade do acoplamento de interface em unidades do acoplamento de troca intrínseco do Fe/FeF₂. (Fig. 2.7 da Ref. (4))

A energia magnética do sistema ε não apresenta valores negativos para valores de acoplamento de interface menores que, aproximadamente, 30% do valor do acoplamento do AFM ($J_{int}/J_{AFM}<0.3$). Logo, existe uma intensidade do acoplamento de interface limiar (J^*_{int}) abaixo do qual não há formação do estado reorientado porque abaixo desse limiar J^*_{int} , a energia do acoplamento de interface não é suficiente para superar a barreira de energia imposta pela anisotropia uniaxial magnética do filme FM.

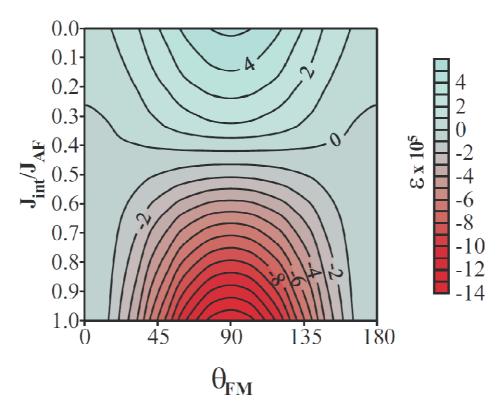


Figura 11: Curvas de nível da energia magnética, ε , comparada com a energia do estado uniforme para uma bicamada Fe(10)/FeF₂(11). (Fig. 2.8 da Ref. (4))

Os níveis de energia para $J_{int} > J^*_{int}$ assinalam que a energia é mínima em $\Theta_{FM} = 90^\circ$ (ver 10 e 11). O mesmo resultado é encontrado ao usarmos o algoritmo autoconsistente.

Para uma dada espessura da bicamada, calculamos a energia variando o valor do acoplamento através da interface J_{int} .

De acordo com a Fig. 12, o acoplamento de interface limiar cresce com o aumento da espessura do filme FM, algo já observado nas Fig. 10 e 11.

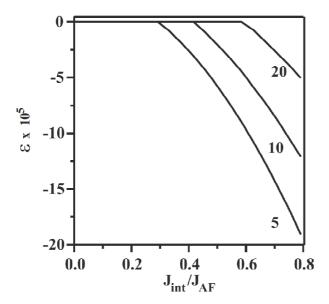


Figura 12: Energia magnética comparada com a energia do estado uniforme, ε da bicamada (110)Fe/FeF₂ para diferentes espessuras do filme FM. (Fig. 2.9 da Ref. (4))

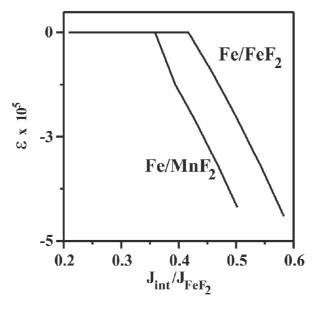


Figura 13: Energia magnética comparada com a energia do estado uniforme, ε , de bicamadas com diferentes substratos AFM. O número de planos dos filmes são $t_{FM} = 10$ e $t_{AFM} = 11$. (Fig. 2.10 da Ref. (4))

Como a barreira de anisotropia é proporcional à espessura do filme FM, é esperado que J^*_{int} seja uma função crescente da espessura do filme FM. Mas considerando que o acoplamento de interface é um número associado de forma unívoca às características magnéticas dos dois materiais, conclui-se que J_{int} não muda com a espessura do filme FM.

2.2.2 FM com simetria C – 4

Os filmes FM de anisotropia cúbica $K_cS^2_yS^2_z$ possuem dois eixos fáceis para reorientação da magnetização. Esses filmes FM com anisotropia cristalina com simetria C-4 apresentam comportamento diferente daqueles com anisotropia uniaxial quando acoplados a filmes AFM compensados.

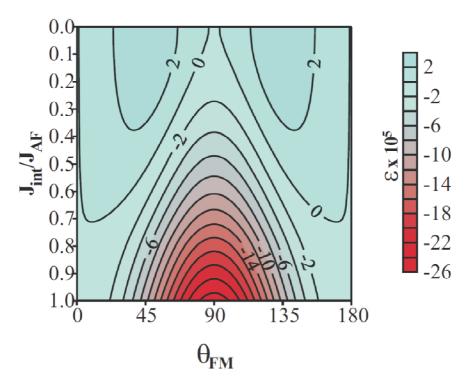


Figura 14: Curva de nível da energia magnética comparada com a energia do estado não-acoplado, ε , da bicamada (10)Fe/(11)FeF $_2$ compensada. O filme FM apresenta anisotropia com simetria C-4. (Fig. 2.11 da Ref.(4))

Qualquer valor positivo de Hint é capaz de produzir orientação da magnetização no filme FM com anisotropia cristalina C-4.

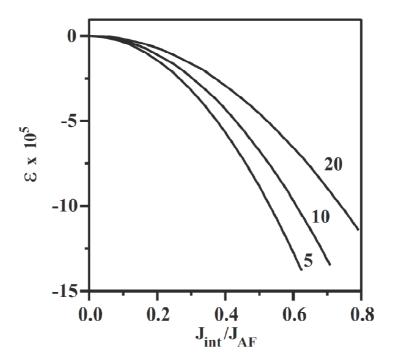


Figura 15: Energia magnética comparada com a energia do estado não-acoplado, ε , da bicamada Fe/FeF₂ compensada. O filme FM tem anisotropia cristalina com simetria C-4 e sua espessura (em número de planos atômicos) está indicada em cada curva. (Fig. 2.12 da Ref. (4))

Os valores de ε mostrados na Fig. 15 são sempre negativos, indicando que a energia do estado reorientado é menor que a energia de filmes não-acoplados. Logo, o estado reorientado sempre ocorre para qualquer intensidade de acoplamento entre os filmes nas bicamadas FM/AFM compensadas onde o filme FM tem anisotropia C-4.

2.2.3 Campo de interface limiar para a reorientação

Os resultados acima podem ser feitos de forma analítica e a concordância do método analítico com o método numérico permite-nos estimar a integral de troca J^*_{int} .

O desvio sofrido pelos momentos magnéticos de spin AFM próximos à interface é o responsável pela reorientação do filme FM. Por causa disso, foi feita uma aproximação na qual variações da energia magnética de spins dos demais planos do AFM não são consideradas (4).

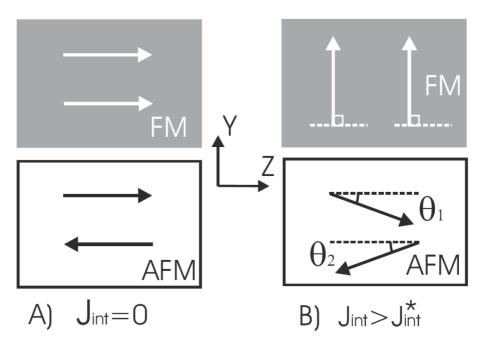


Figura 16: Visão esquemática dos spins dos materiais na ausência (A) e na presença (B) de acoplamento entre filmes. (Fig. 2.13 da Ref. (4))

A energia para cada situação na Fig. 16 é escrita identificando as contribuições de cada material. Para o estado uniforme (parte (A) da Fig. 16) e na ausência de campo externo $(H_{ext}=0)$, a energia do sistema é:

$$E = ZJ_{AFM}S_{AF}^2 - K_{AFM}S_{AF}^2 - t_F[ZJ_{FM}S_F^2 + K_{FM}S_F^2] (2.1)$$

Nesse sistema, a variável Z no termo de troca representa o número de vizinhos de cada momento magnético.

Quando os filmes FM e AFM são acoplados, poderá existir uma nova configuração de equilíbrio em que os spins do filme FM saem do eixo z para uma direção que forma um ângulo de 90° com o eixo fácil (4). Logo, para o estado reorientado (parte (B) da Fig. 16), temos:

$$E = ZJ_{AFM}S_{AF}^{2}cos(2\theta) - K_{AFM}S_{AF}^{2}cos^{2}\theta$$
$$-t_{F}[ZJ_{FM}S_{F}^{2}] + 2J_{int}S_{F}S_{AF}sen\theta \qquad (2.2)$$

No cálculo acima foi considerado que $\theta_1 = \theta_2$, pois as duas sub-redes do *AFM* estão submetidas ao mesmo campo de interface.

Manipulando as equações de energia do estado não-acoplado (Eq. 2.1) e do estado reorientado (Eq. 2.2), encontramos as seguintes equações para o acoplamento limiar:

$$J_{int}^* = \sqrt{\frac{t_F K_{FM}}{S_{AF}} (-2Z J_{AFM} S_{AF} + K_{AFM} S_{AF})}$$
 (2.3)

A Eq. 2.3 mostra que o acoplamento limiar cresce com a espessura do FM, ao passo que a Eq. 2.4 indica também que o acoplamento limiar cresce com a espessura do FM.

$$H_{int}^* = \sqrt{\frac{t_F H_u^{FM} S_F}{S_{AF}} (H_{ex}^{AFM} + H_u^{AFM})}$$
 (2.4)

 H_u^{FM} e H_u^{AFM} são os campos de anisotropia uniaxial do filme FM e do filme AFM, respectivamente (4). Nesse cálculo aproximado, foi levado em conta apenas o plano de interface do filme AFM. O número de vizinhos de cada momento magnético é quatro Z=4 (4).

Na Fig. 17, é mostrada a dependência do acoplamento limiar com a espessura do filme FM. As curvas contínuas representam a equação Eq. 2.3 e os pontos são os valores de J^*_{int} obtidos numericamente. As curvas azuis representam a bicamada Fe/MnF₂ e as curvas pretas, a bicamada Fe/FeF₂.

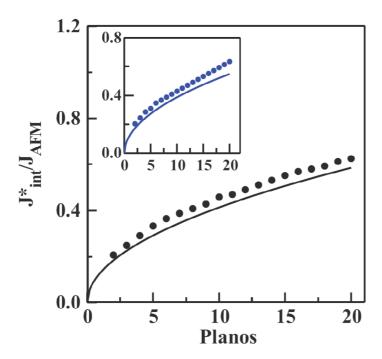


Figura 17: Acoplamento de interface limiar em função do número de planos do filme FM. (Fig. 2.14 da Ref. (4))

De acordo com a figura Fig. 17, os modelos analítico e numéricos concordam muito bem e melhor ainda para filmes FM finos onde o erro é de aproximadamente 5%. Se o filme FM é fino, então a barreira de energia de anisotropia é pequena e, consequentemente, são também pequenos os desvios da ordem AFM do substrato. Por outro lado, é mais provável ter anisotropia uniaxial em filmes FM finos.

Dessarte, acreditamos que qualquer valor de J_{int} maior que o valor dado pela equação Eq. 2.4 produz reorientação. O fenômeno da reorientação está relacionado com as características magnéticas intrínsecas da bicamada. É por isso que a Eq. 2.3 tem relevado valor, pois as alternativas que têm sido usadas para investigar a estrutura magnética da interface FM/AFM fundamentam-se em grandezas físicas extrínsecas (4). Já o exchange bias está associado a um fator extrínseco do sistema.

2.3 Calor específico

O calor específico pode ser utilizado para identificar mudanças de fase na bicamada, como, por exemplo, provar o fenômeno de reorientação e mostrar que a temperatura de reorientação T_R é afetada tanto pela intensidade da troca de interface quanto pela espessura do filme FM. Nesse caso, a energia magnética é dada por:

$$E = \sum_{n} \{ -\frac{K_n}{2} S_{nz}^2 - g\mu_B S_{nz} H \} - \sum_{nm} J_{nm} \vec{S_n} \cdot \vec{S_m}$$
 (2.5)

onde K_n é a anisotropia uniaxial constante para os spins no n-th plano e H é a intensidade do campo externo aplicado ao longo da direção do eixo z. Foram utilizados três parâmetroschave (J_{AFM} , J_{FM} e J_{int}) para descrever a energia de troca no substrato antiferromagnético, o filme ferromagnético e o acoplamento de troca através da interface.

O calor específico dado por $C_V = (\partial E/\partial T)_V$ é encontrado numericamente calculando a diferenças da energia média em temperaturas próximas (4, 5).

Foi mostrado que em altas temperaturas, próximas da temperatura de Néel do substrato antiferromagnético, os momentos magnéticos da interface do substrato antiferromagnético são estabilizados pelo campo de troca da camada ferromagnética, como indicado pelos estados magnéticos apresentados esquematicamente nas primeiras linhas de Fig. 18 (b) e Fig. 18 (c). Entretanto, diminuindo a temperatura, a seqüência das fases magnéticas são diferentes. Para $J_{INT}=0.4J_{AFM}$, quando a temperatura é reduzida existe um flip de um dos spins da interface em cerca de 80% da temperatura de Néel (T_N) do substrato, que não produz nenhuma característica notável em C_V . A reorientação ocorre quando a temperatura é reduzida a 69% de T_N . O estado *transverse canted* dos momentos magnéticos de spin do substrato AFM reduz quando a temperatura é reduzida, como indicado na Fig. 18(b). Quando $J_{INT}=J_{AFM}$, o campo de interface segura a fase à alta temperatura até temperatura muito baixa, quando os momentos magnéticos do FM saem do eixo por um pequeno ângulo (20°) , em $T=0.33T_N$, e então completa a reorientação em $T=0.32T_N$. Nesse caso, o grande pico no C_V é devido ao intenso valor de J_{INT} e ao grande momento médio térmico dos momentos magnéticos AFM, quando ocorrem alterações no seu arranjo espacial.

Portanto, o calor específico determina de forma direta a análise da natureza do acoplamento, ferromagnético ou antiferromagnético, e pode também ajudar a estimar a intensidade do acoplamento de troca da interface.

- 1 O calor específico magnético das bicamadas tem um pico na temperatura de formação do estado reorientado.
 - o pico do calor específico na temperatura de reorientação é alto para substratos
 AFM com alta anisotropia (tais como FeF₂);

 para os substratos AFM de pequena anisotropia (tais como MnF₂), a transição produz pequenos picos na curva de calor específico.

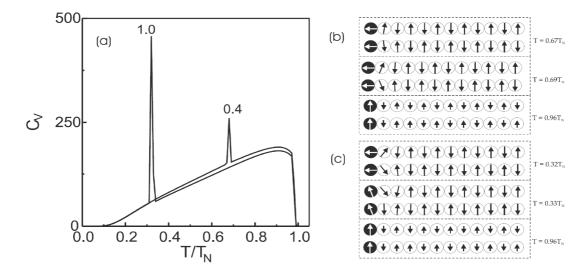


Figura 18: (a) Calor específico de uma bicamada de (110)Fe/FeF₂, com $N_{AFM} = 10$ e $N_{FM} = 11$. Os números nas curvas indicam os valores da troca de interface em unidades do campo de troca intrínseco do antiferromagnético (J_{AFM}). A temperatura é apresentada em unidades da temperatura de Néel e o calor específico é apresentado em unidades da energia de troca do antiferromagnético. Estados magnéticos próximos da temperatura de reorientação para (b) $J_{INT} = 0.4J_{AFM}$ e (c) $J_{INT} = J_{AFM}$. (Fig. 1 do artigo (5))

- 2 Os picos no calor específico das bicamadas FM/AFM são devido a modificações de energia no substrato AFM. A contribuição do filme FM não inclui contribuição de relevância alguma na troca intrínseca e a barreira de anisotropia em filmes uniaxiais é uma pequena quantidade de energia desde que a anisotropia do FM seja pequena.
- 3 A reorientação da magnetização do filme FM induz um *twisted* na região dos planos que ficam próximos à interface do substrato.
 - os desvios da ordem do AFM são maiores quanto maior é a intensidade do acoplamento de troca da interface;
 - isso produz aumento em ambas energias, de troca e de anisotropia, do substrato e conduz `a variação de energia responsável pelos picos no calor específico;
 - desse modo, altos picos no calor específico são marcas de intensa interação de troca de interface.

- 4 Na transição, bicamadas de Fe/Fe F_2 com filmes FM uniaxiais mostram pequenos desvios da ordem AFM. Entretanto, quando a anisotropia do substrato AFM é alta, o custo de energia para mover os momentos magnéticos do eixo fácil é alto, produzindo altos picos no calor específico.
 - para valores baixos do acoplamento de troca da interface, existe um pequeno twist nos planos próximos da interface Fe/FeF₂. Nesse caso, os picos na temperatura de transição no calor específico são difíceis de distinguir do calor específico devido ao decaimento térmico dos momentos magnéticos AFM;
 - ademais, a intensidade do pico do calor específico aumenta por ordem de três magnitudes, para substratos FeF₂, quando a intensidade do acoplamento de troca da interface varia de 0.2*J*_{AFM} para *J*_{AFM}.

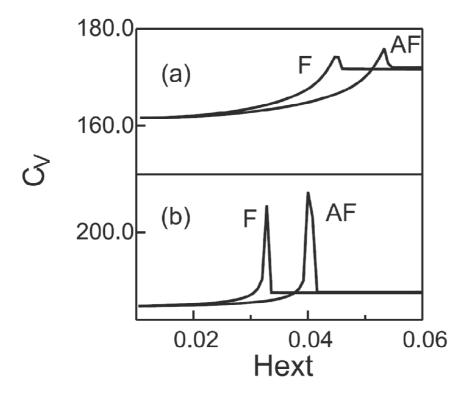


Figura 19: (a) Calor específico de uma bicamada de (110)Fe/FeF₂ com N_{AFM} = 10 e N_{FM} = 5, para (a)T = 0.9 T_N e (b)T = 0.8 T_N . A constante de troca através da interface é dada por J_{INT} = J_{AFM} . O campo externo é apresentado em unidades do campo de troca AFM e o calor específico é mostrado em unidades da energia de troca do AFM. As duas curvas em cada figura correspondem ao acoplamento de interface J_{INT} > 0 e J_{INT} < 0. Note que para acoplamento ferromagnético a transição ocorre para pequenos valores de campo externo. (Fig. (3) do artigo (5))

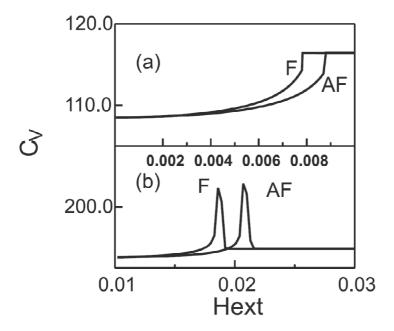


Figura 20: Calor específico de uma bicamada de (110)Fe/FeF₂ com $N_{AFM} = 10$ e $N_{FM} = 10$, para (a) $T = 0.6T_N$ e (b) $T = 0.8T_N$. A constante de troca através da interface é $J_{INT} = J_{AFM}$. O campo externo é apresentado em unidades do campo de troca AFM e o calor específico é mostrado em unidades da energia de troca do AFM. As duas curvas em cada figura correspondem ao acoplamento de interface ferromagnético e antiferromagnético. (Fig. (4) do artigo (5))

Contudo, a temperatura de transição não é afetada significativamente pela intensidade do acoplamento de troca da interface. Temos encontrado que a temperatura de transição é cerca de $0.7T_N$.

Os campos externos afetam o calor específico de diferentes maneiras, dependendo da direção de aplicação. Com relação à influência do campo:

- 1 temos considerado apenas pequenos valores de campo externo que são menores que o campo de anisotropia do filme FM;
- 2 aplicando o campo externo na direção do eixo uniaxial do ferromagneto, o pico do calor específico é reduzido e se desloca para baixas temperaturas;
- 3 o pico do calor específico é deslocado ligeiramente para altas temperaturas se o campo magnético externo for aplicado perpendicularmente ao eixo uniaxial.

Finalmente, embora tenhamos encontrado que modificações do padrão magnético do substrato AFM estejam restritas à região da interface, a transição da reorientação produz claros sinais no calor específico. A transição gera altos picos no calor específico para

substratos AFM de alta anisotropia (tais como FeF₂) e características mais modestas no calor específico para substratos AFM de anisotropia mais baixa, a exemplo do MnF₂.

A altura dos picos está diretamente relacionada à medida experimental do intervalo de temperatura. Esse detalhe capcioso pode ser entendido de maneira melhor quando analisamos a expressão do calor específico apresentada como se segue:

$$C_V = \lim_{\Delta T \to 0} \frac{E(T + \Delta T) - E(T)}{\Delta T}$$
 (2.6)

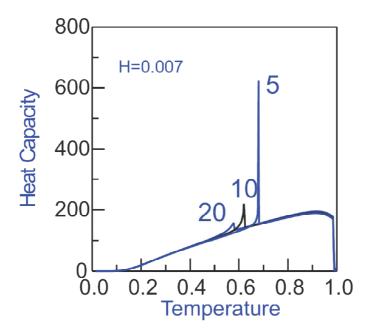


Figura 21: Calor específico de uma bicamada de (110) Fe/FeF₂ com $N_{AFM} = 11$ e $N_{FM} = 10$. A temperatura é apresentada em unidades da temperatura de Néel e o calor específico é mostrado em unidades de E_{exch}/T_N . Um campo externo H = 0.007 é usado e as curvas são para $N_{FM} = 5$, 10, 20. Para $N_{FM} = 20$ não são vistos picos no calor específico. (Fig. (5) do artigo (5))

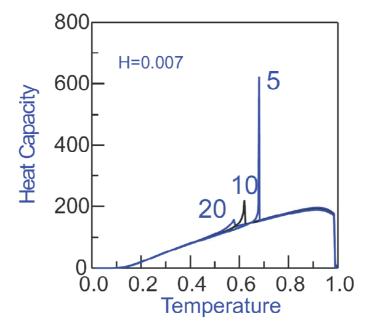


Figura 22: Calor específico de uma bicamada de (110) Fe/FeF₂ com $N_{AFM} = 11$ e $N_{FM} = 10$. Os números nas curvas indicam o valor do acoplamento de interface em unidades da constante de troca intrínseca do AFM. A temperatura é apresentada em unidades da temperatura de Néel e o calor específico é mostrado em unidades de E_{exch}/T_N . Nota-se que para anisotropia cristalina a intensidade da interface de troca não afeta fortemente a posição do pico no C_V . (Fig.(5) do artigo (5))

Capítulo 3

Histereses térmicas em sistemas magnéticos

À medida que o tempo passa, a humanidade tem admirado e dado atenção aos materiais magnéticos. Aliás, houve momentos nos quais o conhecimento acerca das propriedades magnéticas desses materiais foi de suma importância para a resolução de alguns problemas vitais, a exemplo daquele solucionado por Louis Néel na Segunda Guerra Mundial (6). A partir do início do século XXI tivemos investimentos altíssimos em partículas magnéticas de escala nanométrica, também conhecidas como nanoelementos ou nanomagnetos. Uma prova do grande interesse da ciência e da engenharia nos últimos anos por esses materiais são os 8 bilhões de dólares gastos mundialmente em pesquisa. Os Estados Unidos destaca-se entre as potências que mais investem nos nanomateriais, com uma cifra anual superior a 1 bilhão de dólares (55). Toda essa curiosidade por esses materiais deve-se à potencial aplicabilidade deles em dispositivos para armazenamento de dados, sensores de campo magnético, aplicações biomédicas, energia, usos militares. Nanomateriais podem ser utilizados para projetar nanotransistores, desenvolver o transporte de drogas dentro do corpo para o combate a doenças de forma localizada, criação de armas militares etc. (55).

Tradicionalmente, materiais magnéticos são classificados por sua coercividade magnética ou dureza. O termo é histórico e refere-se ao ferro, no qual a adição de carbono aumenta não somente a dureza mecânica (aço), mas também a coercividade. Em ordem descendente, a dureza fornece o surgimento para a classificação em magnetos duros (magnetos permanentes), mídia de gravação e magnetos macios (7). Os magnetos permanentes podem aplicam-se em microfones, *drivers* de discos rígidos, eletromotores, fechaduras etc. Já na mídia de gravação magnética, esses materiais são usados na tecnologia audiovisual e nos computadores. Por último, com os materiais magnéticos macios utilizamos-lhes vastamente para guiar o fluxo em magnetos permanentes e outros sistemas, no interior de transformadores, para aplicações em micro-ondas e altas freqüências, e em cabeçotes de gravação.

Como vimos, as partículas magnéticas em escala nanométrica formam uma área nova, rica e em crescimento na física da matéria condensada. Essas partículas, por sua vez, apresentam uma série de características que servem para indicar as possíveis aplicabilidades de tais nanoelementos. O conjunto dessas qualidades chama-se anisotropia magnética cujas

formas mais comuns são: anisotropia cristalina ou magnetocristalina; de forma; de *stress* ou magnetostrição; de superfície e de troca (de intercâmbio, ou *exchange anisotropy*) (56).

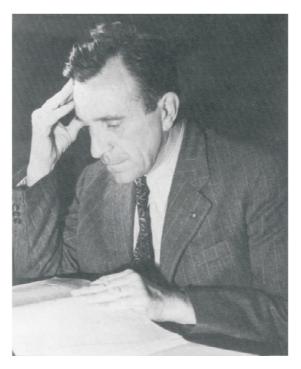


Figura 23: Louis Néel; 1904 – 2000. (Fig. 1 da Ref. (6))

É notável que a anisotropia magnética apresenta competições de várias origens sendo a anisotropia de forma a mais forte devido à interação magnética dipolo-dipolo, na qual induz a bem conhecida magnetização no plano fácil dos filmes finos (21). As formas quadrangular, triangular, elíptica, pentagonal e circular, associadas a espessura e ao tamanho dos nanomagnetos são fatores importantíssimos na determinação das propriedades magnéticas. Tais fatores ligam as propriedades magnéticas de um nanomagnetos pelos fenômenos: anisotropia configuracional, competição entre a energia de troca e a energia magnetostática. Enfim, a influência da forma dos nanoelementos é muito importante porque abre caminho para projetar novos materiais magnéticos nanoestruturados em que as propriedades magnéticas podem ser fabricadas para uma aplicação particular com um grau de precisão muito elevado (57).

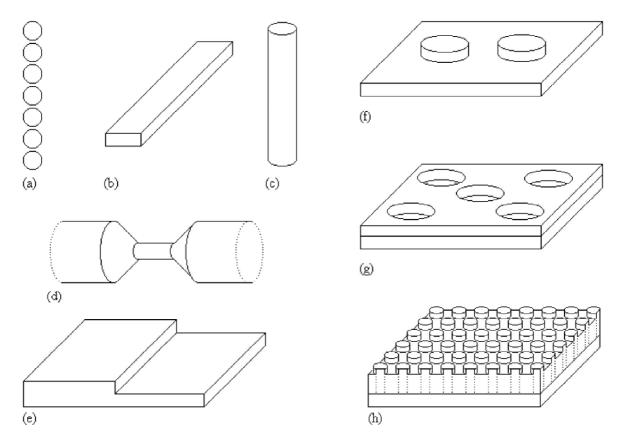


Figura 24: Geometria de nanoestruturas típicas: (a) cadeia de partículas finas, (b) *striped* de nanofio, (c) nanofio cilíndrico, (d) nanojunção, (e) *step* de superfície vicinal, (f) nanopontos, (g) antipontos e (h) *particulate medium*. (Fig. 2 da Ref. (7))

Mas o principal efeito usado na gravação é a anisotropia magnetocristalina que é um efeito atômico correlacionado à simetria imediata do ambiente atômico visto que o armazenamento magnético de informação binária exige a criação de uma barreira de energia entre duas orientações opostas da magnetização, capaz de parar reversões excitadas termicamente (21).

A essa altura, dá para notar que o progresso da "eletrônica de spins" não é separável do desenvolvimento do nanomagnetismo (21). A engenharia das propriedades magnéticas a nível atômico em multicamadas foi desenvolvida em paralelo ao efeito GMR capacitando-o.

A descoberta revolucionária da magnetoresistência gigante (GMR), em 1988, pelo grupo de Fert, Nobel de Física de 2008, promoveu um grande salto na capacidade de armazenamento e leitura de dados dos computadores (1). Tendo conhecimento acerca do efeito magnetoresistivo, o grupo liderado pelo físico Parkin desenvolveu o dispositivo válvula de spin que tem como uma de suas principais vantagens econômicas a capacidade de obter efeitos magnetoresistivos a campos magnéticos mais baixos, resultando num menor gasto energético gerado pelos cabeçotes de gravação. O acoplamento de uma camada

ferromagnética sobre uma camada antiferromagnética que funciona como substrato fez toda essa diferença, assim como abriu um leque de opções para o estudo de vários sistemas nanomagnéticos sujeitos a acoplamentos, a exemplo de (18).

Torna-se, então, perceptível que características como sensibilidade e intensidade do campo de saturação sirvam para selecionar materiais para aplicação em sensores GMR. Cada material tem suas vantagens e desvantagens quanto à sua determinada aplicação como dispositivo magnetoeletrônico e, embora o material focado neste trabalho seja a bicamada FM/AFM compensada, não podemos deixar de citar a existência de outros sistemas de materiais que exibem GMR conforme a tabela 1.1 (4).

Tabela 1: Comparação de propriedades típicas de materiais que exibem GMR.

	1 3 1 1	1 1	
	% Magnetoresistência	Campo de saturação (Oe)	Sensibilidade $(\%/Oe)$
AMR	2	5-20	0,4
Multicamadas	10-80	100-2000	0,1
Granulares	8-40	800-8000	0,01
Válvula de Spin	5-10	5-50	1,0
Sanduíches	5-8	10-40	0,5
CMR	100	1000	0,1
Tunelamento	10-25	5-25	2,0

É sabido que a gravação magnética termicamente assistida pode resolver problemas fundamentais concernentes à flutuação térmica e capacidade de escrita em gravação magnética, e é considerada como tecnologia-chave para atingir densidades superiores a $1Tbit/in^2$ (19). Em outras palavras, a TAMR (Thermally Assisted Magnetic Recording) é uma maneira promissora para driblar o limite superparamagnético que enfrenta a gravação magnética convencional (veja Fig. 3).

Motivados pela tecnologia de gravação magnética, histereses térmicas têm sido, recentemente, amplamente estudadas em um número significativo de sistemas magnéticos nanoestruturados. O considerável interesse voltado, principalmente, para aplicações magnetoeletrônicas é devido às pequenas diferenças de energia entre dois estados metaestáveis, o que pode levar o sistema a uma bi-estabilidade térmica (16).

3.1 Multicamadas magnéticas

Nos últimos anos as multicamadas têm recebido bastante atenção, pois representam uma nova classe de materiais em que efeitos de superfície e interface influenciam

fundamentalmente as propriedades do material inteiro; uma rica variedade de estruturas e comportamentos são possíveis; a importância dos efeitos de superfície e interface podem ser controlados por padrão de empilhamento e, por último, as propriedades das multicamadas magnéticas podem ser substancialmente modificadas por pequenos campos magnéticos externos (22). Por outro lado, sabemos que as histereses térmicas são um velho assunto com discussões sobre mudanças de fases de água/gelo desde Fahrenheit e Black no século XVIII (58).

Vejamos agora alguns sistemas em que o fenômeno histerese térmica foi estudado e onde o mesmo mostrou-se de maneiras diferentes de acordo com as características de cada material.

3.1.1 Metais de transição/terras raras (MT/TR)

Estudos de gravação magnética mostram que materiais de alta anisotropia são mais estáveis termicamente. Por outro lado, a gravação requer campo mais intenso, podendo dificultar a viabilização tecnológica. Como alternativa, está em desenvolvimento a técnica da gravação termicamente assistida onde a partícula magnética é aquecida por um LASER, diminuindo a barreira de energia de anisotropia, sendo, consequentemente, o campo de gravação necessário menor. A viabilidade da técnica depende do controle do estado magnético da partícula, principalmente depois do resfriamento.

Motivados por essa e outras necessidades da indústria magnetoeletrônica, histereses térmicas têm sido estudadas em vários tipos de multicamadas. No caso de multicamadas de MT/TR, temos como exemplos: Co/Gd, CoNi/Gd e Fe/Gd. Nessas estruturas, as camadas são acopladas antiferromagneticamente e o ciclo térmico, aquecimento/resfriamento, é feito na presença de um campo externo aplicado. Estudos mostram que as curvas histeréticas de magnetização, como função da temperatura, apresentam um formato "gravata-borboleta" (58). Logo, nas diferentes facetas ao longo das transições de fase magnética entre um metal de transição (Fe, Co, CoNi)/ multicamadas do terra rara gadolíneo (Gd), podemos evidenciar que o intervalo de histerese é função da intensidade do campo aplicado e dos materiais constitutivos (58). Um ponto atraente no estudo de histereses térmicas em multicamadas compostas por Gd é o fato de sua temperatura de Curie (T_C) ser a temperatura ambiente. Contudo, para haver histerese térmica é necessário que haja dois estados que estejam estáveis à mesma temperatura.

A maioria dos materiais magnéticos experimentam transição de fase estrutural e magnética (10). A propriedade fundamental dos sistemas ferrimagnéticos artificiais é o acoplamento antiferromagnético (J < 0) que existe entre o metal de transição e o terra rara pesado como, por exemplo, Gd ou Tb, sendo que o sistema apresenta momento magnético total zero na temperatura de compensação (T_{comp}) (10).

Multicamadas de Fe/Gd, Co/Gd e CoNi/Gd têm sido estudadas experimental e teoricamente. Resultados experimentais, em acordo com modelos teóricos vigentes, apresentam significantes histereses térmicas. A largura da histerese térmica pode ser controlada pela intensidade do campo magnético externo (58).

Em multicamadas constituídas por Fe/Gd, além da intensidade do campo aplicado durante o processo térmico, vários parâmetros intrínsecos são relevantes: as anisotropias dos materiais constitutivos, a energia de troca através da interface, bem como as diferenças nas temperaturas de Curie e magnetizações de saturação (13).

O sistema Fe/Gd comporta-se da seguinte maneira:

- 1 Em altas temperaturas, o sistema encontra-se no estado em que a magnetização de Fe fica alinhado com o campo magnético externo e a magnetização de Gd está orientada no sentido oposto ao campo.
- 2 Mas, à medida que a temperatura começa a cair no processo de resfriamento, os momentos magnéticos de spin do Gd começam a aumentar até uma temperatura abaixo da temperatura de compensação do sistema onde, finalmente, acontece a reversão da orientação dos momentos magnéticos de spin das camadas de Fe e Gd, ficando o sistema agora na situação denominada de estado Gd alinhado.
- 3 Porém, tais configurações, Fe alinhado ou Gd alinhado, existem quando o campo magnético externo é relativamente baixo, pois quando é alto, tanto os momentos magnéticos do Fe quanto os do Gd ficam, ambos, *canted* em relação ao campo magnético externo, exibindo o estado denominado *spin-flop like* (8).

Na Fig. 25, temos uma ilustração do comportamento do sistema Fe/Gd.

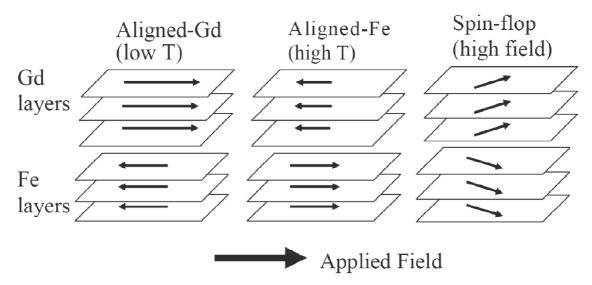


Figura 25: Ilustração das três principais fases na super-rede Fe/Gd. Na fase *Gd-alinhado* a média térmica dos momentos do Gd é alta e estão alinhados com o campo externo. Na fase *Fe-alinhado* à mais alta temperatura os momentos do Gd são pequenos e os momentos do Fe alinham com o campo. (Fig. (1) da Ref. (8))

Nesse sistema é notável que a magnetização de um material muda mais rapidamente com a temperatura do que o outro. A média térmica dos momentos magnéticos do Gd varia de $7\mu_B$ a zero, ao passo que a temperatura varia de valores muito baixos a 300K(8).

A situação geral de uma multicamada Fe/Gd é muito complicada e, de fato, apresenta dramáticos efeitos de superfície. Podemos, entretanto, obter alguma visão eficiente usando um modelo simples que inclui a energia *Zeeman* de cada filme no campo aplicado, a energia de troca interfacial entre dois filmes e uma anisotropia uniaxial no filme 1(Fe) (8). Logo, chegamos a seguinte expressão:

$$E = -H * (t_1 m_1 \cos \theta_1 + t_2 m_2 \cos \theta_2)$$

- $J m_1 m_2 \cos(\theta_2 - \theta_1) - t_1 m_1 H_a \cos^2 \theta_1$ (3.1)

onde m_1 é a magnetização do filme 1; t_1 é a espessura do filme 1; H é o campo magnético externo; θ_1 é o ângulo entre m_1 e H. Já t_2 , θ_2 e m_2 são valores para o Gd. H_a é o campo de anisotropia, assumido existir no filme 1(Fe) apenas por simplicidade da mesma forma que a sua respectiva localização na mesma direção da medida do campo (8).

A minimização da energia magnética Eq. 3.1 fornece as configurações de equilíbrio do sistema com a magnetização da camada de Gd dada por:

$$m_2 = \frac{t_1(\pm H^2 t_2 + m_1 H J + 2H_a H t_2 \pm 2H_a m_1 J)}{J t_2 H} \qquad , \tag{3.2}$$

uma vez que o Gd, nesse intervalo de temperatura, é mais sensível a mudanças de temperatura do que o Fe. Consequentemente, o campo máximo que permite histerese térmica é dado por:

$$H_m = \sqrt{-2H_a m_1 J/t_2} (3.3)$$

Com ela, podemos agora entender o que acontece com a histerese térmica quando modificamos a espessura, a constante de acoplamento antiferromagnético e o campo de anisotropia. Quando o acoplamento AFM é fraco, os spins ficam *canted* na interface a baixos campos magnéticos externos e isso pode ser verificado no gráfico da Fig. 26:

A parte interna às curvas representativas do estado Gd-*alinhado* estável e Fe-*alinhado* estável da Fig. 26 mostra onde existe a bi-estabilidade térmica, que é a condição *sine qua non* para a realização da histerese térmica. Outro detalhe interessante no sistema de multicamadas Fe/Gd é que a largura da histerese da estrutura em condições de volume é aproximadamente o dobro da finita (8), como apresentamos na Fig. 27.

Em suma, temos demonstrado teórica e experimentalmente um sistema original o qual apresenta uma curva de histerese que pode ser significativamente mudada pela aplicação de um campo magnético externo. Embora o presente trabalho concorde com o sistema específico, Fe/Gd, ele é aplicável para toda uma série de estrutura de camadas onde a dependência da temperatura de um material é substancialmente diferente daquela de um outro (8).

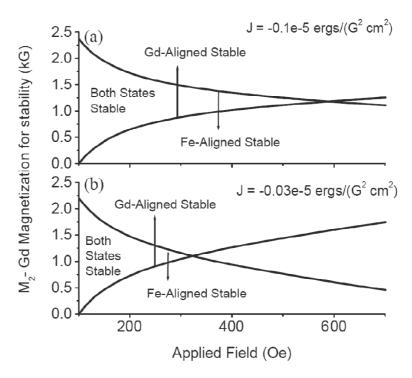


Figura 26: Limites de estabilidades para os estados em que o Fe ou o Gd estão alinhados com o campo magnético aplicado. Para baixos campos aplicados ambos estados, acima de uma faixa dos valores de magnetização para o Gd, são estáveis. (a) mostra o diagrama de fase para um forte acoplamento interfacial antiferromagnético e (b) apresenta o diagrama de fase para acoplamento interfacial antiferromagnético menor. Como o acoplamento antiferromagnético é aumentado, a região onde ambos estados são estáveis também aumenta. (Fig. (2) do artigo (8))

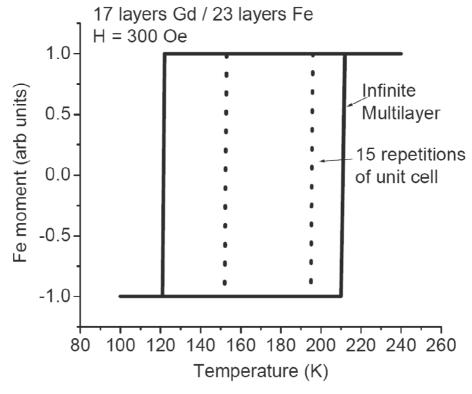


Figura 27: Curva teórica de histerese térmica para uma multicamada finita e infinita de Fe/Gd. A célula unitária é Gd₁₇/Fe₂₃ em ambos os casos. O campo aplicado é 300 Oe. (Fig. 5 da Ref. (8))

Outro sistema magnético tem chamado atenção devido aos efeitos de interdifusão serem reduzidos, apresentando propriedades semelhantes ao sistema clássico Gd/Co. Trata-se das multicamadas de Gd_{0.47}Co_{0.53}/Co, cujas características principais, tais como, temperatura de compensação, transições *spin-flop*, histereses térmicas, são preservadas (9).

A estrutura aproximada da amostra é [Co_t/(Gd_{0.47}Co_{0.53})100 Å]_{×20}/Co_t, variando a espessura da camada de Co entre 20 e 50 Å. Poder variar o parâmetro de espessura *t* é muito útil porque nos permite variar a magnetização relativa entre as camadas e, com isso, obter, então, o controle sobre a temperatura de compensação da amostra (9). A temperatura de compensação é uma característica marcante nas ligas ferrimagnéticas de Gd/Co, nas multicamadas e o surgimento dela deve-se a uma mudança dramática que a magnetização das camadas de Gd sofre com a variação de baixas temperaturas até 300*K*, em contraste com o valor quase constante para a magnetização das camadas de Co. As ligas de Gd_{0.47}Co_{0.53} apresentam comportamento semelhante ao do Gd puro, assim como a temperatura de Curie delas é próxima de 300*K* (9).

Na Fig. 28, a temperatura de compensação varia conforme a espessura do Co. Assim:

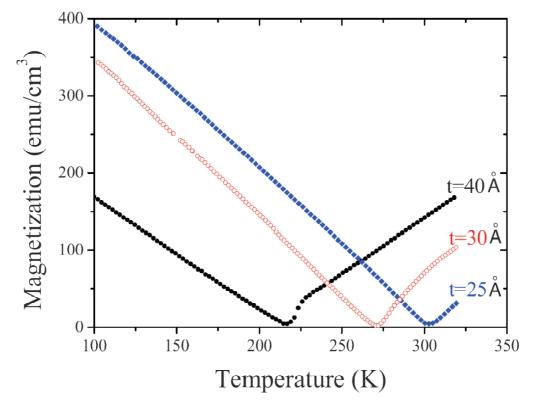


Figura 28: Magnetização como função da temperatura para três amostras em série de $[\text{Co}_t/(\text{Gd}_{0.47}\text{Co}_{0.53})100 \text{ Å}]_{\times 20}/\text{Co}_t$ com $t=25 \text{ Å}(\circ)$, 30 Å(\circ), e 40 Å(\bullet) apresentando uma sensibilidade da temperatura de compensação com a variação da espessura. Os campos aplicados durante o experimento foram de 50Oe para t=25 Å e 30Å e 100Oe para t=40 Å. (Fig. 4 da Ref. (9))

- 1 Em baixas temperaturas os momentos magnéticos das super-redes de Gd_{0.47}Co_{0.53}/Co estão alinhados paralelamente ao campo magnético externo uma vez que o sistema se encontra numa temperatura menor que a temperatura de compensação.
- 2 Acima da temperatura de compensação, ocorre o contrário e não devemos deixar de salientar que a histerese térmica aparece em campos magnéticos abaixo de certo valor.

A histerese térmica do sistema Gd_{0.47}Co_{0.53}/Co tem o formato gravata-borboleta, assim como é a histerese térmica em sistemas constituídos de Fe, Co, CoNi/Gd e também como aquela encontrada com a aplicação de altos campos magnéticos externos sobre o sistema Co/Tb. O estudo do sistema Gd_{0.47}Co_{0.53}/Co traz muitas vantagens porque esse sistema possui uma estrutura artificial melhorada na qual efeitos de interdifusão são desprezados e todas as características associadas com tais efeitos são mais facilmente identificadas, ao contrário de sistemas mais miscíveis, a exemplo do Gd/Co e Gd/Fe (9).

É notável que o custo de energia associado com a reversão da direção das duas superredes explica a ocorrência da reversão da magnetização a temperaturas menores do que a temperatura de compensação (T_{comp}), temperatura esta denominada de temperatura de reversão (T_r) (9). A Fig. 29 apresenta duas temperaturas de reversão, sendo uma abaixo da temperatura de compensação e outra acima, uma vez que correspondem aos processos de aquecimento e de resfriamento durante o ciclo de histerese térmica no qual a diferença entre as duas temperaturas de reversão fornece-nos o valor da largura da histerese térmica. A Fig. 29 também mostra que as temperaturas de reversão dependem da intensidade dos campos magnéticos aplicados, ao passo que a temperatura de compensação não depende do campo externo aplicado e sim da relação de espessura da super-rede. A intersecção entre as curvas de aquecimento e resfriamento indica a localização da T_{comp} , mesmo porque é nessa intersecção que o momento magnético total da amostra é zero (significando momentos magnéticos iguais para as duas super-redes). Uma transição spin-flop faz com que haja uma assimetria próxima à T_{comp} quando não temos histerese térmica (H = 500Oe).

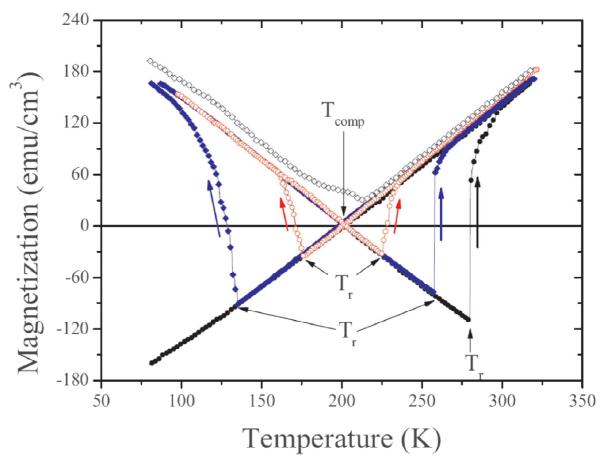


Figura 29: Magnetização em função da temperatura durante o ciclo térmico de aquecimento e resfriamento para uma amostra com espessura t=40 Å submetidas a diferentes campos magnéticos: H=10 (•), 20 (•), 40 (°), e 500 Oe (•). O campo foi aplicado alongo do eixo fácil. A indicação de cada medida é indicada pelas setas, como também a posição da temperatura de compensação (T_{comp}) e a temperatura de reversão (T_r) em cada caso. A histerese térmica só não é vista quando o campo aplicado for de 500 Oe. (Fig. 6 da Ref. (9))

Como as multicamadas de Gd_{0.47}Co_{0.53}/Co possuem propriedades interfaciais melhoradas, temos encontrado que os resultados teóricos vão ao encontro aos resultados experimentais. Acima de tudo, é assumida, em ambos os resultados, uma interface praticamente perfeita (9). Outro fato importante a ser mencionado é com relação a assimetria da histerese térmica esboçada na Fig. 30.

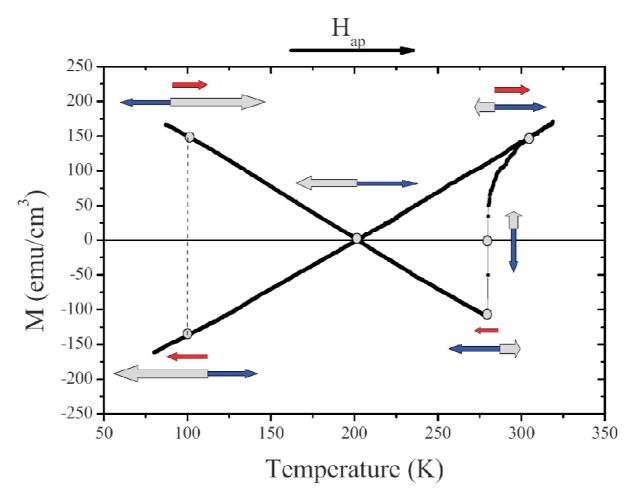


Figura 30: Esboço esquemático da estrutura magnética de cada super-rede e a magnetização total das amostras ao longo de um laço experimental completo de M versus T. A seta grossa representa o momento total da super-rede $Gd_{0.47}Co_{0.53}/Co$, a fina corresponde a super-rede do Co, e a seta acima dessas duas é associada com a magnetização total da amostra (note que a magnetização é zero na T_{comp}). A direção do campo magnético externo durante o experimento é indicado no topo da figura. As linhas pontilhadas comparam dois estados equivalentes (mesma temperatura) antes e depois da reversão da magnetização. (Fig. 7 da Ref. (9))

Vamos assumir que a magnetização do Co permanece aproximadamente constante acima do limite da medida e considerar dois pontos de cada lado da T_{comp} sobre a curva M versus T com a mesma magnetização, dita M_o .

- 1 O momento da liga é maior do que o momento do Co por um M_o em baixas temperaturas;
- 2 O momento da liga é menor do que o momento do Co por um M_o em altas temperaturas;
- 3 Logo, a barreira de energia requerida para reverter a magnetização é mais alta a temperaturas mais baixas porque os momentos para serem girados são maiores;

- 4 Consequentemente, ambas as assimetrias (posição e profundidade mínima) são uma conseqüência da magnetização da super-rede de Gd_{0.47}Co_{0.53}, sendo mais alta a temperaturas mais baixas;
- 5 Isso também explica por que o salto acima da T_{comp} é geralmente mais íngreme do que o salto abaixo da T_{comp} (9).

O Gd é um íon s e possui uma anisotropia muito pequena que serviu de incentivo para o estudo das multicamadas de Gd/Fe e Gd/Co. Essa característica é encontrada parcialmente nas ligas de $Gd_{1-x}Co_x$. Além disso, o acoplamento entre Co e Gd é perfeitamente antiparalelo, diferente para outros terras rara, tais como o Tb e Dy. Temos aproveitado a vantagem da anisotropia uniaxial que aparece nas multicamadas, principalmente devido às camadas policristalinas de Co, para estudar os efeitos dessa anisotropia sobre a histerese térmica (9). A Fig. 31 mostra a influência da anisotropia uniaxial.

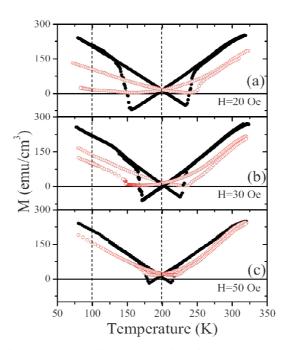


Figura 31: (Color online) Laços de histerese térmica tirados em ambas direções, fácil (círculos cheios) e difícil(círculos abertos), da anisotropia sobre a amostra, com t=40 Å a diferentes campos: H=200e [painel (a)], H=300e [painel (b)], e H=500e [painel (c)]. Note que a temperatura de reversão não depende da anisotropia, mas a forma de mínimo, correspondendo às reversões dinâmicas, é muito diferente. A linha pontilhada a 200K marca a posição da temperatura de compensação, independente do campo e anisotropia. (Fig. 9 da Ref. (9))

A forma da curva na Fig. 31, onde é mostrada a variação da magnetização em função da temperatura (laço de histerese térmica), depende fortemente da direção da medida, embora

observemos que a temperatura de reversão T_r depende apenas do campo aplicado e pode ser associada a um ponto de mínimo M quando na direção difícil.

Em multicamadas compostas por CoNi/Gd (10), o acoplamento através da interface é antiparalelo e o que acontece no sistema é o seguinte:

- 1 Em baixas temperaturas ($T < T_{comp}$), o sistema está no estado Gd alinhado, pois os momentos magnéticos do Gd são maiores do que os do CoNi, fazendo com que os momentos do CoNi fiquem antiparalelos ao campo magnético externo;
- 2 Quando ($T > T_{comp}$), os "papéis" invertem-se e temos agora os momentos magnéticos do Gd apontados em sentido oposto ao campo externo enquanto os momentos do CoNi ficam na mesma direção e sentido do campo externo, caracterizando assim o estado CoNi alinhado (10).

É importante dizer que estados *twisted* podem aparecer quando temos os momentos magnéticos do sistema com ângulos diferentes de 0° e 180° em relação ao campo aplicado (10).

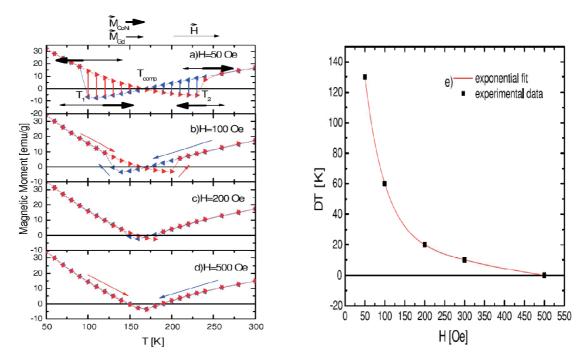


Figura 32: Dependência da temperatura de momento magnético para CoNi(1.5nm)/Gd(2nm) para diferentes campos magnéticos externos e larguras de histereses térmicas como uma função do campo aplicado. No topo da figura, as setas finas e grossas indicam os momentos do Gd e o CoNi respectivamente. Em (a) momentos magnéticos com respeito a direção do campo externo são apresentados em torno das temperaturas de transição T_1 e T_2 . As linhas verticais ilustram a região onde as duas fases coexistem. Em (b) e (d) as setas são usadas para indicar a direção durante a medida: resfriamento de 300 a 50K (setas azuis) seguido pelo processo de aquecimento (setas vermelhas). (Fig. 1 da Ref. (10))

Na Fig. 32, temos os seguintes dados:

Tabela 2: Tabela de histerese térmica.

Tabela 2. Tabela de misterese termica.				
Figura	Campo Aplicado	Largura da Histerese Térmica		
(a)	50 Oe	130 K		
(b)	100 Oe	60 K		
(c)	200 Oe	20 K		
(d)	500 Oe	zero		

Quando o campo magnético externo é de 500Oe, temos a reversibilidade dos ciclos de aquecimento e resfriamento na qual aparece a temperatura de compensação de sistemas ferrimagnéticos como único mínimo, uma vez que não temos histerese térmica. Já a letra (e) da Fig. 32 trata de um ajuste exponencial que mostra que a largura da histerese térmica diminui à medida que a intensidade do campo magnético externo aumenta (10). No modelo teórico utilizado para descrever o sistema, foi considerado que o campo de anisotropia (H_a) não depende da temperatura e está na mesma direção do campo aplicado. O campo de anisotropia ainda é utilizado para explicar a estabilidade da fase Gd alinhado e da CoNi alinhado acima de certa extensão de temperatura (10). A expressão para a energia fica então:

$$E = -HM_{TM}\cos\theta_1 - HM_{RE}\cos\theta_2 + JM_{RE}M_{TM}\cos(\theta_2 - \theta_1) - M_{TM}H_a\cos\theta_1^2 \qquad (3.4)$$

Verificamos que o sistema (CoNi_{2nm}/Gd_{2nm}) pode apresentar a temperatura de compensação diminuída desde que sejam adicionados mais sistemas CoNi. Observemos a Fig. 33, que apresenta uma $T_{comp} = 65K$.

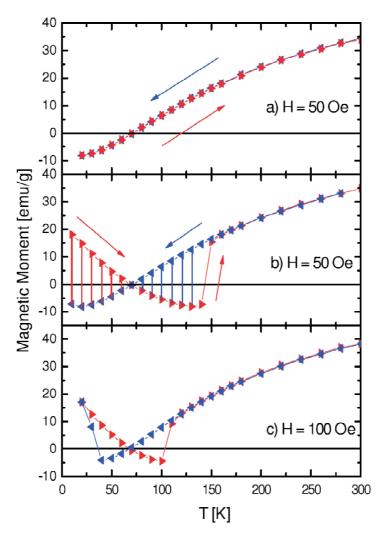


Figura 33: Dependência da temperatura do momento magnético para ($CoNi_{2nm}/Gd_{2nm}$) para diferentes campos magnéticos externos. As linhas verticais apresentam a região onde as duas fases coexistem. A direção durante a medida é indicada pela seta. Em (a), a H = 50Oe, o ponto inicial para medida é 300K e não é observado transição de fase. Em (b), a H = 50Oe, o ponto inicial para medida é 10K e a transição de fase de primeira ordem é observada durante o processo de aquecimento. (Fig. (4) do artigo (10))

Observamos o seguinte:

- 1 Uma vez que a anisotropia da multicamada é, agora, maior do que a energia *Zeeman*, as multicamadas permanecem no estado CoNi alinhado durante o resfriamento de 300 a 10*K* e seguem o mesmo caminho durante o aquecimento de volta a 300*K*(parte (*a*) da Fig. 33);
- 2 Se o sistema está em baixas temperaturas, fase Gd alinhado, durante o aquecimento experimenta uma transição de fase muito estreita à temperatura de 140K, como mostra a parte (b) da Fig.33. Ao contrário, a primeira camada estudada tem duas transições de fase para esse campo aplicado de 50Oe independente do ponto inicial;

3 - Na parte (c) da Fig.33, duas transições de fase são observadas abaixo de um campo de 1000e, sendo a primeira a $T_1 = 40K$ e a segunda a $T_2 = 100K$ durante o ciclo de resfriamento e aquecimento, respectivamente.

O que podemos observar nesses últimos gráficos é que houve apenas uma transição de fase ou nenhuma quando os campos magnéticos externos aplicados são baixos, sendo que o surgimento de tais transições estão vinculadas à escolha dos pontos iniciais de medida de M(T).

O fenômeno da histerese térmica não ocorre apenas em sistemas de multicamadas magnéticas, mas também em ligas ferrimagnéticas de CoGd em que a largura da histerese térmica é também controlada por campo magnético externo, apresentando curva do tipo gravata-borboleta como função da temperatura (11).

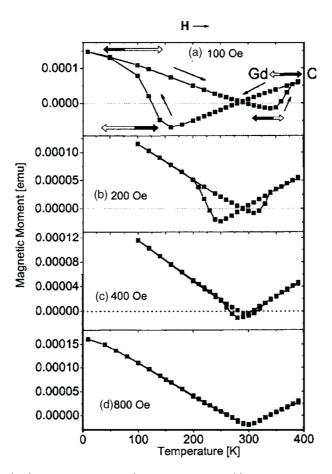


Figura 34: Histerese térmica com aumento dos campos magnéticos externos para liga de $[Co_{0.8}Gd_{0.2}]_{2nm}$. As direções de magnetização do Co e do Gd são mostradas como setas pretas e brancas, respectivamente. O campo magnético externo, \mathcal{H} , aponta para a direita como mostrado na figura. (Fig. 1 da Ref. (11))

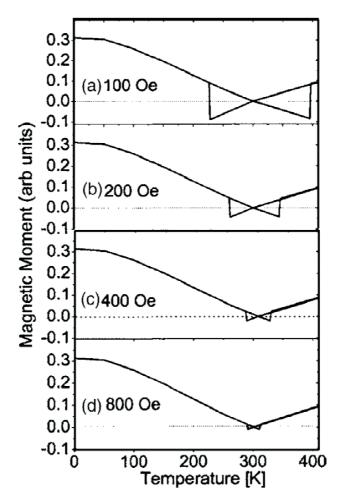


Figura 35: Cálculos teóricos para magnetização em função da temperatura para liga de [Co_{0.772}Gd_{0.228}]_{2nm}. A teoria está em bom acordo com os resultados experimentais da Fig. 34. (Fig. 2 da Ref. (11))

Em se falando de ligas, elas podem ter muitas vantagens tecnológicas sobre sistemas de multicamadas. Eis alguns porquês:

- 1 Sistemas de multicamadas frequentemente dependem de maneira sensível das propriedades da interface, a exemplo do grau de mistura ou de suavidade da interface;
- 2 Sistemas de multicamadas podem ser uniformes, uma vez que um filme pode ser um pouco mais espesso ou mais fino do que um filme equivalente em uma porção diferente da estrutura;
- 3 Sistemas de multicamadas podem ter fortes efeitos de superfície, uma vez que na superfície não há a mesma troca de acoplamento como a que ocorre na porção central;
- 4 A temperatura operacional para histerese térmica em ligas de CoGd é centrada em torno da temperatura ambiente, bem acima daquela encontrada em sistemas de multicamadas.

O interessante é que pequenas mudanças na composição da liga poderia mudar a temperatura operacional para 400K (11).

É sabido que para existir histerese térmica é preciso haver dois estados que sejam estáveis na mesma temperatura, e na liga não é diferente. Nessa liga, os momentos do Co e Gd têm forte acoplamento de troca antiferromagnético e são dispostos antiparalelamente uns aos outros. O comportamento da liga CoGd é:

- 1 Em altas temperaturas, o sistema está no estado Co alinhado no qual a magnetização do Co está alinhada com o campo magnético externo, sendo que o momento magnético de spin do Gd aponta em sentido oposto;
- 2 Já em baixas temperaturas, a configuração do sistema inverte-se e o momento do Gd passa a se orientar na direção do campo magnético externo, ao passo que o momento do Co fica orientado em sentido oposto (11).

Outro detalhe a ser ressaltado é que a temperatura de compensação do sistema é de 300*K* e as histereses térmicas do tipo gravata-borboleta das ligas de CoGd apresentam largura que varia de 0 a 190*K*, dependendo do valor do campo magnético externo aplicado (11).

3.1.2 Filmes finos de Dy

Já um outro elemento pertencente à família dos lantanídeos vem sendo utilizado na formação de multicamadas de filmes finos magnéticos. Trata-se do terra-rara Dy, cuja histerese térmica:

- 1 Pode se originar devido a efeito combinado da dependência na temperatura da anisotropia hexagonal e de efeitos de superfície;
- 2 Pode ser absolutamente controlada por campo magnético externo, em campos relativamente baixos, que variam de 50*Oe* a 1.5*kOe*, menores que os valores típicos de campo magnético externo requeridos para induzir transições de fase em volume de Dy (13);
- 3 Pode ser extremamente larga, cobrindo todo o intervalo de temperatura entre as temperaturas de Curie e Néel (13);
- 4 Em filmes finos de disprósio, depende da espessura, sendo que em filmes ultra finos, o Dy apresenta uma modesta histerese térmica (13);

5 - Apresenta, acima de determinada espessura crítica do filme, o surgimento de um estado hélice alternado (com hélices compreendidas com sentido de rotação oposto dentro do filme) que conduz ao aumento do momento magnético de spin na direção do campo magnético externo aplicado, comparado com aquele do estado helicoidal simples (13).

O estado helicoidal (estado H) e o estado hélice alternada (estado HA) são estáveis à mesma temperatura, resultando na larga diferença entre curvas de magnetização de mesmo campo que correspondem aos processos de aquecimento (estado HA) e resfriamento (estado H).

Não é somente nos filmes finos de metais de transição que efeitos de superfície e de tamanho finito possuem influência (sobre as características de tais filmes). No Dy, os mesmos efeitos acabam adicionando novas características às fases magnéticas de filmes finos por dois motivos:

- 1 superfícies introduzem modificações do campo de troca, atuando sobre os spins na região próxima à superfície, e mudam a estabilidade do estado helicoidal (*estado H*);
- 2 a perda de segundos vizinhos de troca antiferromagnética favorece um alinhamento ferromagnético próximo à superfície de spins que leva a novas fases magnéticas (13).

Os efeitos de superfície, como o próprio nome diz, são aqueles que acontecem na superfície, pois inexistem momentos magnéticos de spin que sejam primeiros vizinhos e até segundos vizinhos mais próximos, desencadeando uma menor energia de troca na superfície. É por isso que somente os momentos magnéticos de spin dos dois primeiros planos mais próximos da superfície (n = 1, 2, N - 1, N) são diretamente afetados por tais efeitos. Mas, isso não significa que os efeitos de superfície agirão somente na superfície dos filmes finos de disprósio, porque o número de camadas modificadas por esse efeito depende da maneira como o campo efetivo local relaxa os spins no meio do filme, fazendo com que surjam mudanças nos filmes finos, comparadas com o volume (12, 13).

O hamiltoniano magnético que descreve o filme fino de Dy investigado entre as temperaturas 80 - 179K é descrito por:

$$H = J_1(g-1)^2 \sum_{n=1}^{N-1} \vec{J}(n) \cdot \vec{J}(n+1) + J_2(g-1)^2 \sum_{n=1}^{N-2} \vec{J}(n) \cdot \vec{J}(n+2) + \sum_{n=1}^{N} \left\{ K_6^6 \cos(6\varphi_n) - g\mu_B \vec{J}_{(n)} \cdot \vec{H} \right\} , \qquad (3.5)$$

em que o momento magnético por átomo na n^{th} camada atômica é representada por um $S\vec{n} = (g-1)J\vec{n}$ e $J\vec{n}$) é o momento angular total por átomo. Os spins ficam no plano da base e φ_n é o ângulo com o eixo fácil. Cada camada troca de acoplamento com os primeiros e segundos vizinhos e na Eq. 3.5 (equação acima), os dois primeiros termos representam a energia de troca (J_1 e J_2 são as constantes de troca entre os primeiros e segundos vizinhos, respectivamente). O terceiro termo é a energia de anisotropia hexagonal cuja dependência com a temperatura é representada pelo ajuste do valor experimental da constante de anisotropia K_6^6 . E, finalmente, o último termo é a energia Zeeman, estando o campo externo aplicado na direção fácil do plano basal, fazendo um ângulo de 30° com o eixo x (13).

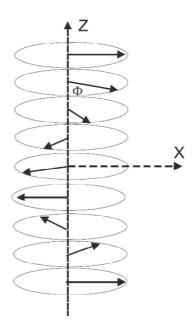


Figura 36: Fase Helimagnética. (Fig. 3.1 da Ref. (12))

O volume de Dy é helimagnético na ausência de campo magnético externo entre 80–179*K* de temperatura. Para promover uma transição de fase são necessários campos magnéticos da ordem de uns poucos *kOe*.

Em filmes finos, o campo magnético externo aplicado induz mudanças nas fases magnéticas que, por sua vez, são afetadas tanto por efeitos de superfície quanto por efeitos de tamanho finito. Duas importantes características dos filmes finos de Dy devem ser ressaltadas:

- 1 os momentos magnéticos de spin de diferentes camadas atômicas não são equivalentes, e uma consequência disso é que as restrições de tamanho-finito sobre a acomodação da estrutura magnética para os efeitos de superfície dependem da espessura do filme;
- 2 como os spins próximos à superfície tipicamente apresentam um pequeno desvio angular por causa da carência de segundos vizinhos próximos à superfície, a intensidade do campo magnético externo exigido para modificar o *estado-H* é reduzido em um filme fino, porque a superfície de spins já favorece uma configuração mais ferromagnética (13).

Curvas de magnetização com mesmos campos foram calculadas em um estado ferromagnético entre a faixa de temperatura de 80-190K durante o processo de aquecimento-resfriamento no qual, a cada passo do método numérico, era incrementado o aumento de 0.5K na temperatura (13).

Temos, na Fig. 37, curvas de magnetização de mesmo campo para um filme composto por 16 camadas de Dy para duas intensidades de campo magnético externo. A espessura do filme é suficiente para segurar o estado hélice alternado (*HA*), compreendendo hélices com sentido de rotação oposto, resultando em um vasto momento líquido na direção do campo comparado com o estado helicoidal (*H*) (13).

Mantendo o campo magnético constante, filmes finos de Dy comportam-se da seguinte forma:

- 1 é notável que aumentando a temperatura, o filme fino de *Dy* (durante o processo de aquecimento) passa de FM para o *estado hélice alternado* e depois para o *estado helicoidal*;
 - 2 o inverso acontece quando o sistema é resfriado.

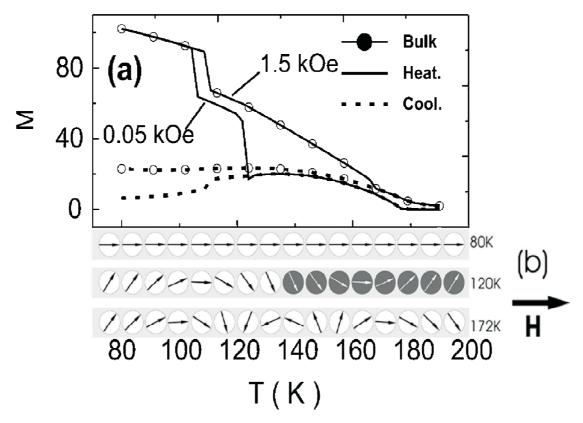


Figura 37: Histerese térmica de 16 camadas de filme de Dy. (a) Magnetização para H=1.5kOe (curvas de símbolo aberto) e H=0.05kOe. (b) Esquema de arranjo de spin em um filme de Dy de 16 camadas em que a foto corresponde à secção de aquecimento para o campo externo de 1.5kOe e os valores da temperatura estão indicados a cada linha. Em (a), as linhas (pontilhadas) contínuas são para os processos de aquecimento (resfriamento) e a magnetização é mostrada em unidades de μ_B . (Fig. 1 e Fig. 3 da Ref. (13))

A tabela abaixo mostra os dados da Fig. 37:

Tabela 3: Tabela de histere térmica do filme fino de Dy constituído por 16 camadas

Campo Aplicado	Estado Hélice Alternado	Estado Helicoidal
1.5 KOe	110 K	170 K
0.05 KOe	100 K	120 K

É bom observar que a largura da histerese térmica para o campo de 1.5kOe é de 90K, ao passo que para o campo de 0.05kOe, é bem menor.

Para o filme de 8 planos temos a Fig. 38:

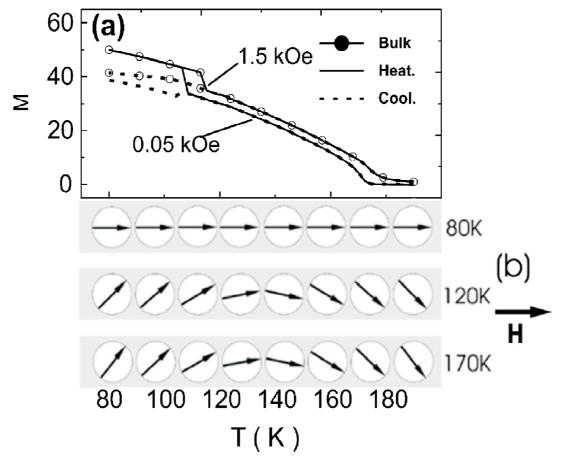


Figura 38: Histerese térmica de 8 camadas de filme de Dy. (a) Magnetização para H=1.5kOe (curvas de símbolo aberto) e H=0.05kOe. (b) Esquema de arranjo de spin em um filme de Dy de 8 camadas em que a foto corresponde à secção de aquecimento para o campo externo de 1.5kOe e os valores da temperatura estão indicados a cada linha. Em (a), as linhas (pontilhadas) contínuas são para os processos de aquecimento (resfriamento) e a magnetização é mostrada em unidades de μ_B . (Fig. 2 e Fig. 3 da Ref. (13))

Aqui a diferença é devido à espessura do filme fino ser de apenas 8 camadas. Para o campo de 1.5kOe, temos T = 120K e T = 172K para os estados *hélice alternada* e *helicoidal*, respectivamente. Para o campo de 0.05kOe, não é vista muita diferença. A histerese térmica é quase inteiramente associada à estabilidade do estado ferromagnético que resulta a partir do campo de anisotropia hexagonal (13).

Portanto, ficou bastante perceptível em trabalhos experimentais que na sintonização de campos das propriedades magnéticas (como, por exemplo, os campos magnéticos externos exigidos para uma histerese térmica), é mais vantajoso trabalhar com filmes finos porque os mesmos fornecem importantes mudanças de fases a baixos campos magnéticos externos (13).

3.1.3 Tricamadas de $Fe_m/Dy_n/Fe_m$ e $Gd_m/Dy_n/Gd_m$

As tricamadas de $Fe_m/Dy_n/Fe_m$ e $Gd_m/Dy_n/Gd_m$ apresentam um grande número de estados estáveis e uma das razões que motivou o estudo dessas estruturas foi elas mostrarem histereses térmicas extremamente largas (200K) que podem ser controladas com modestos campos magnéticos externos (14).

O Dy, sanduichado nessas duas tricamadas, foi objeto de estudo recente, que o submeteu a intervalos de temperatura entre 80–179*K*, verificando-se que a histerese térmica é fruto do efeito combinado de três fatores:

- 1 dependência da forte temperatura de magnetização do Dy;
- 2 da anisotropia hexagonal;
- 3 efeitos de superfície (14).

Os filmes ferromagnéticos dos dois lados da tricamada fazem mudar de forma mais rápida o efeito do campo externo sobre o filme fino de disprósio. Além do mais, o acoplamento do Fe com o Dy é antiferromagnético (J < 0), ao passo que o acoplamento do Gd com o Dy é ferromagnético (J > 0). Tal diferença nesse acoplamento interfacial constituise em mais uma variante que serve para nos auxiliar no entendimento sobre a mudança que sofre a tricamada, como um todo, devido à interação com o campo externo (14).

É esperado que os comportamentos térmicos de materiais magnéticos diferentes, em uma multicamada, sejam inteiramente diferentes (14). No caso de tricamadas Fe/Dy/Fe e Gd/Dy/Gd, os comportamentos térmicos dos materiais constitutivos são:

- 1 a baixas temperaturas, o momento magnético do Dy é de $10\mu_B$ e vai a zero até 179K:
- 2 a baixas temperaturas, os momentos magnéticos de Fe e Gd valem $2\mu_B$ e $7\mu_B$, respectivamente, e são quase constantes acima das mesmas faixas de temperatura (14);
- 3 nas tricamadas, a histerese térmica é devido basicamente à natureza helimagnética do Dy, combinado com a espessura, a interface e efeitos de superfície (14).

Consequentemente, os estados magnéticos participantes nas histereses térmicas de uma tricamada podem diferir dos da outra por causa dos diferentes acoplamentos interfaciais atuantes nelas, Fe/Dy/Fe e Gd/Dy/Gd, que são antiferromagnético e ferromagnético, respectivamente (14).

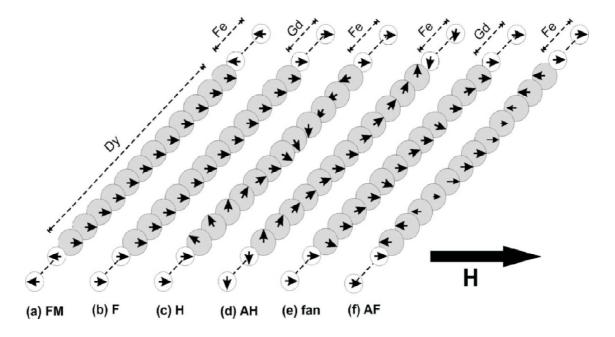


Figura 39: (a) apresenta uma configuração ferrimagnética onde os momentos do Dy estão todos alinhados com o campo externo e os momentos do Fe são antiparalelos. (b) apresenta uma estrutura ferromagnética com todos os momentos magnéticos paralelos ao campo aplicado. (c) uma estrutura onde os momentos do Dy mostram uma estrutura helicoidal (*H*). (d) apresenta uma estrutura hélice-alternada (*AH*) onde a direção da hélice reverte perto do meio do filme. (e) apresenta um estado *fan* no qual também tem reversão da direção da helicidade dentro do filme, mas permite ao final do filme apontar ao longo do campo externo. (f) apresenta um estado antiferromagnético. (Fig. 1 da Ref. (14))

Tricamadas de Gd/Dy/Gd que possuem acoplamento de interface ferromagnético enfatizam a regra da interação *Zeeman*. Como resultado, as camadas de Gd tendem a ser alinhadas ou somente levemente *canted* com respeito à direção do campo magnético externo (14).

Enfim, as tricamadas de Fe/Dy/Fe e Gd/Dy/Fe possuem relevante número de fases magnéticas, implicando a passagem de uma fase para outra numa mudança moderada do campo magnético externo. Por outro lado, mudanças na temperatura podem resultar em mudanças de fases; mas, como essas mudanças não são diretamente reversíveis, acabam por conduzir à histerese térmica (14).

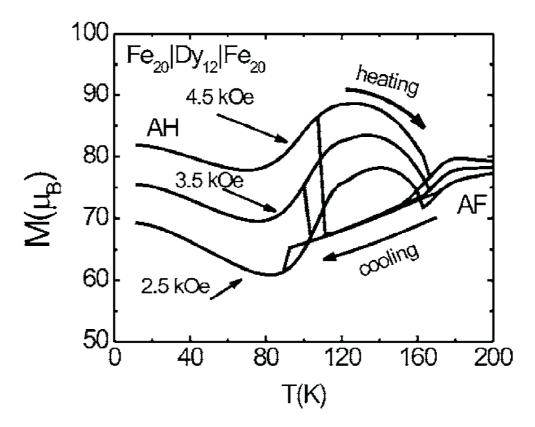


Figura 40: Magnetização de tricamadas de $Fe_{20}/Dy_{12}/Fe_{20}$ para ambos os processos de aquecimento e resfriamento. Note que as transições e as histereses térmicas são ambas tuneláveis por um pequeno campo magnético externo. (Fig. 2 da Ref. (14))

3.1.4 *Dots* ferromagnéticos/antiferromagnéticos (FM/AFM)

Outro sistema magnético interessante que pode apresentar histerese térmica são *dots* ferromagnéticos crescidos sobre substratos antiferromagnéticos não compensados. Resultados anteriores mostram que para dots de Fe crescidos sobre um substrato de NiO compensados existem histereses térmicas em que a largura é controlada pela intensidade do campo externo aplicado e pela geometria do sistema. O sistema acompanha a seguinte evolução:

- 1 o sistema é submetido aos processos térmicos de aquecimento e resfriamento, que vão desde baixas temperaturas até temperaturas acima da temperatura de Néel do NiO;
 - 2 um campo magnético externo, oposto ao campo de interface, é aplicado;
- 3 com o aquecimento, é promovida a queda dos momentos magnéticos de spin do substrato. Consequentemente, como o campo de interface é proporcional ao momento médio térmico do AFM, o campo de interface diminui com a temperatura (15).

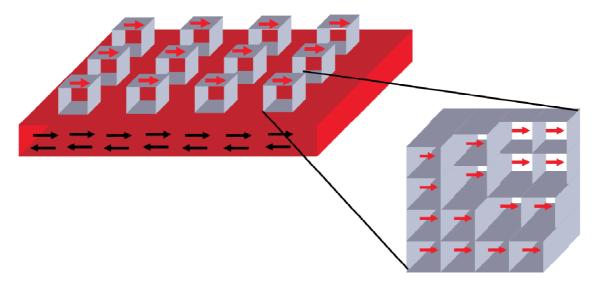


Figura 41: A figura mostra o sistema de matrizes de dots FM/AFM como também a estrutura de um ponto (dot) que é composto por *N* células cúbicas.

A investigação histerese térmica em dots ferromagnéticos sobre substratos de NiO é muito pertinente, pois a histerese acontece à temperatura ambiente.

Os pontos de Fe tridimensionais são descritos por *N* células cúbicas com borda de 3*nm*. Essa borda é menor que o comprimento de troca do ferro que é expresso matematicamente por:

$$l_{Tr} = \pi \sqrt{\frac{2A}{\mu_0 M_S^2}} (3.6)$$

Já a interface antiferromagnética é constituída por uma camada de spins fixados numa direção. O substrato considerado é uma liga constituída de óxido de níquel crescido no plano (111) cuja temperatura de Néel é 525*K*. Tal liga é muito usada em sistemas tipo "exchange bias" (2, 15).

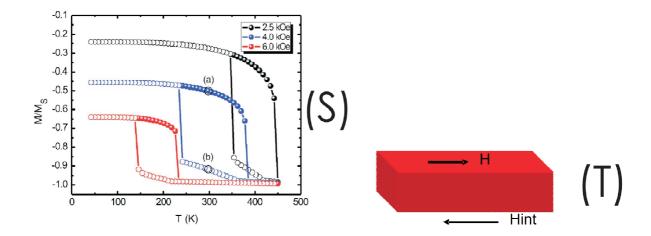


Figura 42: (S) Histerese térmica de pontos de Fe(30nm × 15nm × 15nm)/NiO. O ciclo térmico é realizado com o campo magnético externo aplicado em sentido oposto ao campo de interface tal como é representado na parte (T) da figura. [(Fig. 1 da Ref. (15)) e (Fig. 4.5 da Ref. (2))]

No caso de nanopartículas magnéticas, a interação dipolar é parte relevante da energia magnética do sistema. Nesse caso, a densidade de energia magnética é dada por:

$$E = \frac{A}{d^2} \sum_{j} \sum_{k} (1 - \hat{m_j} \cdot \hat{m_k}) - M_S \vec{H_{int}} \cdot \sum_{i} \hat{m_i} - M_S \vec{H} \cdot \sum_{j} \hat{m_j} - K \sum_{j} (m_{j^x})^2 + \frac{M_S^2}{2} \sum_{i} \sum_{k} (\frac{\hat{m_j} \cdot \hat{m_k}}{n_{jk}^3} - \frac{3(m_j \cdot \hat{n_{jk}})(m_k \cdot \hat{n_{jk}})}{n_{jk}^5})$$

$$(3.7)$$

O primeiro termo corresponde à energia de interação entre as células, primeiras vizinhas, no *dot* ferromagnético; o segundo termo é a energia devido à interação através da interface; o terceiro termo é a energia *Zeeman*, devido ao campo externo aplicado; o quarto termo é a energia de anisotropia e o último termo, é a energia de interação dipolar (2, 15).

Os parâmetros magnéticos utilizados para o Fe são:

$$1 - A = 2.5 \times 10^{-11} J/m;$$

$$2 - K = 4.7 \times 10^4 J/m^3$$
;

$$3 - M_B = 1.7 \times 10^6 A/m$$
;

$$4 - \lambda_{Fe} = 11.6nm$$
.

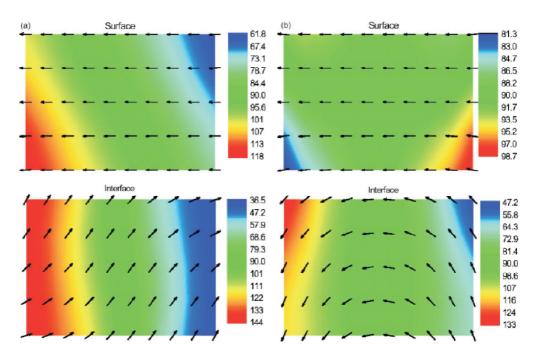


Figura 43: Mapa de spins, à temperatura ambiente, das camadas da superfície e da interface que correspondem, respectivamente, aos pontos (a) e (b) que estão indicados na *Fig.*42. As cores do fundo indicam o ângulo entre os momentos magnéticos e o eixo z. [(Fig. (2) do artigo (15)) e (Fig. (4.6) da tese (2))]

Para campos de 4*kOe*, como na parte (a) da Fig. 43, temos o estado *twisted* a baixas temperaturas com alinhamento parcial dos spins *dots* com o campo magnético. A camada de spins da interface arranja-se no estado *buckle* quando a temperatura do sistema é reduzida de altos valores, tal como mostra a parte (b) da Fig. 43. O *loop* térmico para campos de *6kOe* e 2.5*kOe* possui comportamento semelhante. A fase da parte (b) da Fig. 43 minimiza a carga de superfície da face *y-z* e está separada da fase *twisted*, encontrada no processo de aquecimento por uma barreira de anisotropia. O laço térmico termina na temperatura de 239*K*, em que o campo de interface é forte o bastante para superar a barreira de anisotropia (2, 15).

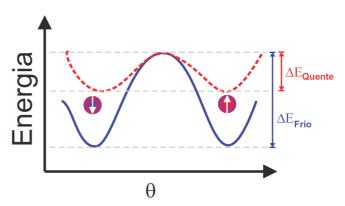


Figura 44: Modificação da barreira de energia por efeitos de aumento de temperatura. (Fig. 4.3 da Ref. (2))

É perceptível que as temperaturas de reversão de magnetização ("switching") diminuem quando o campo magnético externo é mais intenso (2, 15). A anisotropia de forma para a estrutura é reduzida com o aumento das áreas das faces y-z, permitindo aos momentos magnéticos da partícula mudarem de direção de maneira mais fácil conforme ilustra a Fig. 45 (2, 15).

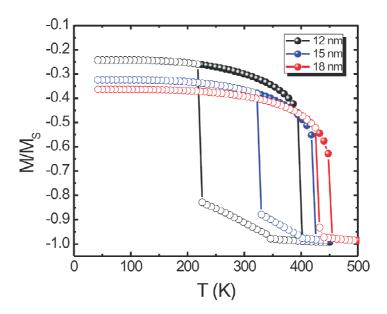


Figura 45: Histerese térmica para H = 3kOe de partículas de Fe com dimensões $30nm \times L(nm) \times L(nm)$. A escala, nesta figura, indica os valores de L. (Fig. 3 da Ref. (15))

Por outro lado, a magnetização encontra mais facilidades para se acomodar em partículas magnéticas mais alongadas. Prova disso é a maior intensidade dos efeitos de campo dipolar sobre as partículas. Dessarte, a histerese térmica foi estudada nesse tipo de estrutura (2).

Na Fig. 46, a componente M_x da magnetização apresenta uma histerese térmica com uma largura de aproximadamente 50K. As componentes perpendiculares exibem uma histerese larga, correspondendo à formação de vórtices de polaridades opostas nas duas secções do laço. Os mapas de momentos mostram os estados magnéticos nos ramos de (a) aquecimento e (b) resfriamento em uma temperatura de T = 329K. Esses estados magnéticos têm a mesma configuração no plano, diferindo apenas pela polaridade evidenciada pela histerese na componente z, mostrada na Fig. 46. Esses dois vórtices são estados magnéticos de mesma energia, mostrando, dessa forma, que efeitos térmicos podem fazer com que a partícula assuma, por exemplo, qualquer um desses estados (2).

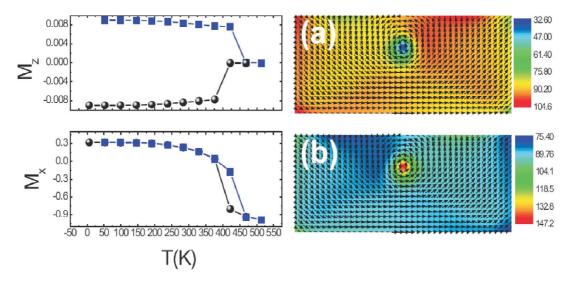


Figura 46: Componentes das magnetizações nas direções z e x como também os respectivos mapas de momentos magnéticos para uma partícula de $120nm \times 60nm \times 12nm$ de Fe num substrato antiferromagnético de NiO submetido a um campo magnético externo de 4kOe. (Fig. 4 da Ref. (15))

É bom lembrarmos que partículas magnéticas menos espessas apresentam histereses magnéticas mais largas (2,15).

Portanto, acerca desse sistema, chegamos às seguintes conclusões:

- 1 o estado magnético de uma partícula pode ser modificado com campos externos de pequenas intensidades caso ela se encontre numa temperatura que desordene o substrato AFM;
- 2 efeitos térmicos podem modificar por inteiro os possíveis estados magnéticos para os dots FM na presença de um campo magnético externo aplicado;
- 3 uma característica importante é que a configuração geométrica do ponto (*dot*) FM pode afetar a estabilidade magnética do mesmo, podendo a componente z da magnetização também exibir um comportamento histerético (2).

Capítulo 4

Histereses térmicas em bicamadas FM/AFM compensadas

Motivadas pela indústria magnetoeletrônica, bicamadas FM/AFM têm sido amplamente estudadas. Um dos principais dispositivos da spintrônica, a válvula de spin, é baseado em uma estrutura de duas camadas ferromagnéticas que sanduicham um metal não magnético fino, crescidas sobre um substrato antiferromagnético. Uma dessas duas camadas ferromagnéticas fica "presa" ao substrato, enquanto a outra fica livre para se orientar de acordo com os campos aplicados. A magnetização na camada "presa" ao substrato é relativamente insensível a campos magnéticos moderados (18). O dispositivo é submetido a correntes e, consequentemente, a efeitos térmicos.

A spintrônica impulsionou estudos de histereses térmicas em sistemas nanoestruturados. Nesse contexto, a pequena diferença de energia entre dois estados metaestáveis pode levar o sistema a uma bi-estabilidade térmica. Apresentamos um estudo teórico de histerese térmica de uma bicamada magnética que consiste em um filme ferromagnético (FM), com anisotropia cúbica cristalina (simetria C-4), acoplado a um substrato antiferromagnético compensado.

A histerese térmica ocorre quando o intervalo de temperatura inclui a temperatura de reorientação (*TR*) do filme ferromagnético, abaixo da qual a frustração do acoplamento através da interface promove uma rotação de 90° na magnetização do FM e uma pequena variação angular nos spins do AFM próximos à interface.

Consideramos um ciclo térmico, aquecimento e resfriamento, em um intervalo de temperatura que vai desde baixas temperaturas até temperaturas acima da temperatura de Néel do AFM na presença de um campo externo aplicado ao longo do eixo fácil do AFM. A anisotropia da camada FM estabiliza o estado reorientado em temperaturas abaixo da TR e o estado alinhado com o campo em temperaturas acima da TR. Existe um intervalo de temperatura onde ambos os estados são estáveis. No processo de resfriamento, a transição para o estado reorientado acontece em temperaturas abaixo da TR, ao passo que no processo de aquecimento, a transição do estado reorientado para o estado alinhado acontece em temperaturas acima da TR.

4.1 Bicamadas FM/AFM compensadas

Uma bicamada FM/AFM compensada é constituída por uma camada ferromagnética crescida sobre um substrato antiferromagnético compensado. Um antiferromagnético compensado é caracterizado por exibir as duas sub-redes em cada camada atômica (ver Fig. 8), consequentemente, a magnetização líquida por plano é nula.

Consideramos que a camada ferromagnética exibe anisotropia cristalina com simetria C-4 no plano. Nesse estudo, consideramos bicamadas compostas por Fe/FeF₂(110) e Fe/MnF₂(110). Os MnF₂ e FeF₂ são difluoretos de metais de transição, já conhecidos pela literatura (54, 59), que apresentam anisotropia uniaxial. As diferenças mais marcantes entre os materiais antiferromagnéticos em análise são suas temperaturas de Néel (T_N) e suas anisotropias.

A bicamada está no plano zx - (010) (ver Fig. 7). Os eixos fáceis do FM são x e z, ao passo que o eixo fácil do AFM é o eixo z. As camadas são acopladas através da interface. A presença das duas sub-redes do AFM na interface gera uma frustração. Considerando, exclusivamente, as energias de anisotropias e de troca, intrínsecas e através da interface, o estado de mais baixa energia é magnetização da camada FM perpendicular à do AFM. No processo de histerese térmica, há um campo aplicado ao longo do eixo de anisotropia do AFM. Nesse caso, adicionado à energia Zeeman, o estado de mais baixa energia é combinação de todas as energias envolvidas.

4.2 O modelo para bicamadas FM/AFM compensadas

Consideramos as seguintes bicamadas compensadas: Fe/FeF₂(110) e Fe/MnF₂(110). O substrato AFM é constituído pelo empilhamento de planos AFM, contendo momentos magnéticos de spin das duas sub-redes. Momentos magnéticos de spin de uma dada sub-rede no mesmo plano são considerados equivalentes, e para cada plano, nomeamos duas variáveis para momentos magnéticos de spin. O número de coordenação, ou seja, de primeiros vizinhos, é z = 8, exceto para os momentos magnéticos de spin da superfície. Cada momento magnético de spin do substrato AFM possui quatro vizinhos mais próximos (da sub-rede oposta) no mesmo plano e dois nos planos vizinhos adjacentes. A normal à superfície está na direção do eixo y, as direções fáceis do plano da anisotropia cúbica do material FM estão ao longo dos eixos x e z e a anisotropia uniaxial do substrato AFM está ao longo do eixo z. A estrutura magnética do substrato é representada pelos ângulos que cada momento magnético de spin faz com o eixo z [$\theta_n(1)$, $\theta_n(2)$, n = 1, ... N_{AFM}] e o valor térmico médio dos momentos magnéticos

de spin é representado por [$< S_n(1) >, < S_n(2)$, $n = 1, ...N_{AFM} >$], onde $\theta_n(1)$ e $\theta_n(2)$ são ângulos com respeito ao eixo fácil para momentos magnéticos de spin das sub-redes 1 e 2 no n-th plano e N_{AFM} é o número de planos (110) no filme AFM. O filme FM com N_{FM} planos é representado de maneira similar, e a estrutura magnética da bicamada é descrita em termos de duas cadeias lineares interagentes, cada qual com $(N_{FM} + N_{AFM})$ momentos magnéticos de spin. A energia magnética do sistema é dada por:

$$E = \sum_{n=FM} K_1 S_{z,n}^2 S_{x,n}^2 - \sum_{n=AFM} K S_{z,n}^2 - \sum_n g \mu_B \vec{S_n} \cdot \vec{H} - \sum_{nm} J_{nm} \vec{S_n} \cdot \vec{S_m}$$
(4.1)

onde o primeiro termo é a anisotropia cristalina do Fe, o segundo termo é a anisotropia uniaxial do AFM, o terceiro termo é a energia *Zeeman* e o último termo é a energia de troca. Para os momentos magnéticos de spin do Fe, usamos S = 2.0, g = 2 e a constante de anisotropia $K_1 = 3.5X10^4 J/m^3$, o equivalente para um campo de anisotropia de $H_a = 2K_1/M_S = 0.4kOe$, com $M_S = 1.7X10^6 A/m$. A distância entre planos atômicos vizinhos (110) é de 1.5 Å. Por causa da intensidade do acoplamento de troca no Fe, os momentos magnéticos de spin do Fe estão efetiva e rigidamente acoplados uns aos outros. Esses parâmetros reproduzem a freqüência de ressonância de filmes finos de Fe (60).

Para materiais AFM, temos que os parâmetros magnéticos para o FeF₂ são S = 2.0, g = 2, campo de anisotropia ($H_a = 2K/g\mu_BS$) de 149kOe, campo de troca ($H_e = 8JS/g\mu_B$) igual a 434kOe e temperatura de Néel $T_N = 78K$; ao passo que para MnF_2 , temos S = 2.5, g = 2, $H_a = 8.8kOe$, $H_e = 540kOe$ e $T_N = 67K$. A energia de troca de acoplamento dos momentos magnéticos de spin através da interface FM/AFM foi assumida como igual à energia de troca do substrato AFM (16).

A configuração magnética de equilíbrio é encontrada exigindo que cada momento magnético ao longo da cadeia seja paralelo ao campo local efetivo.

Efeitos térmicos são levados em consideração usando um campo local médio onde a média térmica de cada momento magnético de spin, $\langle \vec{m} \rangle = g\mu_B \langle \vec{S} \rangle$, é calculada usando

$$<\vec{m}> -g\mu_B SB_S(\frac{g\mu_B S < \vec{H}_{eff}>}{K_B T})$$
 , (4.2)

onde $B_S(\frac{g\mu_BS<\vec{H}_{eff}>}{K_BT})$ e a função de Brillouin, < ... > denota a média térmica, e o campo efetivo $H_{\it eff}$ é dado por:

$$\vec{H_{eff}} = -\frac{\partial E}{\partial \vec{m}} \tag{4.3}$$

Isso é valido, pois a bicamada magnética pode ser frequentemente tratada como um efetivo sistema unidimensional se os spins nos planos paralelos à superfície são todos equivalentes. Um spin em uma camada n, S_n , sente um número de campos que influenciam seu movimento (22). Esses incluem (como já sabemos):

- 1 Campos de troca locais de dentro de uma camada e campos de troca de camadas vizinhas.
 - 2 Campos de anisotropia local.
 - 3 Campo magnético externo.

Em temperaturas finitas, tanto a direção quanto a magnitude média térmica dos spins em cada camada devem ser especificadas. A camada de spins é rotacionada na direção do campo efetivo e a magnitude média térmica naquela direção é encontrada através do uso da função de Brillouin. O procedimento iterativo cessa apenas quando o torque for aproximadamente da ordem de 10^{-5} . Caso contrário o algoritmo fica interagindo até encontrar a configuração de mínimo de energia (22). Portanto, a orientação dos momentos magnéticos de spin nos planos e os valores térmicos dos mesmos são ambos calculados autoconsistentemente, usando o método desenvolvido anteriormente e aplicado ao estudo das multicamadas magnéticas e filmes AFM (61, 62).

Ressaltamos que não consideramos efeitos térmicos na constante de anisotropia do Fe. Isso não é um problema para o ferromagneto, uma vez que as temperaturas de interesse aqui são todas abaixo de 100K, ao passo que a temperatura de Curie é acima de 1000K. Dessa forma, as mudanças esperadas na anisotropia do Fe são relativamente pequenas em acordo com recentes experimentos (63,64). Embora campos de anisotropia no antiferromagnético caiam mais rapidamente do que o esperado do tratamento do campo médio, as características gerais do comportamento não devem alterar substancialmente. Como veremos, a prova disso é vista no fato de que as estruturas Fe/FeF₂ e Fe/MnF₂ têm resultados bastante semelhantes para

a largura da histerese térmica, embora as anisotropias difiram por um fator aproximadamente de 15.

Começamos o cálculo a partir de baixas temperaturas, nas quais a configuração magnética próxima ao estado reorientado, estado em que a magnetização do Fe está perpendicular ao eixo de anisotropia do AFM (*Interface Reoriented State* IRS), é esperada. Assim, o cálculo numérico é inicializado com o sistema no estado IRS. A convergência do processo numérico é relativamente rápida, em particular, para pequenos valores do campo externo. Para cada valor subsequente da temperatura, durante o ciclo térmico, o método numérico autoconsistente é inicializado com o estado magnético correspondente ao estado de equilíbrio do valor anterior de temperatura. Procedendo nesse caminho, encontramos o estado de equilíbrio metaestável próximo ao anterior, como apropriado para a modelagem de fenômenos de histerese térmica.

Concentramo-nos nos efeitos da variação da intensidade do campo magnético externo e da espessura da camada FM sobre a largura das histereses térmicas. O número de planos AFM foi escolhido de modo a permitir um relaxamento completo da estrutura magnética do substrato AFM, começando com o padrão *canted* no plano da interface e evoluindo para o estado antiferromagnético à medida que penetra no AFM. Para ambos materiais (MnF₂ e FeF₂), $N_{AFM} = 20$ foi suficiente para cumprir essa condição durante o ciclo térmico para valores escolhidos de intensidade de campo magnético externo e espessura da camada ferromagnética.

O modelo usado nesse cálculo corresponde à minimização da energia. Esse esquema foi utilizado, por exemplo, por *Koon* para encontrar as curvas de histerese magnética para estrutura FM/AFM (43). No entanto, mais tarde foi mostrado que esse modelo era inadequado para esses cálculos porque não levou em conta uma instabilidade que ocorre nos cálculos de dinâmica e que incide sobre a evolução em tempo real da estrutura (65, 66). No presente caso, entretanto, em que calculamos a curva de histerese térmica, a instabilidade não deveria ocorrer porque a estrutura magnética no antiferromagneto é sempre próxima do seu estado fundamental e não tem os grandes desvios vistos nos estados deformados encontrados em um experimento de histerese magnética (67).

4.3 Resultados

A Fig. 47(A) mostra as curvas da componente da magnetização, da bicamada Fe (9nm)/MnF₂(110), ao longo da direção do campo aplicado, H = 1900e, durante os processos térmicos de aquecimento e resfriamento, respectivamente. A Fig. 47(B) mostra o ângulo médio da magnetização da camada FM com o eixo z durante o ciclo térmico. A Fig. 47 mostra ainda, em painéis, a evolução do sistema em temperaturas selecionadas (lado esquerdo, aquecimento, e no lado direito, resfriamento). Começando o aquecimento a partir de baixas temperaturas, a camada FM inicia-se no estado reorientado (IRS),T = 15K, $<\theta_{FM}>\approx 68^{\circ}$. À medida que a temperatura vai aumentando, os momentos magnéticos térmicos do AFM vão diminuindo. Como conseqüência, o campo de interface também diminui. Para T = 29K, a camada FM faz um ângulo médio de $<\theta_{FM}>\approx 62^{\circ}$ com o eixo z.

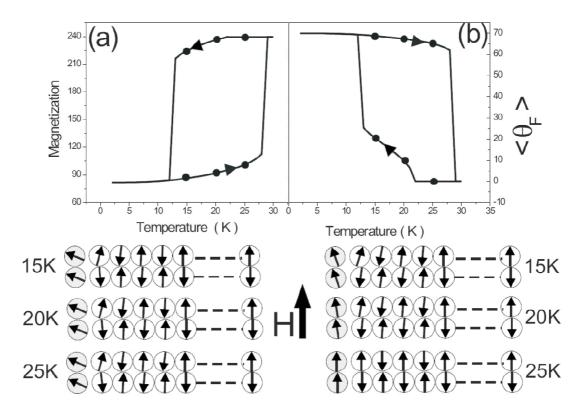


Figura 47: (a) Componente da magnetização ao longo do eixo fácil z para uma bicamada de Fe (9nm)/MnF₂(110), em unidades de μ_B , e (b) ângulo médio dos momentos magnéticos de spin FM com a direção [001] para um laço térmico sob um campo magnético externo de H=190 Oe ao longo do eixo z. Nos painéis, temos a configuração dos momentos magnéticos de spin da camada FM (símbolos cinza) e o substrato AFM para pontos selecionados (à esquerda para o aquecimento e à direita para resfriamento nos mesmos valores de temperatura). (Fig. 2 da Ref. (16))

Começando o resfriamento, o sistema volta no AS, $\langle \theta_{FM} = 0^{\circ} \rangle$. Em T = 22K, começa uma variação gradual do ângulo médio da magnetização da camada FM com a direção do campo aplicado, saindo 0° até $\approx 25^{\circ}$. Em T = 13K, há novamente uma mudança de

fase do sistema, de AS para IRS. Nesse caso, a largura da histerese térmica é de 17K. Os desvios dos momentos magnéticos de spins no plano da interface do AFM, em ambos os processos térmicos, são menores do que 15° e a relaxação do padrão da interface magnética envolve no máximo cinco planos atômicos.

Tabela 4: $Fe(12nm)/MnF_2(110)$		
Campo Magnético	T_1	T_2
110 Oe	62 K	20 K
150 Oe	43 K	16 K
190 Oe	29 K	12 K
200 Oe	26 K	10 K

Nossos resultados indicam que a largura da histerese é função da intensidade do campo aplicado durante os processos de aquecimento e resfriamento da amostra, do substrato AFM, bem como da espessura da camada FM.

Na Fig. 48, podemos ver que a variação da largura da histerese, com a intensidade do campo aplicado, é maior para bicamadas constituídas por substratos com baixa anisotropia.

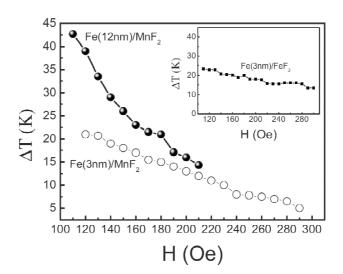


Figura 48: Largura da histerese térmica para bicamadas $Fe(12nm)/MnF_2(110)$ e $Fe(3nm)/MnF_2(110)$ e para uma bicamada de $Fe(3nm)/FeF_2(110)$ (no *inset*). (Fig. 3 da Ref. (16))

Nesse caso, para bicamadas $Fe(12nm)/MnF_2(110)$, encontramos que há uma grande queda da largura da histerese térmica com a intensidade do campo magnético externo,

começando em $\Delta T = 43 \mathrm{K}$ para $H = 110 \mathrm{Oe}$, indo para $\Delta T = 14 \mathrm{K}$ quando $H = 210 \mathrm{Oe}$. Isso corresponde a ciclos térmicos fechados, semelhantes ao mostrado na Fig. 47. Para $H > 210 \mathrm{Oe}$, mesmo que o sistema comece o processo de aquecimento no IRS depois da transição para AS em altas temperaturas, o sistema permanece em AS durante todo o processo de resfriamento, até baixas temperaturas.

A dependência do campo de ΔT origina-se no fato de ambas as temperaturas T_1 (para a transição *IRS-AS*) e T_2 (para a transição *AS-IRS*) diminuírem com a magnitude de H. Entretanto, T_1 diminui mais rapidamente (ver Tabela 4).

Para uma camada FM com anisotropia cristalina, sem substrato AFM, a barreira de energia entre os estados $\theta_{FM} = 0^{\circ}$ e $\theta_{FM} = 90^{\circ}$ é, exclusivamente, a energia de anisotropia. Para uma bicamada FM/AFM compensada, no processo de aquecimento, existe uma estabilidade extra, devido à interface, para IRS. Portanto, existe um campo limiar H^* , maior do que o campo de anisotropia do FM, para vencer essa barreira. Como os efeitos da variação de temperatura são efetivos em temperaturas mais altas T_1 , a temperatura do H^* varia mais rapidamente do que T_2 .

A temperatura T_2 , correspondente ao limite inferior da histerese térmica, está associada com a instabilidade do estado alinhado (AS) no processo de resfriamento. Nesse caso, a barreira de energia a ser vencida pelo campo de interface é devida à anisotropia da camada FM e à energia Zeeman. Do ponto de vista da energia Zeeman, poderíamos pensar que quando o campo magnético externo é feito maior, é possível manter o AS estável até temperaturas mais baixas. Por outro lado, a energia de troca da interface é menor no estado IRS. A transição do AS para IRS em baixas temperaturas sucede como um resultado do balanço entre a energia de anisotropia, a energia Zeeman e a energia de troca de interface. A fraca dependência de T_2 sobre o valor da intensidade do campo magnético externo é devido ao fato de que, a baixas temperaturas, os momentos magnéticos de spin do substrato AFM têm valores térmicos médios próximos daqueles de saturação e o efeito do campo sobre a energia de interface é menor. Assim, alterando o campo externo, conseguimos pequenas mudanças no valor da temperatura T_2 para a transição AS-IRS.

Os resultados na Fig. 48 para camadas ferromagnéticas mais finas, estruturas de $Fe(3nm)/MnF_2$ e $Fe(3nm)/FeF_2$, indicam que o efeito do campo sobre a largura da histerese térmica é muito mais fraco para filmes finos de Fe. Em ambos os casos, a energia de interface é uma fração maior da energia total da bicamada. Consequentemente, as mudanças produzidas pelo campo externo nos valores das temperaturas de transição, T_1 e T_2 , são menores do que para bicamadas de $Fe(12nm)/MnF_2(110)$. Também, há sensibilidade da largura da histerese

térmica na intensidade do campo aplicado maior em Fe(3nm)/MnF₂ do que em Fe(3nm)/FeF₂ (*inset* da Fig. 48), devido à anisotropia do AFM. Dessa forma, a energia *Zeeman* é uma pequena fração da energia magnética total.

O estado reorientado é estabilizado pela energia de troca da interface que é proporcional ao valor médio térmico dos momentos magnéticos de spin AFM na interface. Uma vez que a energia de troca da interface se torna suficientemente pequena em altas temperaturas, ocorre a transição IRS-AS se o campo magnético externo é intenso o suficiente para superar a barreira de anisotropia da camada FM. O mesmo não acontece para a transição AS-IRS. Aumentando o campo externo, podemos chegar a um valor de H para o qual a transição AS-IRS no processo de resfriamento não acontece. Nesse caso, iniciando em baixas temperaturas no IRS, existe uma transição para o estado alinhado em alguma temperatura T_1 e, durante o resfriamento até a temperatura inicial do ciclo térmico, o sistema não retorna ao estado reorientado original.

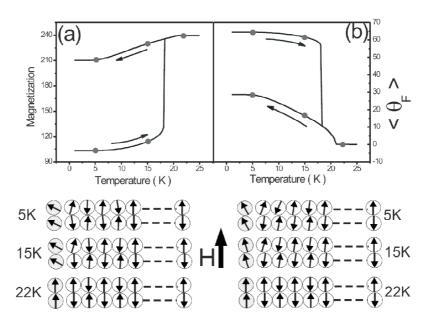


Figura 49: (a) Componente da magnetização ao longo do eixo z para uma bicamada de Fe(9nm)/MnF₂(110), em unidades de μ_B , e (b) Ângulo médio dos momentos magnéticos de spin FM com a direção [001] para um laço térmico sob um campo externo de H = 220Oe ao longo do eixo z. Nos painéis, temos a configuração dos momentos magnéticos de spin da camada FM (símbolos cinza) e o substrato AFM para pontos selecionados (à esquerda para o aquecimento e à direita para resfriamento nos mesmos valores de temperatura). (Fig. 4 da Ref. (16))

Na Fig. 49, apresentamos um exemplo desse caso para uma bicamada de $Fe(9nm)/MnF_2(110)$ estando sujeita a um campo externo de 220 Oe. Iniciando em baixas

temperaturas no IRS com os momentos magnéticos de spin FM fazendo um ângulo médio de $<\theta_F>\approx 64^\circ$ com o eixo z, e um baixo valor da magnetização ao longo da direção do campo externo, existe uma transição para o AS em torno de T = 18K e, aquecendo um pouco mais, se atinge a saturação da magnetização na direção do campo externo em torno de $T=21\mathrm{K}$. A energia Zeeman desempenha um papel dominante na configuração de equilíbrio magnético e na sequência de estados magnéticos ao longo do processo de resfriamento. Resfriando o sistema, a partir de T = 25K com a bicamada em AS e a magnetização saturada ao longo do campo externo, o processo de resfriamento não apresenta nenhuma transição de primeira ordem. Em T = 21K, a camada FM apresenta um crescimento em $< \theta_F >$ que vai de 0° até < $\theta_F > \approx 28^\circ$ em T = 5K, e o IRS não ocorre. Um detalhe importante é que a energia de anisotropia do FM é praticamente a mesma nos estados inicial e final do laço térmico. A inibição da transição AS-IRS no processo de resfriamento dá-se porque a energia de interface não é suficiente para vencer a barreira devido à energia Zeeman. Temos encontrado que, para campos externos de intensidade alta, o estado à alta temperatura permanece estável até baixas temperaturas e o laço térmico produz uma mudança de um estado magnético inicial para outro estado final. Este é um ponto de interesse para aplicações magnetoeletrônicas, visto que a operação do dispositivo envolve o aquecimento do sistema.

A transição IRS-AS no processo de aquecimento do laço térmico de uma bicamada $Fe(9nm)/MnF_2(110)$ ocorre à temperatura de T=29K para um campo externo de 1900e e à temperatura de T=18K para um campo externo de intensidade 2200e. Em ambos casos, T_1 é bem abaixo da temperatura de Néel do substrato MnF_2 e o valor médio térmico dos momentos magnéticos de spin AFM é próximo ao valor de saturação da temperatura de transição. Para os exemplos considerados até este ponto, o equilíbrio energético na temperatura de transição não depende fortemente da natureza (ferromagnética ou antiferromagnética) do acoplamento de troca da interface. Temos encontrado (resultados não apresentados) que no processo de aquecimento, a transição IRS-AS ocorre aproximadamente às mesmas temperaturas para qualquer interface de acoplamento ferromagnética ou antiferromagnética.

Fazendo a camada FM mais fina e reduzindo a intensidade do campo externo, podemos elevar a temperatura de transição T_1 para muito perto da temperatura de Néel. Nessa temperatura limite, a ordem magnética no substrato é limitada a alguns planos a partir da interface. Os momentos magnéticos de spin nos antiferromagnetos próximos da interface são estabilizados pela energia de troca da interface com a camada ferromagnética e com o campo externo. Os momentos magnéticos de spin remanescentes no antiferromagnético têm momento térmico médio que são próximos de zero. Em essência, há um momento líquido

para os momentos magnéticos de spin no antiferromagneto apenas na interface quando eles são de pequena magnitude e apenas fracamente estabilizados.

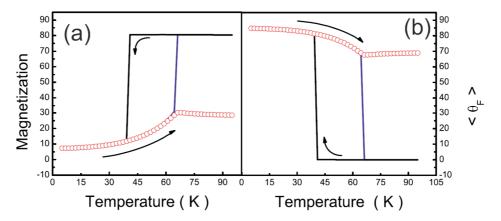


Figura 50: (a) Componente da magnetização ao longo do eixo z em unidades de μ_B e (b) Ângulo médio dos momentos magnéticos de spin FM com a direção [001] para um laço térmico de uma bicamada de Fe(3nm)/MnF₂(110) sob um campo externo de H = 104Oe. As linhas contínuas (símbolos abertos) correspondem ao acoplamento, na interface, ferromagnético (antiferromagnético). (Fig. 5 da Ref. (16))

O mais interessante é que o sinal da constante de troca da interface pode ser inferido do laço térmico da camada fina FM sob a ação de um campo externo menor do que o campo de anisotropia do ferromagneto. Na Fig. 50, apresentamos que o laço térmico de uma bicamada de $Fe(3nm)/MnF_2(110)$ sob um campo externo de H=104Oe exibe histerese térmica se a energia de troca da interface é ferromagnética. Também apresentamos na Fig. 50 que não existe histerese térmica se a energia de troca da interface é antiferromagnética.

Os dois casos se diferenciam-se na disposição dos momentos magnéticos de spin no antiferromagneto a elevadas temperaturas. Para o acoplamento de troca de interface ferromagnético, o momento líquido dos momentos magnéticos de spin do substrato no plano da interface é ligeiramente maior do que no caso do acoplamento de troca da interface antiferromagnético. Essa diferença relativamente pequena conduz a uma diferença relevante no campo de troca efetivo na camada ferromagnética.

Próximo à temperatura de Néel, o momento líquido dos momentos magnéticos de spin AFM no plano da interface aponta numa direção muito próxima ao campo de troca produzido pelos momentos magnéticos de spin da interface ferromagnética. Para o acoplamento de troca da interface ferromagnético (antiferromagnético), o momento líquido dos momentos magnéticos de spin AFM no plano de interface é quase paralelo (antiparalelo) à direção dos momentos magnéticos de spin FM. A ordem magnética dos momentos magnéticos de spin do

substrato deve-se quase inteiramente ao campo de troca produzido pelos momentos magnéticos de spin da interface ferromagnética. Entretanto, existe também uma pequena contribuição do campo externo. Para o acoplamento ferromagnético (antiferromagnético), os momentos magnéticos de spin no plano de interface do substrato são termicamente estabilizados por um campo efetivo com a componente z sobre a ordem de 10^5 Oe, o campo de troca da interface mais (menos) o campo externo de 104 Oe. Dessa forma, para o acoplamento de troca de interface ferromagnético, o valor térmico médio dos momentos magnéticos de spin da interface AFM é ligeiramente maior. Como resultado, a componente do eixo z do momento líquido dos momentos magnéticos de spin AFM no plano da interface é ligeiramente maior do que para o caso do acoplamento de troca de interface antiferromagnético.

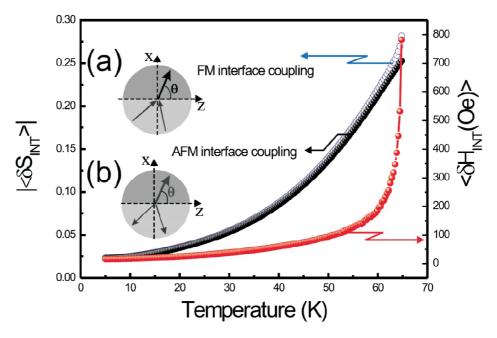


Figura 51: Valor absoluto do momento líquido dos momentos magnéticos de spin AFM ao longo do eixo z e o campo de troca sobre os momentos magnéticos de spin da interface FM ao longo do processo de aquecimento do laço térmico de uma bicamada de Fe(3nm)/MnF₂(110) sob um campo externo de H = 104Oe. A curva azul do símbolo aberto e a curva preta do símbolo cheio correspondem ao valor absoluto do momento líquido dos momentos magnéticos de spin da interface para energias de troca de interface FM e AFM. A curva vermelha do símbolo fechado (eixo vertical direito) apresenta a diferença no campo de troca de interface sobre os momentos magnéticos de spin da interface FM entre os casos de acoplamento FM e AFM. As inserções representam esquematicamente a configuração dos momentos magnéticos de spin da interface para acoplamento de interface (a)FM e (b)AFM. (Fig. 6 da Ref. (16))

líquido / $<\delta S_{INT}>$ / da componente do eixo z dos momentos magnéticos de spin da interface AFM tem o mesmo valor para qualquer acoplamento de troca de interface ferromagnética ou antiferromagnética. Em ambos os casos, / $<\delta S_{INT}>$ / vira muito próximo da temperatura de Néel, alcançando / $<\delta S_{INT}>$ / = 0.29 para acoplamento ferromagnético e / $<\delta S_{INT}>$ / = 0.25 para acoplamento antiferromagnético. A pequena diferença de aproximadamente 0.04 equivale a 1.6% do valor de saturação de um momento magnético de spin MnF₂. Entretanto, a diferença correspondente na componente do eixo z do campo de troca sobre os momentos magnéticos de spin da interface ferromagnética não é desprezível. Como apresentado na Fig. 51 (eixo vertical da direita), perto da temperatura de Néel é da ordem de 1kOe favorecendo a transição para o AS para acoplamento de interface ferromagnético. Esse aumento no campo efetivo permite que os momentos ferromagnéticos cruzem o eixo difícil e sejam estabilizados ao longo do campo no estado alinhado, como visto na Fig. 50.

A fenomenologia baseia-se em pequenas diferenças na orientação dos momentos magnéticos de spin da interface, de acordo com a natureza da energia de troca da interface. A transição ocorre à temperatura de $T=66.2 \mathrm{K}$ para acoplamento de interface ferromagnético, correspondendo a 98% da temperatura de Néel. Temos também examinado o caso do substrato $\mathrm{FeF_2}$ (resultados não apresentados). Para uma bicamada de $\mathrm{Fe(3nm)/FeF_2}$ e para um campo externo de 54Oe, existe uma transição IRS-AS a 76.99K para acoplamento de interface ferromagnético e não há histerese térmica no caso do acoplamento de interface antiferromagnético. Novamente, a transição ocorre aproximadamente a 98% da temperatura de Néel, sugerindo que podemos usar histerese térmica para investigar a natureza do acoplamento de troca da interface.

Nossos resultados indicam que a faixa da intensidade do campo externo que nos permite determinar o tipo de interação de troca da interface é um intervalo estreito de campo, logo abaixo de H^* . Para campos externos de intensidades maiores do que o campo de anisotropia do ferromagneto há histerese térmica para "ambos os tipos" de acoplamento. Para H muito menor do que H^* , não existe histerese térmica seja o acoplamento ferromagnético ou antiferromagnético. O valor mínimo de intensidade do campo externo exigido para histerese térmica para o acoplamento ferromagnético é ligeiramente menor do que o exigido no caso do acoplamento antiferromagnético. No caso da bicamada $Fe(3nm)/MnF_2(110)$ para acoplamento ferromagnético, existe histerese térmica para H maior do que 104Oe e, para acoplamento antiferromagnético, o valor mínimo do campo externo é de 105.5Oe.

Temos investigado o efeito de aumento de anisotropia FM. Para um aumento de 50% na anisotropia (de 0.4kOe, tal como utilizado no artigo para o ferro, para 0.6kOe), o campo

crítico H^* aumenta de 107.6Oe para 161.4Oe. Nesse caso, temos encontrado que para o acoplamento ferromagnético existe histerese térmica se a intensidade do campo externo é maior do que 158Oe, ao passo que para o acoplamento antiferromagnético o valor mínimo do campo externo é de 160.5Oe.

Em nossa presente investigação, a frustração no acoplamento de troca da interface é devido à estrutura microscópica do empilhamento de planos AFM, levando para um plano de interface com compensação completa em uma escala de tamanho microscópica (igual número de momentos magnéticos de spins de sub-redes opostas estão presentes no plano de interface da célula unitária magnética). Esse modelo se aplica a bicamadas FM/AFM intrinsecamente compensadas, consistindo em duas camadas (o filme ferromagnético e o substrato antiferromagnético) com estrutura magnética ideal, idêntica àquela do volume de cada material.

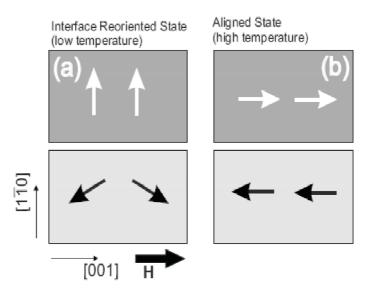


Figura 52: (a) Representação esquemática do estado reorientado, com os momentos magnéticos de spin do filme FM ao longo do eixo fácil e os momentos magnéticos de spin do substrato AFM num estado *tranverse canted*; (b) Representação esquemática do estado alinhado com o campo com os momentos magnéticos de spin do filme FM ao longo da direção do campo magnético externo, e aqueles do plano de interface do substrato AFM alinhados com os momentos magnéticos de spin do filme FM via energia de troca de interface. (Fig. 1 da Ref. (16))

O modelo envolve o acoplamento de um ferromagneto para uma superfície perfeitamente antiferromagnética compensada. Claramente, a rugosidade pode mudar a compensação. Isso tem sido investigado teoricamente, por exemplo, em (68, 69). Uma interpretação que saiu desses estudos é: à que o sistema se afasta da estrutura compensada, o estado ilustrado na parte (a) da Fig. 52 muda os momentos magnéticos de spin do ferromagneto, inclinando-os na direção de uma das sub-redes do antiferromagneto. Na medida

de histerese magnética normal, isso leva a um deslocamento da curva de histerese a fim de que o laço de histerese não seja mais centrado no campo zero. Para as histereses térmicas consideradas aqui, isso poderia significar que as curvas de histerese térmica devem depender da direção do campo aplicado, isto é, se o campo é aplicado paralelamente a uma sub-rede do antiferromagneto ou a de outro.

A presente discussão pode também ser aplicada a sistemas com compensação da interface padrão dos momentos magnéticos de spin em uma média de áreas de interface de dimensões mesoscópicas. Dois interessantes exemplos de atenção atual são as bicamadas FM/AFM com compensação da energia de interface devido a rugosidades na interface (70, 71) e bicamadas vicinais (72). Campo tunelável de histerese térmica é provável a ocorrer nessas trocas de acoplamento de bicamadas FM/AFM (70, 72) desde que a estrutura da interface magnética seja compensada em uma escala de comprimento menor que o comprimento de troca do material ferromagnético.

Capítulo 5

Conclusões e perspectivas

Em virtude dos fatos expostos, acreditamos que a largura da histerese térmica é função da intensidade do campo aplicado durante os processos de aquecimento e resfriamento da amostra, do substrato AFM, bem como da espessura da camada FM. De acordo com a Fig. 48, verificamos que para bicamadas com substratos AFM de baixa anisotropia, a variação da largura da histerese, com a intensidade do campo aplicado, é maior. Na mesma figura, a bicamada $Fe(12nm)/MnF_2$, quando submetida ao campo de H > 2100e, passa, durante o processo de aquecimento, do estado reorientado para o estado alinhado com o campo e permanece no estado alinhado durante todo o processo de resfriamento, até baixas temperaturas. Com relação às temperaturas de transição, notamos que ambas diminuem com o aumento da intensidade do campo magnético externo, de acordo com a Tabela 4, sendo que T_1 (para a transição do estado reorientado para alinhado com o campo) cai mais rapidamente do que T_2 (estado alinhado com o campo para o estado reorientado).

Por outro lado, a energia de troca da interface é menor no estado reorientado. Explorando mais ainda os resultados da Fig. 48, comprovamos que a largura da histerese térmica é afetada por efeito do campo de forma menos drástica em filmes finos de Fe, a exemplo do Fe(3nm)/MnF₂ e Fe(3nm)/FeF₂, e que há sensibilidade da largura da histerese térmica na intensidade do campo aplicado maior em Fe(3nm)/MnF₂ do que em Fe(3nm)/FeF₂(inset da Fig. 48), devido à anisotropia do AFM. Dessa forma, a energia Zeeman é uma pequena fração da energia magnética total. Já o estado reorientado é estabilizado pela energia de troca da interface que é proporcional ao valor médio térmico dos momentos magnéticos de spin AFM na interface. Mas se aumentarmos muito o campo externo, podemos chegar a um valor de H para o qual a transição AS-IRS no processo de resfriamento não acontece. É o que ocorre na Fig. 49 para uma bicamada de Fe(9nm)/MnF₂(110), estando sujeita a um campo externo de 220Oe onde a energia Zeeman desempenha um papel dominante na configuração de equilíbrio magnético e na sequência de estados magnéticos ao longo do processo de resfriamento. A inibição da transição estado alinhado para o estado reorientado no processo de resfriamento dá-se porque a energia de interface não é suficiente para vencer a barreira, devido à energia Zeeman.

Para os exemplos considerados até este ponto, o equilíbrio energético na temperatura de transição não depende fortemente da natureza (ferromagnética ou antiferromagnética) do acoplamento de troca da interface. Temos encontrado (resultados não apresentados) que no processo de aquecimento, a transição do estado reorientado para o estado alinhado com o campo ocorre aproximadamente às mesmas temperaturas para qualquer interface de acoplamento ferromagnética ou antiferromagnética.

Fazendo a camada FM mais fina e reduzindo a intensidade do campo externo, podemos elevar a temperatura de transição T_1 para muito perto da temperatura de Néel. O mais interessante é que o sinal da constante de troca da interface pode ser inferida do laço térmico da camada fina FM sob a ação de um campo externo menor do que o campo de anisotropia do ferromagneto. Na Fig. 50, apresentamos que o laço térmico de uma bicamada de Fe(3nm)/MnF₂(110) sob um campo externo de H = 104Oe exibe histerese térmica se a energia de troca da interface é ferromagnética e não exibe se for antiferromagnética. Entretanto, a diferença correspondente na componente do eixo z do campo de troca sobre os momentos magnéticos de spin da interface ferromagnética não é desprezível, Fig. 51 (eixo vertical da direita), e favorece a transição para o estado alinhado para acoplamento de interface ferromagnético (ver Fig. 50). Estudando o FeF₂, temos que para uma bicamada de Fe(3nm)/FeF₂ e para um campo externo de 54Oe existe uma transição do estado reorientado para o estado alinhado com o campo a 76.99K para acoplamento de interface ferromagnético e não há histerese térmica no caso do acoplamento de interface antiferromagnético. Novamente, a transição ocorre aproximadamente a 98% da temperatura de Néel, sugerindo que podemos usar histerese térmica para investigar a natureza do acoplamento de troca da interface.

Portanto, para campos externos de intensidades maiores do que o campo de anisotropia do ferromagneto, há histerese térmica para ambos tipos de acoplamento. Mas para valores de H muito menores do que H^* , não existe histerese térmica seja o acoplamento ferromagnético ou antiferromagnético. E o valor mínimo de intensidade do campo externo exigido para histerese térmica para o acoplamento ferromagnético é ligeiramente menor do que o exigido no caso do acoplamento antiferromagnético.

Pesquisamos o efeito de aumento de anisotropia FM e descobrimos que o campo crítico H^* aumenta de 107.6Oe a 161.4Oe para um aumento de 50% na anisotropia. Logo, existe histerese térmica para o acoplamento ferromagnético se a intensidade do campo externo é maior do que 158Oe e há histerese para o antiferromagnético se o valor mínimo do campo externo é de 160.5Oe. Como a frustração no acoplamento de troca da interface é devido à

estrutura microscópica do empilhamento de planos AFM, as bicamadas FM/AFM intrinsecamente compensadas podem ter a compensação mudada por efeitos de rugosidade, sendo que isso pode ainda ser aplicado a sistemas com compensação da interface padrão dos momentos magnéticos de spin em uma média de áreas de interface de dimensões mesoscópicas.

A demanda por novos materiais magnéticos nano-estruturados para atender à crescente tendência por miniaturização de dispositivos eletrônicos, especialmente na produção de meios de alta densidade de gravação e de dispositivos de leitura de meios magnéticos com alta sensibilidade, tem determinado, nas duas últimas décadas, um grande desenvolvimento das técnicas de produção e caracterização de novos materiais magnéticos. A funcionalidade dos dispositivos GMR e MRAM depende em larga medida da ordem magnética da interface entre um substrato antiferromagnético e um filme ferromagnético.

Por isso, faz-se necessário um estudo sobre histereses magnéticas em bicamadas ferromagneto/antiferromagneto compensadas (FM/AFM). Consideramos bicamadas de Fe/MnF₂(110) e Fe/FeF₂(110) onde o filme ferromagnético também possui anisotropia cúbica. Dentre os resultados alcançados até agora, sabemos que existem histereses de laço duplo, único e de forma intermediária. O campo de interface limiar exigido para a histerese de laço duplo é maior para a bicamada que tem o MnF₂ como substrato e se comporta em função da espessura do filme FM. Nesse tipo de sistema, onde consideramos AFM o acoplamento de troca da interface, o campo de interface diminui com o aumento da temperatura, favorecendo a histerese de laço único. Apesar das recentes descobertas, o sistema ainda tem muito a ser explorado.

Referências

- [1] BAIBICH, M. et al. Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices. Phys. Rev. Lett. 61, 2472 (1988).
- [2] SILVA, André. Estados Magnéticos de Nanopartículas e Estabilização de Interface. Tese de Doutorado, UFRN, 2007.
- [3] MEIKLEJOHN, W., BEAN, C. New Magnetic Anisotropy. Phys. Rev. 102, 1443 (1956).
- [4] SILVA, Melquisedec. **Propriedades Magnéticas de Bicamadas Compensadas**, Tese de Doutorado. UFRN, 2003.
- [5] SILVA, M., DANTAS, Ana, CARRIÇO, Artur. **Heat capacity of compensated F/AF bilayers**. Solid State Communications 135, 769 (2005).
- [6] COEY, J. Louis Néel: Retrospective (invited). J. Appl. Phys. 93, 8224 (2003).
- [7] SKOMSKI, R. Nanomagnetics. J. Phys. : Condens. Matter, v. 15, p. R841-R896, maio 2003.
- [8] CAMLEY, R. et al. **Tunable thermal hysteresis in magnetic multilayers: magnetic superheating and supercooling**. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, v. 286, p. 65-71, 2005.
- [9] ANDRÉS, et al. Artificial ferromagnetic structure and thermal hysteresis in $Gd_{0.47}Co_{0.53}/Co$ multilayers. Phys. Rev. B, v. 77, n. 14, p. 144407, abr. 2008.
- [10] HOSSU, M. Entropy change for magnetic phase transitions in CoNi/Gd nanolayers. J. Phys.: Condens. Matter, v. 20, n. 21, p. 215224 (5 p.)
- [11] DERMITAS, S., CAMLEY, R., KOYMEN, A. **Tunable thermal hysteresis in CoGd alloys**. Appl. Phys. Lett., v. 87, n. 202111(3 p.), 2005.

- [12] MELLO, Vamberto. **Propriedades Magnéticas de Filmes Finos de Disprósio.** Tese de Doutorado, UFRN, mar. 2006.
- [13] DANTAS, Ana; CAMLEY, R.; CARRIÇO, Artur. **Thermal Hysteresis of Thin Dy Films.** IEEE Transactions on Magnetics, v. 42, n. 10, p. 2942-2944, out. 2006.
- [14] DANTAS, Ana; CAMLEY, R. Magnetic thermal hysteresis in Fe_m/Dy_n/Fe_m and Gd_m/Dy_n/Gd_m trilayers. Phys. Rev. B, v. 75, n. 9, p. 094436 (6 p.), mar. 2007.
- [15] DANTAS, Ana et al. **Thermal hysteresis of interface biased ferromagnetic dots.** J. Appl. Phys., v. 102, n. 123907 (4 p.), 2007.
- [16] NASCIMENTO, Francisco et al. **Thermal hysteresis of ferromagnetic/antiferromagnetic compensated bilayers.** Phys. Rev. B, v. 80, n. 14, p. 144407 (8 p.), out. 2009.
- [17] GRÜNBERG, P.; SCHREIBER, R.; PANG, Y. Layered Magnetic Structures: Evidence for Antiferromagnetic Coupling of Fe Layers across Cr Interlayers. Phys. Rev. Lett., v. 57, n. 19, p. 2442—2445 (3 p.), nov. 1986.
- [18] DIENY, B. et al. **Giant magnetoresistive in soft ferromagnetic multilayers.** Phys. Rev. B, v. 43, n. 1, p. 1297—1300 (4 p.), jan. 1991.
- [19] MATSUMOTO, Koji; INOMATA, Akihiro; HASEGAWA, Shin-ya. **Thermally Assisted Magnetic Recording.** FUJITSU Sci. Tech. J., v. 42, n. 1, p. 158—167 (10 p.), jan. 2006.
- [20] REBOUÇAS, Gustavo et al. **Magnetic hysteresis of interface-biased flat iron dots.** Phys. Rev. B, v. 79, n. 10, p. 104402 (10 p.), mar. 2009.
- [21] CHAPPERT, Claude; FERT, Albert; DAU, Frédéric. **The emergence of spin electronics in data storage.** Nature Materials, v. 6, n. 11, p. 813—823, nov. 2007.

- [22] CAMLEY, R. Static, Dynamic, and Thermal Properties of Magnetic Multilayers and Nanostructures. In: MILLS, D.; BLAND, J. Nanomagnetism: Ultrathin Films, Multilayers and Nanostructures. ______: Elsevier B. V., 2006. p. 77-114
- [23] SKUMRYEV, Vassil et al. **Beating the superparamagnetic limit with exchange bias.** Nature, v. 423, n. 19, p. 850—853 (4 p.) jun. 2003.
- [24] SILVA, Ricardo. **Processos de Magnetização e Magnetoimpendância em Filmes com Exchange Bias.** Tese de Doutorado, UFSM, out. 2006.
- [25] KIWI, Miguel et al. **Exchange-bias systems with compensated interfaces.** Appl. Phys. Lett., v. 75, n. 25, p. 3995—3997 (3 p.), dez. 1999.
- [26] GRUYTERS, M.; RIEGEL, D. Strong exchange bias by a single layer of independent antiferromagnetic grains: The CoO/Co model system. Phys. Rev. B, v. 63, n. 5, p. 052401 (4 p.), dez. 2000.
- [27] NOGUÉS, J. et al. **Exchange bias in nanostructures.** Phys. Reports, v. 422, n.3, p. 65—117 (53 p.), dez. 2005.
- [28] GIERLINGS, M. et al. Change and asymmetry of magnetization reversal for a Co/CoO exchange-bias system. Phys. Rev. B, v. 65, n. 9, p. 092407 (4 p.), fev. 2002.
- [29] ZHOU, S.; CHIEN, C. Dependence of exchange coupling on magnetization in Co-Ni/FeMn bilayers. Phys. Rev. B, v. 63, n. 10, p. 104406 (4 p.), fev. 2001.
- [30] STILES, M.; MCMICHAEL, R. Model for exchange bias in polycrystalline ferromagnet-antiferromagnet bilayers. Phys. Rev. B, v. 59, n. 5, p. 3722—3733(11 p.), fev. 1999.
- [31] STILES, M.; MCMICHAEL, R. Temperature dependence of exchange bias in polycrystalline ferromagnet-antiferromagnet bilayers. Phys. Rev. B, v. 60, n. 18, p. 12950—12956 (6 p.), nov. 1999.

- [32] REGAN, T. et al. Chemical effects at metal/oxide interfaces studied by x-ray-absorption spectroscopy. Phys. Rev. B, v. 64, n. 21, p. 214422 (11 p.), nov. 2001.
- [33] RADU, F. et al. **Interfacial domain formation during magnetization reversal in exchange-biased CoO/Co bilayers.** Phys. Rev. B, v. 67, n. 13, p. 134409 (11 p.), abr. 2003.
- [34] LIN, X. et al. **Magnetic and structural properties of Fe-Fe0 bilayers.** J. Appl. Phys., v. 76, n. 10, p. 6543—6545 (3 p.), nov. 1994.
- [35] CHEN, Youjun et al. Exchange effects in molecular-beam-epitaxy grown iron films. J. Appl. Phys., v. 69, n. 8, p. 4523—4525 (3 p.), abr. 1991.
- [36] CHEN, Youjun; LOTTIS, D.; DAHLBERG, E. Magnetotransport properties of iron thin films. J. Appl. Phys., v. 70, n. 10, p. 5822—5824 (3 p.), nov. 1991.
- [37] HEIJDEN, P. et al. Thermally assisted reversal of exchange biasing in NiO and FeMn based systems. Appl. Phys. Lett., v. 72, n. 4, p. 492—494 (3 p.), jan. 1998.
- [38] OHLDAG, H. et al. **Spectroscopic Identification and Direct Imaging of Interfacial Magnetic Spins.** Phys. Rev. Lett., v. 87, n. 24, p. 247201 (4 p.), nov. 2001.
- [39] HILLEBRECHT, F. et al. Magnetic Moments at the Surface of Antiferromagnetic NiO (100). Phys. Rev. Lett., v. 86, n. 15, p. 3419—3422 (3 p.), abr. 2001.
- [40] ZHU, W. et al. Field Cooling Induced Changes in the Antiferromagnetic Structure of NiO Films. Phys. Rev. Lett., v. 86, n. 23, p. 5389—5392 (3 p.), jun. 2001.
- [41] YU, G. et al. Interface reaction of NiO/NiFe and its influence on magnetic properties. Appl. Phys. Lett., v. 78, n. 12, p. 1706—1708 (3 p.), mar. 2001.
- [42] GREDIG, T. et al. **Unidirectional coercivity enhancement in exchange-biased Co/CoO.** Appl. Phys. Lett., v. 81, n. 7, p. 1270—1272 (3 p.), ago. 2002.

- [43] KOON, N. Calculations of Exchange Bias in Thin Films with Ferromagnetic/Antiferromagnetic Interfaces. Phys. Rev. Lett., v. 78, n. 25, p. 4865—4868 (3 p.), jun. 1997.
- [44] MASSENET, R.; MONTMORY, O.; NÉEL, L. Magnetic properties of multilayer films of FeNi-Mn-FeNiCo and of FeNi-Mn. IEEE Transactions on Magnetics, v. 1, n. 1, p. 63—65, mar. 1965.
- [45] THAMANKAR, R.; BHAGWAT, S.; SCHUMANN, F. Structural and magnetic properties of ultrathin fcc Fe_xMn_{1-x} films on Cu (100). Phys. Rev. B, v. 69, n. 5, p. 054411 (8 p.), fev. 2004.
- [46] NOLTING, F. et al. **Direct observation of the alignment of ferromagnetic spins by antiferromagnetic spins.** Nature, v. 405, p. 767—769, jun. 2000.
- [47] NOGUÉS, J.; SCHULLER, Ivan. **Exchange bias.** J. Magn. Magn. Mater., v. 192, p. 203—232, 1999.
- [48] BERKOWITZ, A.; KENTARO, Takano. **Exchange anisotropy a review.** J. Magn. Magn. Mater., v. 20, p. 552—570, 1999.
- [49] MAURI, D. et al. Simple model for thin ferromagnetic films exchange coupled to an antiferromagnetic substrate. J. Appl. Phys., v. 62, n. 7, p. 3047—3049, out. 1987.
- [50] MALOZEMOFF, A. Mechanisms of exchange anisotropy (invited). J. Appl. Phys., v. 63, n. 8, p. 3874—3879, abr. 1988.
- [51] MALOZEMOFF, A. Random-field model of exchange anisotropy at rough ferromagnetic-antiferromagnetic interfaces. Phys. Rev. B, v. 35, n. 7, p. 3679—3682 (p. 3), mar. 1987.
- [52] MALOZEMOFF, A. Heinsenberg-to-Ising crossover in a random-field model with uniaxial anisotropy. Phys. Rev. B, v. 37, n. 13, p. 7673—7679 (6 p.), maio 1988.

- [53] JUNBLUT, R. et al. Orientational dependence of the exchange biasing in molecular-beam-epitaxy-grown Ni₈₀Fe₂₀/Fe₅₀Mn₅₀ bilayers (invited). J. Appl. Phys., v. 75, n. 10, p. 6659—6664 (6 p.), maio 1994.
- [54] NOGUÉS, J. et al. **Positive Exchange Bias in FeF₂-Fe Bilayers.** Phys. Rev. Lett., v. 76, n. 24, p. 4624—4627, jun. 1996.
- [55] SINGH, Abhishek. **Magnetic Nanoparticles -- Fabrication, Analysis and Application.** Spring 2006. http://www.coursehero.com/textbooks/216470-Magnetic-Nanoparticles/>.
- [56] BORGES, Janaína. Estudos do Comportamento Magnético de Filmes Finos Eletrodepositados que Apresentam Magnetização Perpendicular. Tese de Doutorado, UFRGS, jan. 2007.
- [57] COWBURN, R. **Property variation with shape in magnetic nanoelements.** J. Phys. D: Appl. Phys., v. 33, n.1, p. R1—R16, set. 2000.
- [58] DERMITAS, S. et al. **Tunable magnetic thermal hysteresis in transition metal (Fe, Co, CoNi)/rare earth (Gd) multilayers).** Phys. Rev. B, v. 72, n. 18, p. 184433 (7 p.), nov. 2005.
- [59] LI, Zhi-Pan et al. **Anomalous Spontaneos Reversal in Magnetic Heterostructures.** Phys. Rev. Lett., v. 96, n. 13, p. 137201 (p. 4), abr. 2006.
- [60] GORYUNOV, Yu et al. Magnetic anisotropies of sputtered Fe films on MgO substrates. Phys. Rev. B, v. 52, n. 18, p. 13450—13458 (8 p.), nov. 1995.
- [61] CARRIÇO, Artur; CAMLEY, R. **Phase transitions in antiferromagnetic superlattices.** Phys. Rev. B, v. 45, n. 22, p. 13117—13120 (3 p.), jun. 1992.
- [62] DANTAS, Ana; CARRIÇO, Artur. **Surface-induced low-field instability of antiferromagnetic multilayers.** Phys. Rev. B, v. 59, n. 2, p. 1223—1231 (8), jan. 1999.

- [63] HEINRICH, B. et al. Magnetic anisotropies in single and multilayered structures (invited). J. Appl. Phys., v. 70, n. 10, p. 5769 (6 p.), nov. 1991.
- [64] WEE, L. et al. Rotatable anisotropy and mixed interfaces: Exchange bias in Fe/KNiF₃. Phys. Rev. B, v. 69, n. 13, p. 134426 (13 p.), abr. 2004.
- [65] SCHULTHESS, T.; BUTLER, W. Consequences of Spin-Flop Coupling in Exchange Biased Films. Phys. Rev. Lett., v. 81, n. 20, p. 4516—4519 (3 p.), nov. 1998.
- [66] CAMLEY, R.; ASTALOS, R. Probing the ferromagnet/antiferromagnet interface with spin waves. J. Magn. Magn. Mater., v. 198—199, p. 402—404, jun. 1999.
- [67] CAMLEY, R. et al. **Magnetization dynamics: A study of the ferromagnet/antiferromagnet interface and exchange biasing.** J. Vac. Sci. Technol. A, v. 17, n. 4, p. 1335-1339, jul. 1999.
- [68] KIM, Joo-Von et al. **Angular dependence and interfacial roughness in exchange-biased ferromagnetic/antiferromagnetic bilayers.** Phys. Rev. B, v. 61, n. 13, p. 8888—8894 (6 p.), abr. 2000.
- [69] MCGRATH, B. **Temperature dependence of exchange biased thin films.** v. 87, n. 9, p. 6430—6432 (3 p.), maio 2000.
- [70] MORAN, Timothy; SCHULLER, Ivan. Effects of cooling field strength on exchange anisotropy at permalloy/CoO interfaces. J. Appl. Phys., v. 79, n. 8, p. 5109—5111 (3 p.), abr. 1996.
- [71] DANTAS, Ana et al. **Interface roughness effects on coercivity and exchange bias.** J. Appl. Phys., v. 97, n. 10, p. 10K105, 2005.
- [72] DANTAS, Ana; REBOUÇAS, Gustavo; CARRIÇO, Artur. **Depinning field of a periodic domain wall array in vicinal nanowires.** J. Appl. Phys., v. 105, n. 7, p. 07C116 (3 p.), 2009.

APÊNDICES

Thermal hysteresis of ferromagnetic/antiferromagnetic compensated bilayers

F. I. F. Nascimento, Ana L. Dantas, L. L. Oliveira, V. D. Mello, R. E. Camley, and A. S. Carriço^{3,*}

Departamento de Física, Universidade do Estado do Rio Grande do Norte, 59610-210 Mossoró, RN, Brazil

Department of Physics, University of Colorado at Colorado Springs, Colorado Springs, Colorado 80918, USA

Departamento de Física Teórica e Experimental, Universidade Federal do Rio Grande do Norte, Campus Universitário, 59078-970 Natal, RN, Brazil

(Received 27 June 2009; published 12 October 2009)

We report a theoretical investigation of thermal hysteresis of fourfold anisotropy ferromagnetic (FM) film exchange coupled to a compensated antiferromagnetic substrate. Thermal hysteresis occurs if the temperature interval includes the reorientation transition temperature, below which the frustration of the interface exchange coupling leads to a 90° rotation of the magnetization of the ferromagnetic layer. The temperature width of the thermal hysteresis is tunable by external magnetic fields of modest magnitude, with values of 43 K for an external field of 110 Oe and of 14 K for a field of 210 Oe, for a Fe(12 nm)/MnF₂(110) bilayer. For a Fe(3 nm)/FeF₂(110) bilayer the width of the thermal hysteresis is 23 K at 110 Oe and 13 K at 300 Oe. We discuss how the thickness of the iron film affects the field tuning of the thermal hysteresis width, and also how the thermal loops may be used to identify the nature of the interface exchange energy.

DOI: 10.1103/PhysRevB.80.144407 PACS number(s): 75.70.Cn, 75.75.+a

I. INTRODUCTION

Thermal hysteresis has recently been investigated in a number of nanostructured magnetic systems, including alloys, multilayers, thin rare-earth films, 6,7 and nanometric ferromagnetic (FM) particles exchange coupled to antiferromagnetic (AFM) substrates. In these structures, there is a small energy difference between two metastable states, which leads to thermal bistability.

The thermal hysteresis in Fe/Gd and Co/Gd multilayers originates in the large differences in the Curie temperatures and saturation magnetic moments of Fe and Gd and the magnetic anisotropy of the Fe layers.^{2,3} In these systems, the Fe layers are antiferromagnetically coupled to the Gd layers, and there are two states that are stable at the same temperature. At high temperatures, the system is in an Fe-aligned state (AS), with the iron spins along the external field and with the small Gd moments opposite to the external field. Upon cooling, the thermal average value of the Gd moments increases, but the system may remain in the Fe-aligned state even though the net magnetic moment is opposite to the external field for temperatures below the compensation temperature. The reason for this is that the anisotropy in the Fe layers is sufficient to keep the spin structure in place. Upon further cooling, the Fe-aligned state becomes unstable, and the system reverses to the Gd-aligned state, with the Gd moments parallel to the applied field and the Fe moments opposite to the applied field. A similar effect occurs on heating the system from low temperatures. The Gd-aligned state is held stable by the iron anisotropy as the temperature is increased beyond the compensation temperature.^{2,3} Similar features are also seen in other transition-metal/rare-earth metal multilayers with antiferromagnetic interface exchange coupling.^{4,5}

The thermal hysteresis of thin Dy films⁶ is due to the combined effect of the strong temperature dependence of the magnetization and the hexagonal anisotropy, and surface effects which produce interesting modifications in the helical

phase in confined geometries. It may be exceptionally large, covering the whole temperature interval between the Curie and the Néel temperatures, and can be strongly tuned by an external field, even though the external field strength (from 0.05 kOe to 1.5 kOe) is much smaller than the typical values of external field required to induce phase transitions in bulk Dy. Above a critical film thickness, both the width and the efficiency of the field tuning of the thermal hysteresis are large. Both features are due to the nucleation of an alternating helicity state, comprising helices with opposite chirality within the film, and leading to an increased moment in the external field direction, compared with that of a simple helical state. The alternating helicity (AH) state and helical (H) state are both stable at the same temperature. As a result, there are large differences between the isofield magnetization curves, corresponding to heating (AH state) and cooling (H state) processes.

Trilayers composed of a Dy film sandwiched between two films of Fe or Gd have additional features, since by adding ferromagnetic films on the outside, one can further modify the effects of an external field on the Dy film. New magnetic states are formed at temperatures close to the Néel temperature of Dy due to the large Zeeman energy of the ferromagnetic layers. Furthermore, Fe is antiferromagnetically coupled to Dy at the interfaces while Gd is ferromagnetically coupled to the Dy at the interfaces. This difference in the nature of the interface exchange energy allows substantial changes in how the external field interacts with the structure as a whole, and affects the field tuning of the temperature width of the thermal hysteresis.

We have recently shown⁸ that owing to the temperature change of the interface field, iron dots on an uncompensated antiferromagnetic surface may exhibit room-temperature thermal hysteresis, which is tunable by external fields of moderate strengths (a few kOe). We considered a temperature interval bounded by the Néel temperature of the substrate, and we calculated the heating and cooling curves in the presence of an external field oriented opposite to the interface exchange field. Starting the heating process with

the dot aligned along the interface field, there is a switch to a field-aligned state near the Néel temperature of the substrate. Upon cooling from this point the field-aligned state is stabilized by the dot's anisotropy until past the value of temperature, where the interface field is larger than the external field. One key point of this system is that the thermal hysteresis may occur well below the critical temperature of the dot. Furthermore, the width of the hysteresis loops depends on the dimensions of the ferromagnetic dot, and can be significant for dots elongated in the direction of the interface field. In this case the shape anisotropy barrier is large and holds the field-aligned state stable up to very small temperature values in the cooling branch.

There is an interesting early report on magnetic phase transitions on compensated ferromagnetic/antiferromagnetic bilayers, involving the switching of the direction for the easy axis of the ferromagnetic layer. In Fe/FeF₂(110) bilayers, the Fe easy axis was found to switch from the [001] direction at 300 K, to the [110] direction at 10 K, when the FeF₂ substrate is ordered. The $\pi/2$ rotation of the Fe spins contributes to lowering the interface exchange energy with the FeF₂ spins near the interface slightly canted.

In this paper we present a theoretical investigation of the thermal hysteresis of compensated bilayers consisting of a thin iron film, with an in-plane fourfold anisotropy, exchange coupled to a compensated antiferromagnetic substrate. We consider iron films with thicknesses ranging from 3 to 12 nm, exchange coupled to $MnF_2(110)$ and $FeF_2(110)$ compensated AFM substrates. The point of choosing $MnF_2(110)$ and FeF₂(110) substrates is that these are well-known twosublattices antiferromagnetic materials, often used as model systems for the investigation of new magnetic phenomena of thin films and artificial multilayers. 10,11 Furthermore, these antiferromagnetic materials have intrinsic exchange fields of similar magnitudes, but have large differences in the anisotropy fields. The anisotropy field of FeF₂ is larger than that of MnF₂ by over one order of magnitude. As a result MnF₂ is much softer, in the sense that variations in angular orientation are allowed over several AF planes. We show below that this has a relevant impact in the field tuning of the thermal hysteresis.

The ferromagnetic spins have two perpendicular directions stabilized by an anisotropy barrier, which is proportional to the thickness of the iron layer. We assume that one of the in-plane easy directions of the iron layer is parallel to the uniaxial axis of the antiferromagnetic substrate. For $MnF_2(110)$ and $FeF_2(110)$ substrates this means that the [001] direction is also an easy axis for the iron layer. We consider a temperature interval bounded by the Néel temperature of the substrate, and we calculate the heating and cooling curves in the presence of an external field H parallel to the in-plane [001] direction.

There are two states with unique properties. One such state is the interface-reoriented state (IRS), shown in Fig. 1(a), in which the FM spins are perpendicular to the external field and the AFM spins are in a transverse canted orientation, slightly off the [001] direction. In the absence of external fields, the IRS forms at low temperature for any value of the interface exchange field. 12,13 We note that the IRS has the ferromagnetic spins along an easy axis, the $[1\overline{10}]$ direction,

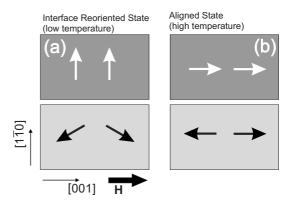


FIG. 1. (a) Schematic representation of the reoriented state, with the iron spins along the *y* easy axis and the interface spins of the AFM substrate in a transverse canted state; (b) schematic representation of the field-aligned state, with the spins of the iron film along the external field direction and the spins of the interface plane of the AFM substrate in the AFM state.

and has extra stability due to the interface exchange energy. Small values of the external field H leads to small changes in the magnetic structure of the IRS, with the ferromagnetic spins oriented at small angles with the [110] direction, and the interface plane antiferromagnetic spins not symmetrically oriented with respect to the [001] direction.

The aligned state shown in Fig. 1(b) has the iron spins along the external field direction, or at small angles with the external field, and the substrate spins along the AFM easy axis. The magnetic moment per unit cell in the AFM interface plane is zero and the net exchange coupling between the FM layer and the substrate is zero. Thus the AS does not benefit from the energy lowering due to interface exchange. However, the Zeeman energy of the iron layer and the intrinsic magnetic energies (exchange and anisotropy energies) of both materials have the minimum values. Near the Néel temperature one may find small deviations from the basic pattern shown in Fig. 1(b), due to spin flips of one of the AFM sublattices in the near-interface region. For the pictures in Fig. 1 we have assumed an antiferromagnetic interaction between the FM layer and the substrate. However, the phenomenology discussed below is equally valid if the interface coupling is ferromagnetic.

The main features of the thermal hysteresis of compensated bilayers may be anticipated from simple arguments. The Fe layer has two perpendicular directions, the [001] and the [110] directions, favored by the anisotropy energy. Thus, there is an anisotropy barrier to be overcome in order to switch from the IRS to the AS and vice-versa. We consider starting at low temperatures and heating the system. In the absence of an external magnetic field, the IRS remains stable throughout the heating curve, because the [110] direction is an easy axis of the FM layer. Furthermore, the IRS minimizes the interface exchange energy. 12,13 Thus even though the interface frustration vanishes at the Néel temperature, or a little after it, when the thermal values of the AFM spins vanish, there is no reason to have a transition. The cooling curve starts in the IRS and so remains until low temperatures. Thus in the absence of external field, the sequence of states along the heating and cooling curves are identical, and there is no thermal hysteresis.

However, if an external field is applied along the [001] direction it favors a transition from the IRS to the AS. In the heating curve there is a transition driven by the Zeeman energy of the ferromagnetic layer to the aligned state at temperature T_1 . The transition temperature T_1 depends on the external field strength, the anisotropy of the FM and AFM layers, and the thickness of the FM layer. In the AS the magnetization of the FM layer is along the external field direction ([001], which we shall call the z axis) and the AFM interface spins are in a configuration, which depends on the nature of the interface coupling (either ferromagnetic coupling or antiferromagnetic coupling). In this case the cooling curve starts in the AS and upon cooling one reaches a value of temperature T_2 , with $T_2 < T_1$, where the interface frustration is strong enough to overcome the ferromagnetic anisotropy energy barrier and the Zeeman energy, and the system switches back to the IRS. The width of the thermal hysteresis $(\Delta T = T_1 - T_2)$ may thus be tuned by the external field strength, the anisotropy energy density and the thickness of the FM layer, the strength of the interface field, and the magnetic properties (exchange and anisotropy energies) of the substrate.

Another interesting feature is that there is a minimum value of the external field strength to make the IRS unstable along the heating curve. For an external field above this critical value there is thermal hysteresis. This threshold value of the external field, H^* , may be estimated starting with the field strength corresponding to the fourfold anisotropy field of the FM layer. This would be the value of the external field to switch the FM layer from the [110] to the [001] direction in the absence of interface exchange energy. For iron the value of the threshold field is $H^* = 107.6$ Oe. 14 The interface exchange energy coupling adds stability to the IRS and the actual field required to switch the IRS is larger than H^* , even though the transition occurs close to the Néel temperature. Therefore, the threshold value of the external field required to produce an IRS-AS switch in the heating branch may depend on whether the interface coupling is antiferromagnetic or ferromagnetic. If the FM layer is ultrathin the magnetic energy may depend on the fine detail of the arrangement of spins in the near-interface region. Thus, as shown in detail below, one may use the thermal hysteresis of compensated bilayers to learn about the nature, ferromagnetic or antiferromagnetic, of the interface exchange energy.

In our model system we consider a bilayer with full compensation at a microscopic length scale, in which the magnetic structure takes no account of possible relaxation effects, either from geometrical or other reasons. The magnetic interactions between the FM layer and the AFM substrate is represented by an exchange-energy term, coupling interface spins from the two materials. Both materials are assumed to have the bulk structure, the AFM interface plane is made of equal number of spins of opposite sublattices and the magnetic interface structure is assumed uniform. The model is applied to Fe/FeF₂(110) and Fe/MnF₂(110) systems. It applies as well to bilayers with other intrinsically compensated substrates such as NiO(001) or NiO(110), CoO(001) or CoO(110), etc. Furthermore, it also applies to bilayers made of uncompensated antiferromagnetic substrates, with average compensation of the interface spin pattern produced by interface roughness.

We note that there have been a number of theoretical studies of interface phase transitions in FM/AFM structures, however, none of these examined thermal hysteresis. Some of these papers will be discussed in Sec. II, but we wish to point out two relevant papers at this point. A variety of bilayers and other structures have been studied, 15 with an emphasis on simple analytic expressions in special cases. The effect of the external magnetic field, a critical issue in this paper, was neglected. An interesting study focusing on spinflop transitions in the antiferromagnet produced by very large magnetic fields has been reported. 16 This work neglected the anisotropy in the ferromagnet, but did indicate a different method to evaluate the sign of the coupling between the ferromagnet and antiferromagnet.

II. MODEL

We study compensated bilayers with the stacking pattern of the Fe/MnF₂(110) and Fe/FeF₂(110) systems. The AFM substrate is a stacking of AFM planes containing moments from the two sublattices. Spins from a given sublattice in the same plane are considered equivalent, and to each plane we assign two spin variables. Except for the surface spins, the coordination number is z=8. Each AFM spin has four nearest neighbors (NNs) (of the opposite sublattice) in the same plane, and two nearest neighbors in the two neighboring planes. The normal to the surface is in the y-axis direction, the easy directions of the in-plane fourfold anisotropy of the FM material are along the x axis and the z axis, and the uniaxial anisotropy of AFM is along the z axis. The magnetic structure of the substrate is represented by the angles that each spin makes with the z axis $[\theta_n(1), \theta_n(2), n=1, \dots, N_{AFM}]$, and the thermal average value of the spins $[\langle S_n(1) \rangle, \langle S_n(2) \rangle, n=1, \dots, N_{AFM}] \theta_n(1)$ and $\theta_n(2)$ are the angles with respect to the easy axis for spins of sublattices 1 and 2 at the *n*th plane and N_{AFM} is the number of (110) planes in the AFM film. The ferromagnetic film with $N_{\rm FM}$ planes is represented in a similar manner, and the bilayer magnetic structure is described in terms of two interacting linear chains, each of which with $(N_{AFM}+N_{FM})$ spins.

The magnetic energy is given by

$$E = \sum_{n=\text{FM}} K_1 S_{z,n}^2 S_{x,n}^2 - \sum_{n=\text{AFM}} K S_{z,n}^2 - \sum_n g \mu_B \vec{S}_n \cdot \vec{H} - \sum_{nm} J_{nm} \vec{S}_n \cdot \vec{S}_m,$$
 (1)

where the first term is the fourfold anisotropy of Fe, the second term is the uniaxial anisotropy of AFM, the third term is the Zeeman energy, and the last term is the exchange energy. For the Fe spins we use S=1, g=2, and fourfold anisotropy constant $K_1=3.5\times 10^4~\mathrm{J/m^3}$, which amounts to an anisotropy field of $H_a=2K_1/M_S=0.4~\mathrm{kOe}$, with $M_S=1.7\times 10^6~\mathrm{A/m}$, and a distance between neighboring (110) atomic planes of 1.5 Å. Because of the strong exchange coupling in Fe, the Fe spins are effectively rigidly coupled to each other. These parameters reproduce the resonance frequency of thin Fe films. ¹⁷

For the antiferromagnetic materials we have selected the values of the magnetic parameters so as to reproduce the Néel temperatures and the ratios between the magnitude of the exchange and anisotropy fields. 18,19 For FeF $_2$ we have used $S=1,\ g=2,$ anisotropy field $(H_a=2K/g\mu_BS)$ of 149 kOe, exchange field $(H_e=8JS/g\mu_B)$ equal to 434 kOe, and Néel temperature $T_N=78$ K. For MnF $_2$ we have chosen $S=2.5,\ g=2,\ H_a=8.8$ kOe, $H_e=540$ kOe, and $T_N=67$ K. The exchange energy coupling the spins across the FM/AFM interface was assumed to be equal to the exchange energy of the AFM substrate.

The equilibrium pattern is found by requiring that each magnetic moment along the chains be parallel to the local effective field. Thermal effects are taken into account using a local mean-field approach, where the thermal average magnetic moment of each spin, $\langle \vec{m} \rangle = g \mu_B \langle \vec{S} \rangle$, is calculated using $\langle \vec{m} \rangle = g \mu_B S B_S (\frac{g \mu_B S \langle \vec{H}_{eff} \rangle}{k_B T})$, where $B_S (\frac{g \mu_B S \langle \vec{H}_{eff} \rangle}{k_B T})$ is the Brillouin function, $\langle \cdots \rangle$ denotes a thermal average, and the effective field \vec{H}_{eff} is obtained from the spin gradient of the magnetic energy. The spin orientation in the planes and the thermal values of the spins are both calculated self-consistently, using the method developed earlier and applied to the study of magnetic multilayers and AFM films. ^{18–20}

We point out that the calculational method used here assumes temperature-independent anisotropy constants, with the temperature dependence of the anisotropy energy coming through the mean-field treatment of the spin magnitudes. In fact, the temperature dependence of the anisotropy may be somewhat faster in reality than is indicated by this method.^{21,22} This should not be a problem for the ferromagnet, because the temperatures of interest here are all below 100 K, while the Curie temperature is above 1,000 K. Thus the expected changes in anisotropy in Fe are relatively small, in agreement with recent experiments.²³ Even if the anisotropy fields in the antiferromagnet decrease more quickly than expected from the mean-field treatment the general features of the behavior should not change substantially. As we will see, the evidence for this is seen in the fact that the Fe/FeF₂ and the Fe/MnF₂ structures have quite similar results for the width of the thermal hysteresis even though the anisotropies differ by a factor of about 15.

We start the calculation in the heating branch at low temperatures, where a magnetic configuration close to the IRS is expected. Thus, for any value of the external field, we initialize the variables at the IRS. This leads to a rapid convergence of the numeric procedure, in particular, for small values of the external field. For each subsequent value of the temperature, throughout both branches of the thermal loop, the self-consistent procedure is initialized with the magnetic state corresponding to the equilibrium state of the previous value of the temperature. Proceeding this way we find the metastable equilibrium state nearest to the preceding one, as appropriate to modeling the thermal hysteresis phenomena.

We focus on the effects of varying the external field strength and the thickness of the FM layer. The number of AFM planes was chosen so as to allow a full relaxation of the AFM magnetic structure within the AFM layer, starting with the transverse canted magnetic pattern at the interface AFM plane, down to the AFM order, with the AFM spins along the easy axis, at the free surface of the AFM layer. For both materials (MnF₂ and FeF₂) N_{AFM} =20 was enough to

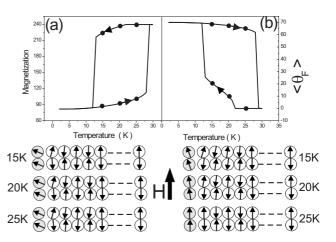


FIG. 2. (a) Component of magnetization along z axis for a Fe(9 nm)/MnF $_2$ (110) bilayer, in units of μ_B and (b) average angle of FM spins with the [001] direction for a thermal loop under an external field H=190 Oe along the z axis. In the spin panels on the left we show schematically the configuration of spins of FM layer (gray shaded symbols) and the AFM substrate for selected points in the heating branch. The panels on the right are for the cooling branch at the same values of temperature.

fulfill this condition throughout the thermal loops, for the chosen values of external field strength and the FM layer thickness.

The model used in this calculation corresponds to energy minimization. Such a scheme was used, for instance, by Koon²⁴ in finding the magnetic hysteresis curves for the FM/AFM structure. However, it was later shown that this model was inadequate for these calculations because it did not take into account an instability that occurs in dynamic calculations, which focus on the true time evolution of the structure.^{25,26} In the present case, however, where we calculate the thermal hysteresis curve, the instability should not occur because the magnetic structure in the antiferromagnet is always close to its ground state and does not have the large deviations seen in the twisted states found in a magnetic hysteresis experiment.²⁷

III. RESULTS AND DISCUSSIONS

In Fig. 2 we show a typical thermal loop for a Fe(9 nm)/MnF₂(110) bilayer with an external field of H=190 Oe along the z axis. Starting at T=2 K with the bilayer in the IRS, the transition to the AS phase occurs at T=29 K with the FM spins making an average angle of $\langle \theta_F \rangle \approx 62^\circ$ with the z axis. Upon cooling from T=30 K there is a gradual switch back to the IRS starting at 21 K, closing the thermal hysteresis loop at T=12 K, corresponding to a temperature width of 17 K. The deviations of the spins in the AFM interface plane from the AFM easy axis in both branches of the thermal loop are smaller than an angle of 15° and the relaxation of the interface magnetic pattern involves at most five AFM atomic planes throughout the thermal loop.

Looking at the results shown in Fig. 3 for the $Fe(12 \text{ nm})/MnF_2(110)$ bilayer, one finds that there is a large decrease in the width of the thermal hysteresis with the

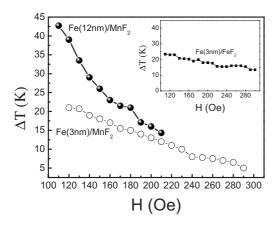


FIG. 3. Width of the thermal hysteresis for $Fe(12 \text{ nm})/MnF_2(110)$ and $Fe(3 \text{ nm})/MnF_2(110)$ bilayers, and for a $Fe(3 \text{ nm})/FeF_2(110)$ bilayer (in the inset).

strength of the external field, starting at ΔT =43 K for H=110 Oe, and going down to ΔT =14 K for H=210 Oe. This corresponds to closed thermal loops, similar to that shown in Fig. 2. The field dependence of ΔT originates in the fact that both the temperatures T_1 (for the IRS-AS transition) and T_2 (for the AS-IRS transition) decrease with the magnitude of H, however T_1 decreases faster. For instance: for H=110 Oe, T_1 =62 K and T_2 =20 K; for H=150 Oe, T_1 =43 K and T_2 =16 K; for H=190 Oe, T_1 =29 K and T_2 =12 K; and for H=200 Oe, T_1 =26 K and T_2 =10 Oe.

The decrease in the temperature width of the thermal hysteresis with the magnitude of the external field can be understood using a simple argument. If the AFM interface spins were not stabilized by the FM layer then at the Néel temperature there would be no interface effect, the extra stability of the IRS coming from the interface energy would vanish, and a field of $H=H^*$ (the FM anisotropy field) would produce a IRS-AS transition. By increasing the value of the external field strength beyond H^* one should be able to overcome the total-energy barrier, which holds the IRS stable at a value of temperature smaller than T_N . The larger the value of the external field strength the lower is the value of T_1 . This is the reason for the field dependence of T_1 , except for the fact that there is an interface stabilization of the AFM interface spins and the minimum value of the external magnetic field to produce the IRS-AS switch is larger than H^* . The temperature T_2 , corresponding to the lower limit of the thermal hysteresis, is associated with the instability of the AS in the cooling branch. The energy barrier holding the AS in place comes from the anisotropy of the FM layer and the Zeeman energy. From the point of view of the Zeeman energy one might think that when the external field is made larger it is possible to hold the AS stable until lower temperatures. On the other hand the interface exchange energy is smaller in the IRS. The transition from the AS to the IRS at low temperatures comes as a result of the balance between the anisotropy energy, Zeeman energy, and the interface exchange energy. The weaker dependence of T_2 on the value of the external field strength is due to the fact that at low temperatures the AFM spins have thermal average values near those of saturation, and the field effect on the interface energy is smaller.

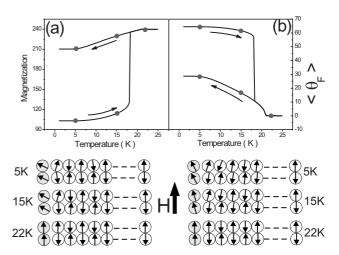


FIG. 4. (a) Component of magnetization along z axis for a Fe(9 nm)/MnF $_2$ (110) bilayer, in units of $\mu_{\rm B}$ and (b) average angle of FM spins with the [001] direction for a thermal loop under an external field H=220 Oe along the z axis. In the panels on the left we show schematically the configuration of spins of FM layer (gray shaded symbols) and the AFM substrate for selected points in the heating branch. The panels on the right are for the cooling branch at the same values of temperature.

Thus by changing the external field one gets small changes in the value of the temperature T_2 , for the AS-IRS transition.

The results shown in Fig. 3 for the thinner ferromagnetic layers, the Fe(3 nm)/MnF₂ and the Fe(3 nm)/FeF₂ structures, indicate that the field effect on the width of the thermal hysteresis is much weaker for the thin Fe films. In both cases the interface energy is a larger fraction of the total energy of the bilayer. Therefore the changes produced by the external field in the values of the transition temperatures T_1 and T_2 , are smaller than for the Fe(12 nm)/MnF₂(110) bilayer. Also, field tuning of the thermal hysteresis is stronger in Fe(3 nm)/MnF₂ than in Fe(3 nm)/FeF₂, because for the later case there is a much larger contribution of the AFM anisotropy to the magnetic energy of the bilayer. Thus, the Zeeman energy is a smaller fraction of the total magnetic energy.

The IRS is stabilized by the interface exchange energy, which is proportional to the thermal average value of the antiferromagnetic spins at the interface. Since the interface exchange energy becomes small at sufficiently high temperature, the IRS-AS transition in the heating branch is certain to occur if the external field is strong enough to overcome the anisotropy barrier of the ferromagnetic layer. The same is not true for the AS-IRS transition. By increasing the external field one may reach a value of H for which the AS-IRS transition in the cooling branch does not occur. In this case starting at low temperatures in the IRS, there is a transition to the AS at some temperature T_1 , and upon cooling the bilayer back to the initial value of temperature the system does not return to the original IRS. In Fig. 4 we show an example of this case, for a Fe(9 nm)/MnF₂(110) bilayer, subjected to an external field of 220 Oe. As shown in Fig. 4, starting at low temperatures in the IRS, with the FM spins making an average angle of $\langle \theta_F \rangle \approx 64^{\circ}$ with the z axis, and a low value of the magnetization along the external field direction, there is a transition to the AS around $T=18\,$ K, and by heating a little further, one reaches saturation of the magnetization in the external field direction around $T=21\,$ K. The Zeeman energy plays a dominant role in the energy balance and the sequence of magnetic states along the cooling branch. Starting at T=25 K with the bilayer in the AS, and the magnetization saturated along the external field, the cooling branch is a sequence of AS, all the way down to very low temperatures, with the ferromagnetic spins at small angles with the external field. The average angle of the Fe spins with the z axis evolves from $\langle \theta_F \rangle = 0$ at T = 21 K and, by completing the thermal loop, reaches the value of $\langle \theta_F \rangle \approx 28^{\circ}$ at T=5 K. Notice that the ferromagnetic anisotropy energy is nearly the same in the initial and final states of the thermal loop. Starting in the IRS at T=5 K in the heating branch with $\langle \theta_F \rangle \approx 64^{\circ}$, the thermal loop ends with the system in the AS with $\langle \theta_F \rangle \approx 28^{\circ}$ at T=5 K in the cooling branch. However, the Zeeman energy is large enough to inhibit the transition to the IRS at low temperatures. We have found that for larger values of the external field strength the high-temperature state stays stable till low temperatures and the thermal loop produces a switch from an initial magnetic state to another final state. This is a point that might be of some interest for magnetoelectronic applications, in which device operation involves heating of the interface between a ferromagnetic thin film and an antiferromagnetic substrate.

The IRS-AS transition in the heating branch of the thermal loop of an Fe(9 nm)/MnF₂(110) bilayer occurs at temperatures of T_1 =29 K, for an external field of 190 Oe, and at T_1 =18 K for an external field strength of 220 Oe. In both cases T_1 is well below the Néel temperature of the MnF₂ substrate, and the thermal average value of the antiferromagnetic spins is near the saturation value at the transition temperature. For the examples considered up to this point, the energy balance at the transition temperature does not depend strongly on the nature (ferromagnetic or antiferromagnetic) of the interface exchange coupling. We have found (results not shown) that the IRS-AS transition in the heating branch occurs at roughly the same temperatures for either antiferromagnetic or ferromagnetic interface coupling.

By making the Fe layer thinner and reducing the external field strength, one may upshift the transition temperature T_1 to very close to the Néel temperature. In this temperature limit the magnetic order in the substrate is limited to a few planes from the interface. The spins in the antiferromagnets near the interface are stabilized by the interface exchange energy with the ferromagnetic layer and the external field. The remaining spin in the antiferromagnet have thermal average moments, which are close to zero. In essence there is a liquid moment for the spins in the antiferromagnet just at the interface when they are small in magnitude and only weakly stabilized.

Most interestingly, the sign of the interface exchange constant can be inferred from the thermal loops of the thin FM layers under the action of an external field smaller than the ferromagnet anisotropy field. In Fig. 5 we show that the thermal loop of an Fe(3 nm)/MnF $_2$ (110) bilayer under an external field H=104 Oe exhibits thermal hysteresis if the interface exchange energy is ferromagnetic. We also show in Fig. 5 that there is no thermal hysteresis if the interface exchange energy is antiferromagnetic.

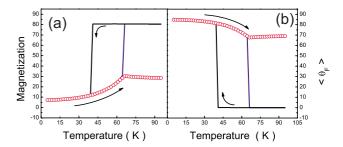


FIG. 5. (Color online) (a) Component of magnetization along z axis in units of $\mu_{\rm B}$ and (b) average angle of FM spins with the [001] direction for a thermal loop of a Fe(3 nm)/MnF₂(110) bilayer under an external field H=104 Oe. The continuous line curves and open symbol curves correspond to FM and AFM interface exchange energies.

The two cases differ in the arrangements of the interface spins in the antiferromagnet at elevated temperatures. For ferromagnetic interface exchange coupling, the net moment of the substrate spins at the interface plane is slightly larger than in the case of antiferromagnetic interface exchange coupling. This rather small difference leads to a relevant difference in the effective exchange field on the ferromagnetic layer as we will see below.

Near the Néel temperature the net moment of the AFM spins at the interface plane, points in a direction very close to the exchange field produced by the ferromagnetic interface spins. For ferromagnetic (antiferromagnetic) interface exchange coupling, the liquid moment of the AFM spins at the interface plane are nearly parallel (antiparallel) to the direction of the FM spins. The magnetic order of the substrate spins is almost entirely due to the exchange field produced by the interface ferromagnetic spins. However, there is also a small contribution from the external field. For ferromagnetic (antiferromagnetic) coupling the spins at the substrate interface plane are thermally stabilized by an effective field with z component on the order of 10^5 Oe, the interface exchange field, plus (minus) the external field of 104 Oe. Thus, for ferromagnetic interface exchange coupling, the thermal average value of the AFM interface spins is slightly larger. As a result, the z-axis component of the liquid moment of the AFM spins at the interface plane is slightly larger than for the case of antiferromagnetic interface exchange coupling.

For low temperatures, as shown in Fig. 6, the absolute value of the z-axis component of the liquid moment $|\langle \delta S_{INT} \rangle|$ of the AFM interface spins has the same value for either ferromagnetic or antiferromagnetic interface exchange coupling. In both cases $|\langle \delta S_{INT} \rangle|$ turns larger near the Néel temperature, reaching $|\langle \delta S_{INT} \rangle| = 0.29$, for ferromagnetic coupling, and $|\langle \delta S_{INT} \rangle| = 0.25$ for antiferromagnetic coupling. The small difference of about 0.04, amounts to 1.6% of the saturation value of a MnF₂ spin. However, the corresponding difference in the z-axis component of the exchange field on the ferromagnetic interface spins is not negligible. As shown in Fig. 6 (right vertical axis), near the Néel temperature it is on the order of 1 kOe, favoring the transition to the AS for ferromagnetic interface coupling. This increase in the effective field allows the ferromagnetic moments to cross the hard axis and to be stabilized along the field in the aligned state as seen in Fig. 5.

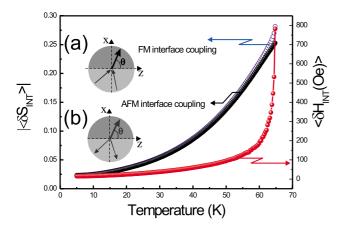


FIG. 6. (Color online) Absolute value of the net moment of the interface AFM spins along the z axis and the exchange field on the FM interface spins along the heating branch of the thermal loop of a Fe(3 nm)/MnF $_2$ (110) bilayer under an external field H=104 Oe. The open symbol blue curve and the full symbol black curve correspond to the absolute value of the net moment of the interface spins for FM and AFM interface exchange energies. The open symbol red curve (right vertical axis) shows the difference in the interface exchange field on the FM interface spins between the FM and AFM coupling cases. The insets represent schematically the interface spin configurations for (a) FM and (b) AFM interface coupling.

The above phenomenology relies on rather small differences in the orientation of the interface spins according to the nature of the interface exchange energy. For ferromagnetic interface coupling the transition occurs at a temperature of 66.2 K, corresponding to 98% of the Néel temperature. We have also examined the case of FeF₂ substrate (results not shown). For a Fe(3 nm)/FeF₂ bilayer and an external field of 54 Oe there is an IRS-AS transition at 76.99 K for ferromagnetic interface coupling and no thermal hysteresis in the case of antiferromagnetic interface coupling. Again the transition occurs at approximately 98% of the Néel temperature, suggesting that one may use thermal hysteresis to investigate the nature of the interface exchange coupling.

We have found that the range of the external field strengths that allows one to determine the kind of exchange interaction at the interface is a narrow field interval just below H^* . For external field strengths larger than the anisotropy field of the ferromagnet, there is thermal hysteresis for both kinds of coupling. For H much smaller than H^* , there is no thermal hysteresis for either ferromagnetic or antiferromagnetic coupling. The minimum value of the external field strength required for thermal hysteresis for ferromagnetic coupling is slightly smaller than that required in the case of antiferromagnetic coupling. In the case of the $Fe(3 \text{ nm})/MnF_2(110)$ bilayer, for ferromagnetic coupling there is thermal hysteresis for H larger than 104 Oe and for antiferromagnetic coupling the minimum value of external field is 105.5 Oe.

We have also investigated the effect of increasing the FM anisotropy. For a 50% increase in the anisotropy (from 0.4 kOe, as used in the paper for iron, to 0.6 kOe) the critical field H^* increases from 107.6 Oe (as used in the paper) to

161.4 Oe. In this case we have found that for ferromagnetic coupling there is thermal hysteresis if the external field strength is larger than 158 Oe, whereas for antiferromagnetic coupling the minimum value of external field is 160.5 Oe.

In our present investigation the frustration in the interface exchange coupling is due to the microscopic structure of the stacking of AFM planes, leading to an interface plane with full compensation at a microscopic length scale (equal number of spins of opposite sublattices are present at the interface plane magnetic unit cell). This model applies to intrinsically compensated FM/AFM bilayers, consisting of two layers (the ferromagnetic film and the antiferromagnetic substrate) with ideal magnetic structure, identical to that of the bulk of each material.

The model presented here involves the coupling of a ferromagnet to a perfectly compensated antiferromagnetic surface. Clearly, roughness might change the compensation. This has been investigated theoretically, for example, in Refs. 28 and 29. One feature that came out of these studies is that as the system moves away from the compensated structure, the state illustrated in Fig. 1(a) changes in that the ferromagnet spins cant in the direction of one of the sublattices of the antiferromagnet. In the normal magnetic hysteresis measurement, this leads to a shifting in the hysteresis curve so that the hysteresis loop is no longer centered at zero field. For the thermal hysteresis considered here, it could mean that the thermal hysteresis curves should depend on the direction of the applied field, i.e., whether the field is applied parallel to one sublattice of the antiferromagnet or the other.

The present discussion may also apply to systems with compensation of the interface spin pattern on an average over interface areas of mesoscopic dimensions. Two interesting examples of current interest are FM/AFM bilayers with interface energy compensation due to interface roughness^{30–32} and vicinal bilayers.³³ Field-tunable thermal hysteresis is likely to occur in these exchange-coupled FM/AFM bilayers,^{30–33} provided that the interface magnetic structure is compensated at a length scale smaller than the exchange length of the ferromagnetic material.

In summary, we have investigated thermal bistability of thin iron layers, with thicknesses of a few nanometers, exchange coupled to compensated $MnF_2(110)$ and $FeF_2(110)$ substrates. At high temperatures the system is in a fieldaligned state, with the iron layer spins along the external field direction and the net interface exchange energy is zero. At low temperatures, with the thermal average value of the substrate spins near saturation, the frustration of the interface exchange energy leads to a $\pi/2$ rotation of the iron layer spins to the direction perpendicular to the AFM easy axis and the formation of a liquid magnetic moment in the substrate interface plane oriented parallel (for ferromagnetic interface exchange energy) or antiparallel (for antiferromagnetic interface exchange energy) to the magnetization of the iron layer. The anisotropy barrier separating the high-temperature state, controlled by the Zeeman energy, and the low-temperature state, controlled by the interface exchange coupling, leads to thermal bistability in a temperature interval below the Néel temperature, which is tunable by external field strengths on the order of a few hundred Oe.

Also, the nature of the interface exchange coupling (either ferromagnetic or antiferromagnetic) may be investigated from the thermal loops of bilayers made of thin iron layers and for small values of the external field strength.

We have also shown that for large values of the external field strength the high-temperature state stays stable throughout the cooling branch of thermal loop down to low temperatures, and the thermal loop produces a switch from an initial magnetic state (IRS) to another final state (AS). We argue that this may have interest for magnetoelectronics applications if device operation involves heating of the interface

between a ferromagnetic film and an antiferromagnetic substrate

ACKNOWLEDGMENTS

The authors acknowledge financial support from CAPES and FAPERN. The work of A.S.C. was supported by CNPq under Grant No. 350773 and the work of A.L.D. was supported by CNPq under Grant No. 309676. The work of R.E.C. was supported by DOA under Grant No. W911NF-04-1-0247.

- *Corresponding author. FAX: +55-84-32153791; acarrico@dfte.ufrn.br
 - ¹S. Demirtas, R. E. Camley, and A. R. Koymen, Appl. Phys. Lett. **87**, 202111 (2005).
- ²R. E. Camley, W. Lohstrohb, G. P. Felcherc, N. Hosoitod, and H. Hashizume, J. Magn. Magn. Mater. **286**, 65 (2005).
- ³S. Demirtas, M. R. Hossu, R. E. Camley, H. C. Mireles, and A. R. Koymen, Phys. Rev. B **72**, 184433 (2005).
- ⁴M. R. Hossu, Y. Hao, and A. R. Koymen, J. Phys.: Condens. Matter **20**, 215224 (2008).
- ⁵J. P. Andrés, J. A. González, T. P. A. Hase, B. K. Tanner, and J. M. Riveiro, Phys. Rev. B 77, 144407 (2008).
- ⁶ A. L. Dantas, R. E. Camley, and A. S. Carriço, IEEE Trans. Magn. **42**, 2942 (2006).
- ⁷ A. L. Dantas, R. E. Camley, and A. S. Carriço, Phys. Rev. B **75**, 094436 (2007).
- ⁸ A. L. Dantas, A. S. W. T. Silva, G. O. G. Rebouças, A. S. Carriço, and R. E. Camley, J. Appl. Phys. **102**, 123907 (2007).
- ⁹T. J. Moran, J. Nogués, D. Lederman, and I. K. Schuller, Appl. Phys. Lett. **72**, 617 (1998).
- ¹⁰ J. Nogues, D. Lederman, T. J. Moran, and I. K. Schuller, Phys. Rev. Lett. **76**, 4624 (1996).
- ¹¹ Z.-P. Li, J. Eisenmenger, C. W. Miller, and I. K. Schuller, Phys. Rev. Lett. **96**, 137201 (2006).
- ¹²M. L. Silva, A. L. Dantas, and A. S. Carriço, J. Magn. Magn. Mater. **292**, 453 (2005).
- ¹³M. L. Silva, A. L. Dantas, and A. S. Carriço, Solid State Commun. **135**, 769 (2005).
- ¹⁴The value of H^* may be calculated from the analysis of stability of the bulk equilibrium state, considering the energy density composed of the fourfold anisotropy plus Zeeman energy.
- ¹⁵ P. J. Jensen, H. Dreysse, and M. Kiwi, Eur. Phys. J. B 46, 541 (2005)
- ¹⁶N. Cramer and R. E. Camley, Phys. Rev. B **63**, 060404(R)

- (2001).
- ¹⁷ Yu. V. Goryunov, N. N. Garif'yanov, G. G. Khaliullin, I. A. Garifullin, L. R. Tagirov, F. Schreiber, Th. Mühge, and H. Zabel, Phys. Rev. B **52**, 13450 (1995).
- ¹⁸ A. S. Carriço and R. E. Camley, Phys. Rev. B **45**, 13117 (1992).
- ¹⁹ A. S. Carriço and R. E. Camley, Solid State Commun. **82**, 161 (1992).
- ²⁰ A. L. Dantas and A. S. Carriço, Phys. Rev. B **59**, 1223 (1999).
- ²¹H. B. Callen and E. Callen, J. Phys. Chem. Solids **27**, 1271 (1966).
- ²² Y. Millev and M. Fahnle, Phys. Rev. B **51**, 2937 (1995).
- L. Wee, R. L. Stamps, L. Malkinski, and Z. Celinski, Phys. Rev. B 69, 134426 (2004); B. Heinrich, Z. Celinski, J. F. Cochran, A. S. Arrott, and K. Myrtle, J. Appl. Phys. 70, 5769 (1991).
- ²⁴N. C. Koon, Phys. Rev. Lett. **78**, 4865 (1997).
- ²⁵T. C. Schulthess and W. H. Butler, Phys. Rev. Lett. **81**, 4516 (1998).
- ²⁶ R. E. Camley and R. J. Astalos, J. Magn. Magn. Mater. **198-199**, 402 (1999).
- ²⁷R. E. Camley, B. V. McGrath, R. J. Astalos, R. L. Stamps, J.-V. Kim, and L. Wee, J. Vac. Sci. Technol. A **17**, 1335 (1999).
- ²⁸J.-V. Kim, R. L. Stamps, B. V. McGrath, and R. E. Camley, Phys. Rev. B **61**, 8888 (2000).
- ²⁹ B. V. McGrath and R. E. Camley, J. Appl. Phys. **87**, 6430 (2000).
- ³⁰ T. J. Moran and I. K. Schuller, J. Appl. Phys. **79**, 5109 (1996).
- ³¹R. Jungblut, R. Coehoorn, M. T. Johnson, Ch. Sauer, P. J. van der Zaag, A. R. Ball, Th. G. S. M. Rijks, J. aan de Stegge, and A. Reinders, J. Magn. Magn. Mater. **148**, 300 (1995).
- ³² A. L. Dantas, G. O. G. Rebouças, A. S. W. T. Silva, and A. S. Carriço, J. Appl. Phys. **97**, 10K105 (2005).
- ³³ A. L. Dantas, G. O. G. Rebouças, and A. S. Carriço, J. Appl. Phys. **105**, 07C116 (2009).