

CENTRO BRASILEIRO DE PESQUISAS FÍSICAS
Departamento de Física de Baixas Energias

Mecanismos de relaxação em filmes
magnéticos à base de FeSiB: um estudo por
ressonância ferromagnética de banda larga

Marcos José Pereira Alves

Tese de Doutorado

Orientador: Rubem Luís Sommer

Rio de Janeiro, Junho de 2015

*Dedico esta tese a Deus,
aos meus pais, a minha querida esposa Carolina
e em memória de minha filha Clarisse Cerqueira Alves.*

Agradecimentos

Agradeço a Deus pela oportunidade de continuar realizando o meu trabalho. Aos meus pais pela dedicação e amor atribuído durante a minha vida. Agradeço a minha esposa Carolina pelo amor, carinho e paciência. Agradeço aos meus amigos Érico e sua esposa Andrea, Jeovani, Tatiana, Roberta, Bruno, Naiara, Diego, Leonardo e ao professor Gomes que me ajudaram diretamente ou indiretamente no desenvolvimento desse trabalho. Aos técnicos e professores do departamento de Física Experimental e Baixas Energias (EXP) pelo pronto apoio a qualquer momento. Em especial ao laboratório de Raios x pelo livre acesso. Ao Professor Rubem Sommer pela paciência e orientação. A CAPES pelo financiamento de minha bolsa.

Resumo

Nessa tese foi investigado o efeito do tratamento térmico nas propriedades estruturais e magnética de filmes do tipo Finemet, os quais foram obtidos a partir da cristalização parcial de filmes com composição $\text{Fe}_{73.5}\text{Nb}_3\text{Cu}_1\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$. Os filmes foram produzidos por *RF Magnetron Sputtering* com espessuras de 100 nm, 200 nm e 500 nm. Tais filmes foram submetidos a tratamento térmico em forno convencional sob alto vácuo por 1 hora. As propriedades estruturais foram investigadas por Difração de Raios-X na geometria de incidência rasante (GIXRD), enquanto que as propriedades magnéticas foram determinadas por medidas de curvas de histerese e de absorção de FMR em banda larga. As curvas de histerese foram obtidas a partir de um magnetômetro de Amostra Vibrante (VSM) e as medidas de absorção de microondas foram obtidas por experimento de ressonância ferromagnética (FMR) em banda larga com um analisador de rede vetorial. Os picos de difração foram ajustados usando uma função voigt, de forma que o tamanho de grão (ξ) e a microdeformação (ϵ) foram obtidos a partir das contribuições lorentzianas e gaussianas da larguras de linha, enquanto que o parâmetro de rede foi obtido pela lei de Bragg. A partir da curva de histerese foi obtida a evolução da coercividade (H_C), do campo de anisotropia (H_A), da distribuição de anisotropia e da magnetização de saturação (M_s) com a temperatura de recozimento. A partir do ajuste do espectro de absorção de FMR investigamos o efeito do tratamento térmico e da espessura na relação dispersão dos modos de ressonância e os processos de relaxação e alargamento da largura de linha de FMR. De forma que a dependência entre a frequência e o campo de ressonância foi descrita pela relação de dispersão de Kittel e os processos de relaxação e alargamento da largura de linha de FMR foram determinados a partir do comportamento da largura de linha de FMR em função da frequência de excitação. Para os filmes de 100 nm e 200 nm observamos que o processo de cristalização é determinado pelo nível de stress compressivo causado pela diferença de expansão térmica entre o substrato e o filmes. Tal stress pode ser reduzido com tratamento térmico a temperatura próximas de 350 °C. Observamos que, para o filme de 500 nm, o processo de cristalização sofre pouca influência da deformação compressiva causada pela diferença de expansão térmica entre o substrato e o filme. Isso ocorre devido a espessura do filme. Pois, o maior volume de grãos cristalizando induz um aumento da deformação extensiva causada pelo crescimento do grão que compete com a deformação compressiva. Para o filme de 100 nm observamos que coercividade e o campo de anisotropia é reduzido para $H_C = 2.8$ Oe e $H_A = 7.5$ Oe com o alívio de stress a 350 °C.

O filme de 200 nm mostrou que a coercividade e a anisotropia são determinadas pelo nível de stress compressivo, o qual por sua vez controla o tamanho de grão. Em relação ao filme de 500 nm observamos uma redução da coercividade e do campo de anisotropia para $H_C = 1.5$ Oe e $H_A = 16.1$ Oe com o tratamento térmico realizado a $T_A = 500^\circ\text{C}$. Tal efeito se deve ao crescimento de grãos nanométricos de $\alpha\text{-Fe}_{1-x}\text{Si}_x$ que aliviam o stress causado pela deformação compressiva e reduzem a anisotropia magnetocristalina. Nós correlacionamos o efeito do stress não uniforme obtido por GIXRD com a largura de linha de FMR devido a não homogeneidade do campo efetivo (ΔH_{INO}). Nas amostra de 100 nm sem tratamento térmico e tratadas na faixa de temperatura de $T_A = 100^\circ\text{C}$ a $T_A = 400^\circ\text{C}$ observamos que a largura de linha de FMR devido aos mecanismo de relaxação de Gilbert (ΔH_G) e espalhamento dois mágnons (ΔH_{TMS}) são da mesma ordem, enquanto que a largura de linha devido a não homogeneidade é a principal contribuição (ΔH_{INO}). Observamos que a largura de linha (ΔH_{INO}) da amostra de 100 nm é reduzida para 28 Oe com o alívio de stress na temperatura de tratamento de 350°C . No caso das amostras de 200 nm e 500 nm, observamos que a largura de linha de FMR experimental (ΔH_{EXP}) é dominada pela contribuição ΔH_{INO} . Além disso, observamos que para as amostras de 200 nm e 500 nm o comportamento da largura de linha de FMR experimental é determinada por uma função que descreve o efeito do mecanismo dois mágnons na largura de linha de amostras *Bulk*. Em geral, observamos que a largura de linha ΔH_{INO} tende a ser a principal contribuição que por sua vez pode ser reduzida com o alívio de stress.

Abstract

In this thesis we investigate the effect of annealing on structural and magnetic properties of Finemet type films, which were obtained from the partial crystallization of films with composition. The films were produced by in thicknesses of 100 nm, 200 nm and 500 nm. These films were subjected to heat treatment in a conventional oven under high vacuum for 1 hour. The structural properties were investigated by X-ray diffraction at grazing incidence geometry (GIXRD), while the magnetic properties were determined by measurements of the hysteresis curve and FMR broadband absorption. The hysteresis curves were obtained from a vibrating sample magnetometer (VSM) and measurements of microwave absorption were obtained by experiment ferromagnetic resonance (FMR) broadband with a vector network analyzer. The diffraction peaks were fitted using a Voigt function, so that the grain size and the microstrain was obtained from Lorentzian and Gaussian contribution, while the lattice parameter was obtained by Bragg's law. From the hysteresis curve was obtained evolution of coercivity (H_C), anisotropy field (H_A), anisotropy distribution and saturation magnetization (M_s) at the annealing temperature. From the fitting of the FMR absorption spectrum we investigated the effect of annealing and thickness at dispersion relation of resonant modes and relaxation processes and broadening of the FMR linewidth. In order that the resonance conditions were determined by Kittel dispersion relation and relaxation process and broadening of the FMR linewidth was determined from the FMR linewidth behavior as a function of the excitation frequency. For films 100 nm and 200 nm was observed that the crystallization process is determined by the compressive stress level caused by the thermal expansion difference between the substrate and the film. This stress can be reduced by annealing at temperatures around 350 °C. We observed that, for the film 500 nm, the process of crystallization is less influenced by compression deformation caused by the thermal expansion difference between the substrate and the film. This occurs because the film thickness. The increase of film thickness induces the increase of crystallized grain volume which in turn increases the extensive deformation caused by grain growth which competes with compressive deformation. For the film 100 nm we observed that coercivity and anisotropy field is reduced to $H_C = 2.8$ Oe and $H_A = 7.5$ Oe with stress relief at 350 °C. The film 200 nm showed that the coercivity and anisotropy are determined by the level of compressive stress, which in turn controls the grain size. For the film 500 nm we observed that coercivity and anisotropy field is reduced for $H_C = 1.5$ Oe and $H_A = 16.1$ Oe with the

annealing performed to $T_A = 500^\circ\text{C}$. This effect is due to the nanometric grain growth of $\alpha\text{-Fe}_{1-x}\text{Si}_x$ that relieve the stress caused by the compressive deformation and decreases the magnetocrystalline anisotropy. We correlated the effects of nonuniform stress obtained by GIXRD with the FMR line width due to non homogeneity of the effective field (ΔH_{INO}). The samples of 100 nm annealed in the temperature range of $T_A = 100^\circ\text{C}$ to $T_A = 400^\circ\text{C}$ observed that the FMR line width due to mechanism Gilbert (ΔH_G) and two magnons scattering (ΔH_{TMS}) are of the same order, while line width due to inhomogeneity is the main contribution (ΔH_{INO}). We observed that the line width (ΔH_{INO}) of the sample 100 nm is reduced to 28 Oe with the relief of stress due to the annealing at 350°C . For samples 200 nm and 500 nm, we observed that the experimental FMR line width (ΔH_{EXP}) is dominated by the contribution ΔH_{INO} . In addition, we observed that for samples of 200 nm and 500 nm the behavior of the experimental FMR linewidth is determined by a function that describes the effect of the mechanism two magnons in the linewidth of Bulk samples. In general, we observed that the line width ΔH_{INO} tends to be the main contribution which in turn can be reduced with stress relief.

Sumário

Agradecimentos	iii
Resumo	v
Abstract	vii
Lista de Figuras	xi
1 Introdução	1
2 Materiais amorfos e nanocristalinos	5
2.1 Processo de cristalização de ligas do tipo Finemet	8
2.2 Influência da cristalização nas propriedades magnéticas	10
3 Ressonância Ferromagnética	17
3.1 Equação de movimento	18
3.2 Modo de precessão uniforme	20
3.3 Ondas de spin	24
3.4 Equação de movimento amortecido	31
4 Mecanismos de Relaxação	37
4.1 Mecanismos de Relaxação intrínseco	37
4.1.1 Espalhamento devido a interação de mágnon-elétron	38
4.2 Mecanismos de Relaxação extrínseco	39
4.2.1 Mecanismos espalhamento dois magnons em <i>Bulk</i>	41
4.2.2 Mecanismos espalhamento dois magnons em filmes finos	42
4.3 Alargamento da largura de linha	44
5 Métodos e Procedimentos Experimentais	47
5.1 Produção das Amostras	47
5.1.1 <i>Magnetron Sputtering</i>	48
5.2 Caracterização Estrutural	49
5.2.1 Difração de Raios-X	49
5.3 Caracterização Magnética	55

5.3.1	Magnetômetro de Amostra Vibrante	56
5.3.2	Ressonância Ferromagnética de banda larga (VNA-FMR)	57
6	Resultados Experimentais	61
6.1	Caracterização estrutural	62
6.1.1	Difratogramas de raio x em função do tratamento	63
6.1.2	Parâmetros estruturais em função do tratamento	67
6.2	Caracterização estática da magnetização	75
6.2.1	Curvas de histerese	76
6.2.2	Coercividade, campo de anisotropia e magnetização de saturação em função do recozimento	82
6.3	Caracterização da dinâmica da magnetização	87
6.3.1	Espectros de absorção de FMR obtidos por VNA-FMR	88
6.3.2	Caracterização dos Processos de Relaxação e alargamento da lar- gura de linha de FMR	93
7	Conclusões e Perspectivas	107
7.1	Perspectivas	111
	Referências Bibliográficas	115

Lista de Figuras

2.1	Curva de histerese de uma amostra ferromagnética de Fe-Si 3% [1]. . . .	6
2.2	Relação entre a permeabilidade relativa e a indução de saturação para materiais ferromagnéticos macios amorfo, nanocristalinos e cristalinos [2].	7
2.3	a) Antes do tratamento térmico temos uma estrutura amorfa com composição $\text{Fe}_{73.5}\text{Nb}_3\text{Cu}_1\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$, b) com o início da cristalização é formado uma estrutura de aglomerados de cobre, c) no decorrer do tratamento térmico há a formação de estruturas de $\alpha\text{-FeSi}$ nas regiões ricas em cobre enquanto que o Nióbio impede o crescimento desordenado da mesma e assim da competição entre o Nióbio e o Cobre d) forma-se os nanocristais de $\alpha\text{-FeSi}$ [3].	9
2.4	a) Para grãos maiores que o comprimento de troca temos que a energia magnetocristalina é minimizada dentro de cada grão. b) Para tamanhos de grãos menores que o comprimento de troca temos que a anisotropia magnetocristalina é minimizada sobre vários grãos [4].	11
2.5	Efeito do tamanho de grão ξ na coercividade e na permeabilidade relativa em materiais ferromagnéticos do tipo Finemet [5].	12
3.1	Precessão uniforme de um conjunto de momentos magnéticos. Nesse modo de precessão todos os momentos magnéticos oscilam com a mesma fase de forma que o vetor de onda de spin k é igual a zero, figura retirada da referência [6].	21
3.2	Precessão não uniforme de um conjunto de momentos magnéticos. Nesse modo de precessão todos os momentos magnéticos oscilam com uma certa defasagem de forma que o vetor de onda de spin k é diferente de zero, figura retirada da referência [6].	26
3.3	coordenadas do vetor de ondas de spin em uma amostra infinitamente extensa com a magnetização orientada na direção $\hat{z}$	28
3.4	Coordenadas do vetor de onda de spin $\mathbf{k}$ em uma filme fino com espessura d e dimensões laterais infinita. Nesse sistema o vetor de onda de spin é confinado no plano da amostra.	31
5.1	Sistema de deposição <i>Magnetron Sputtering</i> figura retirada da tese [7]. . .	49

5.2	Reflexão de dois feixes de raio x entre dois planos atômicos no interior de um material cristalino.	50
5.3	Geometrias de análise de difração de raios x. (a) Geometria Bragg-Brentano e (b) incidência rasante.	52
5.4	Efeito do alargamento provocado pelo estreitamento da estrutura cristalina um cristal. (a) Pico de Bragg para um cristal infinito e (b) um cristal finito e (c) um material amorfo	53
5.5	Efeito da tensão sobre os picos de difração, b) uma tensão uniforme desloca os picos e c) uma tensão não uniforme promove uma alargamento dos picos de difração	54
5.6	Desenho esquemático do magnetômetro de amostra vibrante do laboratório de magnetometria aplicada do CBPF, figura retirada da referência [8]. . .	57
5.7	Desenho esquemático do sistema de ressonância ferromagnética em banda larga com analisador de rede vetorial do laboratório de magnetometria aplicada do CBPF, figura retirada da referência [9].	59
5.8	Mapa de cor da amostra de 100 nm como depositada com os cortes transversais a 3GHz e 6 GHz. Esses cortes mostram a medida de absorção de FMR em função do campo para essas frequências	60
6.1	Padrão de difração obtido por incidência rasante do filme de 100 nm tratado a temperatura de 450° C. Tal amostra exhibe dois picos de difração que correspondem a duas fases e observa-se a evolução de uma fase α -Fe com grão mais largos.	63
6.2	Padrões de difração obtidos por incidência rasante dos filmes de 100 nm com e sem tratamento térmico. As amostras tratadas com $T_A \leq 400^\circ\text{C}$ possuem um pico largo em torno de $2\theta \approx 44.61^\circ$ correspondendo ao pico (110) da fase α -Fe. A partir de $T_A \geq 450^\circ\text{C}$ observa-se a evolução de uma fase com grãos mais largos.	64
6.3	Padrões de difração obtidos por incidência rasante dos filmes de 200 nm com e sem tratamento térmico. As amostras tratadas com $T_A \leq 450^\circ\text{C}$ possuem um pico largo em torno de $2\theta \approx 44.61^\circ$ correspondendo ao pico (110) da fase α -Fe. Para $T_A \geq 500^\circ\text{C}$ observa-se a evolução de uma fase α -Fe com grãos mais largos.	65
6.4	Padrões de difração obtidos por incidência rasante dos filmes de 500 nm com e sem tratamento térmico. As amostras tratadas com $T_A \leq 450^\circ\text{C}$ possuem um pico largo em torno de $2\theta \approx 44.61^\circ$ correspondendo ao pico (110) da fase α -Fe. Para $T_A \geq 500^\circ\text{C}$ observa-se a evolução de uma fase α -Fe com grãos mais largos.	66

6.5	Padrão de difração obtido por incidência rasante de uma amostra de LaB_6 , onde foi ajustado o pico de difração mais próximo de $2\theta = 44.61^\circ$ para se obter a contribuição instrumental da largura de linha. O ajuste foi realizado nesse ângulo porque o alargamento instrumental tende a variar com ângulo e dessa forma é mais preciso obter o alargamento num ângulo próximo da medida experimental.	68
6.6	Propriedades estruturais obtidas a partir do padrão de difração de raios-x das amostras de 100nm em função da temperatura de recozimento	69
6.7	Propriedades estruturais obtidas a partir do padrão de difração de raios-x das amostras de 200nm em função da temperatura de recozimento	72
6.8	Propriedades estruturais obtidas a partir do padrão de difração de raios-x das amostras de 500nm em função da temperatura de recozimento	74
6.9	Ramo entre a saturação e a remanência da curva de histerese normalizada do filme de 500 nm recozido a 540°C e o ajuste polinomial (em azul). A curva foi medida no eixo duro e a partir da segunda derivada calcula-se a distribuição da anisotropia; o máximo ocorre no campo de anisotropia.	76
6.10	Curvas de histerese normalizada dos filmes de com espessura de 100 nm recozidos a diferentes temperaturas. As curvas são medidas com o campo magnético externo sendo aplicado no plano do filme nas direções do eixo fácil(linha preta) e duro(linha vermelha). A partir da segunda derivada da curva de histerese calcula-se a distribuição da anisotropia(curva azul), onde o máximo ocorre no campo de anisotropia.	78
6.11	Curvas de histerese normalizada dos filmes de com espessura de 200 nm recozidos a diferentes temperaturas. As curvas são medidas com o campo magnético externo sendo aplicado no plano do filme nas direções do eixo fácil(linha preta) e duro(linha vermelha). A partir da segunda derivada da curva de histerese calcula-se a distribuição da anisotropia(curva azul), onde o máximo ocorre no campo de anisotropia.	79
6.12	Curvas de histerese normalizada dos filmes de com espessura de 500 nm recozidos a diferentes temperaturas. As curvas são medidas com o campo magnético externo sendo aplicado no plano do filme nas direções do eixo fácil(linha preta) e duro(linha vermelha). A partir da segunda derivada da curva de histerese calcula-se a distribuição da anisotropia(curva azul), onde o máximo ocorre no campo de anisotropia.	81
6.13	Propriedades magnéticas obtidas a partir da curva de histerese das amostras de 100 nm em função da temperatura de recozimento	83
6.14	Propriedades magnéticas obtidas a partir da curva de histerese das amostras de 200 nm em função da temperatura de recozimento	85

6.15	Propriedades magnéticas obtidas a partir da curva de histerese das amostras de 500 nm em função da temperatura de recozimento	86
6.16	dinâmica da magnetização amostra com espessura de 100nm	91
6.17	dinâmica da magnetização amostra com espessura de 200nm	92
6.18	dinâmica da magnetização amostra com espessura de 500nm	93
6.19	Espectro de absorção de FMR da amostra de 100 nm com o perfil de absorção de FMR para as frequências de 3 GHz e 6 GHz e seus respectivos ajustes	95
6.20	Relação de dispersão das amostra com espessura de 100nm com ajustes realizado com a relação de Kittel	97
6.21	Largura de linha de FMR das amostra com espessura de 100nm com o ajuste e as suas contribuições	98
6.22	Microdeformação e a largura de linha de FMR ΔH_{INO} das amostra com espessura de 100 nm	99
6.23	Relação de dispersão das amostra com espessura de 100nm	100
6.24	Largura de linha de FMR obtida a partir do ajuste do espectro de absorção de FMR da amostra de 200 nm e suas contribuições	101
6.25	Relação de dispersão das amostra com espessura de 100nm	103
6.26	Largura de linha de FMR obtida a partir do ajuste do espectro de absorção de FMR da amostra de 500 nm e suas contribuições	104

Capítulo 1

Introdução

O desenvolvimento de dispositivos microeletrônicos operando em alta frequência tem indicado a necessidade de materiais magnéticos macios, na escala nanométrica, com alta permeabilidade, baixas perdas e altas frequências de ressonância a baixos campos magnéticos [10–12]. Consequentemente, a produção e a caracterização da dinâmica da magnetização de filmes ferromagnéticos com essas propriedades é fundamental para a produção de novos dispositivos operando na faixa de GHz.

Nas últimas décadas, muitos esforços têm sido devotados na investigação de filmes magnéticos macios que possam ser utilizados em dispositivos que operam em microondas, os quais precisam de materiais com baixas perdas [13–16]. Tais perdas na faixa de microondas estão intimamente ligadas aos mecanismos de relaxação da precessão uniforme da magnetização. Esses mecanismos podem ser classificados em intrínsecos e extrínsecos [17], de forma que o intrínseco está relacionado com a direta dissipação da precessão uniforme e o extrínseco relaciona-se com o fluxo de energia da precessão uniforme para outros modos de oscilação e para interfaces metálicas [18]. Em geral, as perdas em filmes finos ferromagnéticos homogêneos são determinados pelo mecanismo de relaxação intrínseco, o qual é descrito pela teoria de Gilbert e quantificado pelo parâmetro de amortecimento de Gilbert [19], de forma que materiais homogêneos com baixas perdas tem pequenos parâmetros de amortecimento de Gilbert.

Como exemplo de filmes ferromagnéticos, que se destacaram com baixas perdas, podemos citar o caso dos filmes de Permalloy e CoFeB que possuem, respectivamente,

parâmetros de amortecimento de Gilbert de $\alpha \approx 1.0 \times 10^{-2}$ [20] e $\alpha \approx 4.0 \times 10^{-3}$ [21], os quais são relativamente baixos. Além desses, temos o caso dos filmes de $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (YIG) que apresentam baixíssimo parâmetro de amortecimento de Gilbert $\alpha \approx 3.0 \times 10^{-5}$ [22], embora a falta de uma alta magnetização de saturação pode ser uma dificuldade para aplicação desses filmes em dispositivos que operam em altas frequências. Nesse sentido, filmes ferromagnéticos nanocristalinos e amorfos tem surgido como candidatos atrativos para essas aplicações devido a suas características magnéticas macias [23–26].

Filmes ferromagnéticos nanocristalinos, amorfos e microfios têm sido investigados para aplicações em dispositivos que operam em alta frequência. Como exemplo, podemos citar a aplicação desses filmes em supressores de ruído [27], indutores de potência [28] e sensores de magnetoimpedância [29, 30]. Estes materiais também exibem baixo parâmetro de amortecimento de Gilbert [31]. Porém, nesses materiais deve-se considerar o mecanismo de relaxação extrínseco causado pelo processo de espalhamento dois magnons devido à estrutura de grão [31] e o aumento da largura de linha da ressonância ferromagnética (FMR), que ocorre devido a não homogeneidade do campo efetivo. A contribuição destes mecanismos pode ser obtida através da análise da largura de linha de FMR [32].

O controle dos mecanismos de relaxação da dinâmica da magnetização de filmes finos ferromagnéticos macios tem sido investigado com intuito de otimizar dispositivos microeletrônico e spintrônico [31, 33–36]. Métodos de reduzir os efeitos dos mecanismos de relaxação extrínsecos em filmes ferromagnéticos nanocristalinos e amorfos têm sido explorados, dentre os quais podemos citar as condições de deposição dos filmes [31], o depósito de uma camada de filme semente [35], a dopagem [34] e o tratamento térmico [36]. Os resultados obtidos estimulam a investigação da relação entre os mecanismos de relaxação de filmes amorfos e nanocristalinos e suas condições estruturais. Em particular, filmes nanocristalinos são mais atrativos para essa investigação devido às suas excelentes propriedades magnéticas macias que é uma combinação entre as melhores propriedades magnéticas de materiais amorfos e cristalinos [2].

Em geral, materiais magnéticos macios nanocristalinos são produzidos por cristalização parcial de ligas amorfas. Tais materiais nanocristalinos têm a estrutura de uma

matriz amorfa magnética com uma distribuição de grãos ferromagnéticos da ordem de nanômetros [2]. Entre esses materiais têm-se destacado a liga do tipo Finemet devido a sua baixa anisotropia, alta permeabilidade, baixas perdas magnéticas, alta magnetização de saturação [37] e uma alta relação sinal ruído [38]. Tais propriedades são alcançadas quando o material tem uma estrutura composta por grãos de $\alpha\text{-Fe}_{1-x}\text{Si}_x$, com $x = 0.15$ e 10 nm de diâmetro, imersos em uma matriz amorfa a base de FeSiB. A primeira liga do tipo Finemet foi obtida com a composição de $\text{Fe}_{73.5}\text{Nb}_3\text{Cu}_1\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$, cujo os elementos constituintes desempenham um papel fundamental nas propriedades magnéticas desse material [39].

Filmes finos amorfos e policristalinos podem exibir um stress residual não uniforme ao longo de sua espessura, que se deve ao processo de deposição do filme. Essa não homogeneidade do stress é o resultado da produção de camadas iniciais do filme com stress extensivo e outras camadas com stress compressivo, de forma que o stress total é o resultado da competição entre os stresses dessas camadas [40–42]. O processo de cristalização das ligas amorfas também tende a gerar stress devido principalmente a diferença de expansão térmica entre o substrato e o filme e a formação de vacâncias e defeitos na região entre os grãos [43, 44]. O stress induzido pelos processos de recobrimento e cristalização podem degradar as propriedades magnéticas de filmes do tipo Finemet, de forma que as melhores propriedades magnéticas tem sido alcançadas com o tratamento térmico a temperaturas abaixo do início da cristalização de nanogrãos de $\alpha\text{-Fe}_{1-x}\text{Si}_x$, tal efeito tem sido atribuído ao alívio do stress residual causado pelo processo deposição [29, 45, 46].

Nos últimos anos têm se investigado a influência da espessura e do stress residual nas propriedades magnéticas estáticas e dinâmica de filmes precursores de Finemet com e sem tratamento térmico [38, 47–50]. Nesses estudos tem se observado complexos modos de oscilação associados a uma não homogeneidade do meio magnético, uma baixa razão de magnetoimpedância, uma grande coercividade e uma baixa permeabilidade devido a presença de um stress residual nos filmes. Observa-se também que com o alívio do stress e/ou o crescimento de grãos nanométricos ocorre uma melhora nessas propriedades magnéticas. Constata-se que a resposta da dinâmica da magnetização desses filmes é

bastante influenciada pelo seu nível de stress e por sua estrutura granular que, por outro lado, podem também afetar os mecanismos de relaxação da magnetização e o aumento da largura de linha de FMR de filmes policristalinos [31, 51–55]. Assim, o efeito das propriedades estruturais na dinâmica da magnetização de filmes do tipo Finemet estimula um estudo da relação entre o stress residual e/ou o crescimento de grãos nanométricos com os mecanismos de relaxação e alargamento de linha de FMR, os quais tem um papel de otimizar a resposta da dinâmica da magnetização.

Nessa tese foi investigado o efeito do stress não uniforme sobre as propriedades estruturais e magnética de filmes com composição de $\text{Fe}_{73.5}\text{Nb}_3\text{Cu}_1\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$. Exploramos o efeito de tratamento térmico sobre a estrutura granular, sobre as propriedades magnéticas quase estáticas e os mecanismos de relaxação da magnetização e largura de linha de FMR. Produzimos filmes com espessuras de 100 nm, 200 nm e 500 nm compostos por $\text{Fe}_{73.5}\text{Nb}_3\text{Cu}_1\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$, depositados por *RF Magnetron Sputtering* e posteriormente submetidos a tratamentos térmicos com duração de 1 hora em alto vácuo. As propriedades estruturais e magnéticas dos filmes finos com e sem tratamento térmico foram analisadas por Difração de Raios-X por incidência rasante (GIXRD), Magnetômetro de Amostra Vibrante (VSM) e Ressonância Ferromagnética de banda larga com um analisador de rede vetorial (VNA-FMR).

Esta tese está organizada da seguinte forma: No capítulo 2 é feita uma exposição sobre as propriedades magnéticas e estruturais dos materiais amorfos e nanocristalinos, onde foi dado ênfase aos materiais do tipo Finemet. No capítulo 3 é descrito o fenômeno de ressonância ferromagnética, o qual é importante no estudo da dinâmica da magnetização em alta frequências. No capítulo 4 é exposto os principais mecanismos de relaxação da magnetização que atuam em materiais amorfos e nanocristalinos. No capítulo 5 descrevemos as técnicas e os procedimentos adotados na realização do trabalho. No capítulo 6 são expostos e discutidos os resultados obtidos pelas técnicas adotadas. No capítulo 7 são apresentadas as conclusões do trabalho e uma proposta para trabalhos futuros.

Capítulo 2

Materiais amorfos e nanocristalinos

Materiais ferromagnéticos diferem bastante pela facilidade com que se podem ser magnetizados. A curva de magnetização $M(H_{\text{ext}})$ de uma amostra ferromagnética é obtida pela aplicação cíclica de um campo magnético externo H_{ext} e a medição da magnetização M para cada H_{ext} . Em materiais ferromagnéticos temos que a curva $M(H_{\text{ext}})$ possui uma histerese, tal efeito evidencia que o processo de magnetização é irreversível em materiais ferromagnéticos [1]. A curva de histerese $M(H_{\text{ext}})$ pode ter diversas formas as quais podem ser caracterizadas por alguns parâmetros, como por exemplo a magnetização de saturação (M_s), a remanência (M_r) e o campo coercivo (H_c) (ver figura 2.1). A remanência representa o valor da magnetização obtida após aplicação de um campo magnético para saturar a amostra e depois retirar o campo. O campo coercivo é o campo magnético necessário para levar a magnetização até o valor nulo a partir da remanência.

Os materiais ferromagnéticos podem ser classificados em materiais magnéticos macios e materiais magnéticos duros. A coercividade pode ser usada para determinar o tipo do material magnético, de forma que materiais com coercividade superior a 100 Oe é duro e com coercividade inferior a 100 Oe pode ser considerado macio. Uma variedade de materiais ferromagnéticos macios são utilizados em aplicações tecnológicas como núcleos de transformadores, *microswitching*, microindutores e sensores magnéticos em geral. Para tais aplicações é necessário considerar outras propriedades, como: a permeabilidade magnética (μ), as perdas e o ruído magnético. Em geral, materiais ferromagnéticos macios possuem alta magnetização de saturação, baixa coercividade, alta permeabilidade,

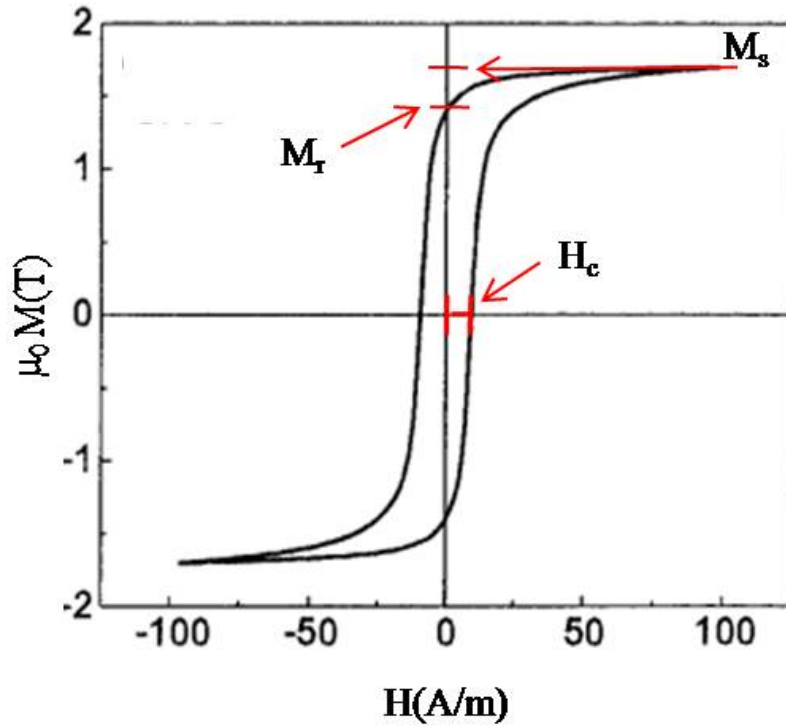


Figura 2.1: Curva de histerese de uma amostra ferromagnética de Fe-Si 3% [1].

baixas perdas magnéticas e baixo ruído magnético.

De um modo geral, ligas amorfas magnéticas a base de ferro ou cobalto apresentam excelentes propriedades magnéticas macias em relação a materiais magnéticos cristalinos como o α -FeSi e o α -Co [2], tais materiais cristalinos possuem alta magnetização de saturação porém suas permeabilidades são menores do que as encontradas em ligas amorfas (ver figura 2.2). Materiais amorfos tem altas permeabilidades porém baixa magnetização de saturação em comparação com materiais cristalinos de mesma composição [2]. Em geral, as ligas nanocristalinas combinam as altas permeabilidades magnéticas das ligas amorfas com as altas magnetizações de saturação das ligas cristalinas. Tais ligas nanocristalinas podem ser obtidas a partir da cristalização parcial de ligas amorfas magnética, onde forma-se um material com grãos da ordem de nanômetros distribuídos homogeneamente em uma matriz amorfa magnética [2].

A cristalização de ligas pode resultar em um aumento do campo coercivo, das perdas magnéticas e um decréscimo da permeabilidade, além de uma fragilidade da liga em relação à liga amorfa precursora. Por outro lado, nas ligas nanocristalinas há um aumento na magnetização de saturação, permeabilidade magnética, na resistividade e

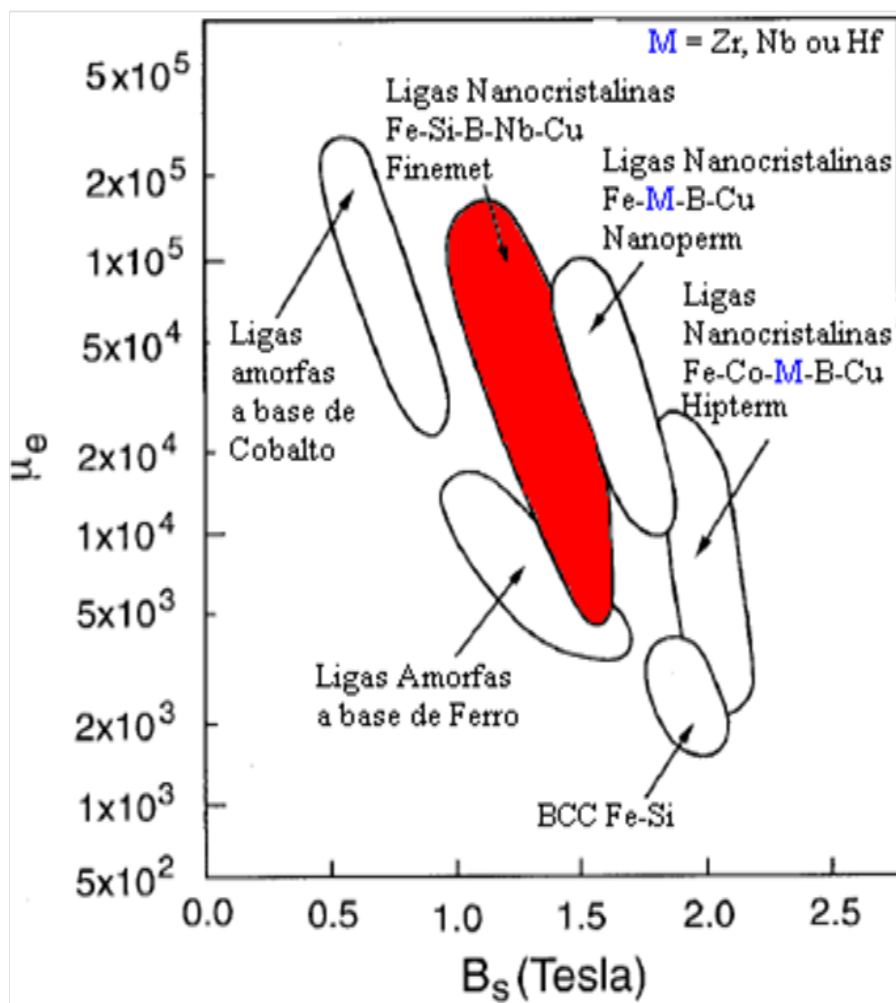


Figura 2.2: Relação entre a permeabilidade relativa e a indução de saturação para materiais ferromagnéticos macios amorfo, nanocristalinos e cristalinos [2].

um decréscimo na coercividade e nas perdas magnéticas. As ligas nanocristalinas tem sido produzidas principalmente na forma de fitas magnéticas com diferentes composições, como mostrado na figura 2.2, com objetivo de aprimorar diferentes propriedades magnéticas. Dentro desse grupo de materiais podemos ressaltar o Finemet, que pode ser obtido a partir da cristalização parcial de uma liga amorfa. Tal material possui baixa magnetostricção, perdas magnéticas e um alto valor de magnetização de saturação [39].

A primeira liga de Finemet foi desenvolvida por Yoshizawa [39], o qual obteve uma liga nanocristalina a base de FeSiB que apresentava excelentes propriedades magnéticas com a adição de Cu e Nb. Essas ligas foram obtidas pelo recozimento de ligas amorfas com a composição $\text{Fe}_{73.5}\text{Nb}_3\text{Cu}_1\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$. O tratamento térmico dessas ligas amorfas produzia uma estrutura homogênea com grãos de $\alpha\text{-FeSi}$ da ordem de 10 nm imersos em uma

matriz amorfa magnética. Vários estudos foram desenvolvidos para explicar as excelentes propriedades magnéticas da liga Finemet e o seu processo de cristalização [4, 56, 57]. Nas próximas secções iremos discutir melhor o modelo mais aceito sobre a evolução dos grãos e o papel de cada elemento constituinte no desenvolvimento de ligas do tipo Finemet.

2.1 Processo de cristalização de ligas do tipo Finemet

A cristalização de materiais amorfos pode se dar pelos processos de nucleação e crescimento de grãos, os quais são determinados pelos contornos de grãos e pela difusão de material [58]. O processo de nucleação ocorre nos estágios iniciais do crescimento de grãos e o crescimento da fase cristalina ocorre com o aumento do tamanho de médio e a distribuição dos grãos. O processo de cristalização depende da temperatura do tratamento térmico, o qual deve ser realizado a partir da temperatura de cristalização que é determinada pela energia térmica necessária para iniciar a cristalização após o processo de nucleação [58]. Um outro fator que influencia o crescimento dos grãos é a composição química da liga amorfa sob tratamento térmico.

O desenvolvimento de ligas nanocristalinas do tipo Finemet se deve, em parte, à elementos constituintes que possam controlar a evolução de uma distribuição de grãos nanométricos durante um tratamento térmico. No caso do Finemet temos que o acréscimo de materiais de baixa solubilidade ao ferro, por exemplo o cobre ou ouro, provoca à evolução da cristalização da liga a base de FeSiB, enquanto que a adição de metais de transição com raios atômicos relativamente grandes, por exemplo Nb, Mo, W e Ta, tem o efeito de aumentar a temperatura de cristalização [39] e, portanto, a estabilidade térmica, evitando o crescimento desordenado dos grãos.

Os estágios de formação da estrutura nanocristalina da liga de $\text{Fe}_{73.5}\text{Nb}_3\text{Cu}_1\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ pode ser observado na figura 2.3. Esses estágios foram propostos por K. Hono [3], que demonstrou o papel do cobre no processo de cristalização dessa liga amorfa. Nesse trabalho foi proposto que no estágio inicial de cristalização formam-se regiões ricas em cobre, as quais foram segregadas da matriz a base de ferro devido à baixa solubilidade do cobre em relação ao ferro [3]. O cobre diminui a temperatura de cristalização, de forma que nas regiões ricas em cobre forma-se, preferencialmente, núcleos de $\alpha\text{-Fe}$. O Nióbio e o

Boro segregam-se desses núcleos de α -Fe devido a sua baixa solubilidade a essa matriz. Enquanto que o Si é absorvido pelos núcleos de α -Fe e assim formando os grãos de α -FeSi que são nanométricos devido a ação do Nióbio.

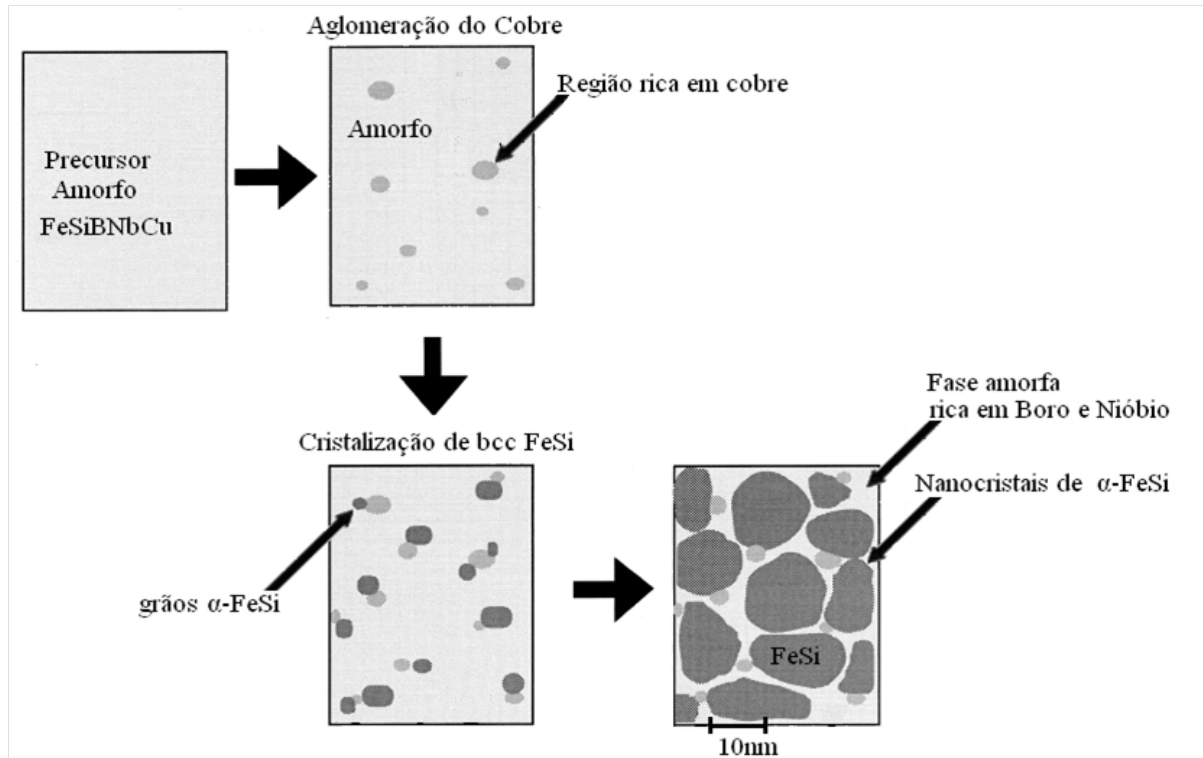


Figura 2.3: a) Antes do tratamento térmico temos uma estrutura amorfa com composição $\text{Fe}_{73.5}\text{Nb}_3\text{Cu}_1\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$, b) com o início da cristalização é formado uma estrutura de aglomerados de cobre, c) no decorrer do tratamento térmico há a formação de estruturas de α -FeSi nas regiões ricas em cobre enquanto que o Nióbio impede o crescimento desordenado da mesma e assim da competição entre o Nióbio e o Cobre d) forma-se os nanocristais de α -FeSi [3].

Assim, com o tratamento térmico adequado, obtemos a liga Finemet, tal liga é formada por uma fase com grãos nanométricos de $\alpha\text{-Fe}_{1-x}\text{Si}_x$, com $x = 0.15$ a 0.20 , e uma outra fase amorfa rica em Boro e Nióbio [2]. A formação da estrutura de grãos ultrafinos se deve a uma redução na taxa de crescimento dos grãos de $\alpha\text{-Fe}_{1-x}\text{Si}_x$, devido ao efeito do Nióbio, e um aumento na taxa de nucleação com a formação de aglomerados de cobre. As propriedades magnéticas macias da liga Finemet se deve a uma redução da anisotropia, que é o resultado da formação de grãos ultrafinos imersos em uma matriz amorfa magnética. Essa estrutura granular gera uma significativa diminuição da anisotropia magnetocristalina e as duas fases (amorfa e cristalina) se compensam para reduzir a anisotropia magnetoelástica. As propriedades magnéticas de ligas do tipo Finemet e

sua relação com a sua estrutura será discutido nas próximas secções.

2.2 Influência da cristalização nas propriedades magnéticas

O processo de magnetização, em materiais policristalinos, depende da competição entre a energia de anisotropia cristalina de cada grão K_1 e a energia de troca indireta entre os grãos. Em uma estrutura de grãos ultrafinos imersos em uma matriz amorfa magnética temos que a anisotropia cristalina pode variar aleatoriamente e o tamanho de grão ξ é da ordem do comprimento de troca L_{ex} dado através da seguinte relação

$$L_{ex} = \sqrt{\frac{A}{K_1}}, \quad (2.1)$$

onde A é a constante de rigidez de troca [4]. De forma que o comprimento de troca representa a mínima escala a qual a interação de troca se torna predominante e os momentos magnéticos são obrigados a se alinham paralelamente. Temos que no casos da fase cristalina de $\alpha\text{-Fe}_{1-x}\text{Si}_x$, com $x = 0.15$ a 0.20 , o comprimento de troca é da ordem de $L_{ex} \approx 35 \text{ nm}$ e a constante de anisotropia $K_1 \approx 10^4 \text{ J/m}^3$ [4].

Para tamanho de grãos maiores que o comprimento de troca (ver figura 2.4 a)) a anisotropia magnetocristalina é minimizada dentro de cada grão e com isso a magnetização é saturada ao longo da direção de fácil magnetização dos grãos e a energia de troca é maximizada no contorno dos grãos. Enquanto que para tamanho de grãos menores que o comprimento de troca (ver figura 2.4 b)) temos que a energia de troca é predominante nessa escala e a anisotropia magnetocristalina é minimizada dentro de um volume contendo um elevado número N de grãos.

Supondo que a orientação dos grãos é aleatória então a anisotropia cristalina efetiva $\langle K \rangle$ é uma média sobre todos os N grãos da seguinte forma [4].

$$\langle K \rangle = \frac{K_1}{\sqrt{N}} = K_1 \left(\frac{\xi}{L_{ex}} \right)^{\frac{3}{2}}, \quad (2.2)$$

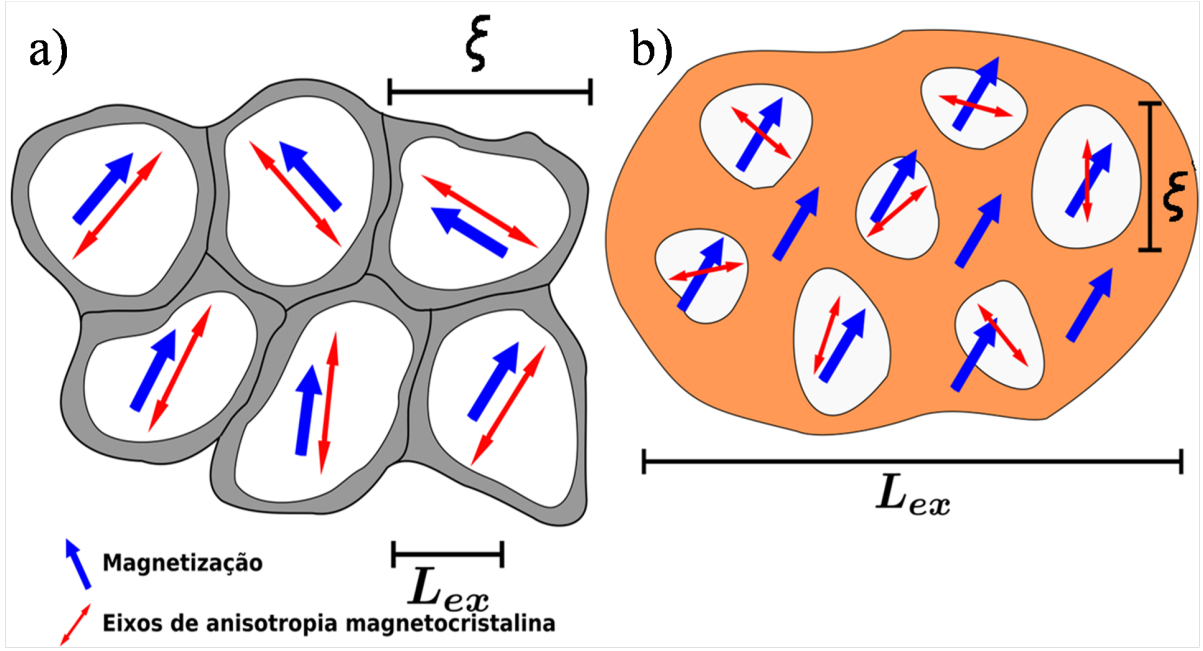


Figura 2.4: a) Para grãos maiores que o comprimento de troca temos que a energia magnetocristalina é minimizada dentro de cada grão. b) Para tamanhos de grãos menores que o comprimento de troca temos que a anisotropia magnetocristalina é minimizada sobre vários grãos [4].

e conseqüentemente o comprimento de troca efetivo é dado por

$$L_{ex}^{ef} = \sqrt{\frac{A}{\langle K \rangle}}, \quad (2.3)$$

que novamente leva a seguinte anisotropia efetiva

$$\langle K \rangle = K_1 \left(\frac{\xi}{L_{ex}^{ef}} \right)^{\frac{3}{2}} = (K_1)^4 \left(\frac{\xi^6}{A^3} \right). \quad (2.4)$$

A equação da anisotropia efetiva 2.2 é válida para o regime $\xi < L_{ex}$ e, além disso, deve haver uma interação de troca efetiva entre os grãos, que é determinada pela fase amorfa magnética. Nas ligas nanocristalinas de Finemet, com grãos de 10 nm, a anisotropia cristalina efetiva é de apenas $\langle K \rangle \approx 4 \text{ J/m}^3$ [4] e a coercividade e a permeabilidade passam a ser determinadas pela anisotropia efetiva da seguinte forma [4]

$$H_C = p \frac{\langle K \rangle}{M_s} = p \frac{K_1^4}{M_s A^3} \cdot \xi^6, \quad (2.5)$$

$$\mu = m \frac{M_s^2}{\mu_0 \langle K \rangle} = m \frac{M_s^2 A^3}{\mu_0 K_1^4} \cdot 1/\xi^6,$$

onde as constantes p e m são adimensionais e aproximadamente igual a 1. A partir do conjunto de equações 2.5 observamos que a redução do tamanho de grão ξ implica numa diminuição da coercividade e um aumento na permeabilidade em ligas do tipo Finemet. Na figura 2.5 podemos ver o efeito do tamanho de grão ξ na permeabilidade e coercividade de ligas do tipo Finemet [5].

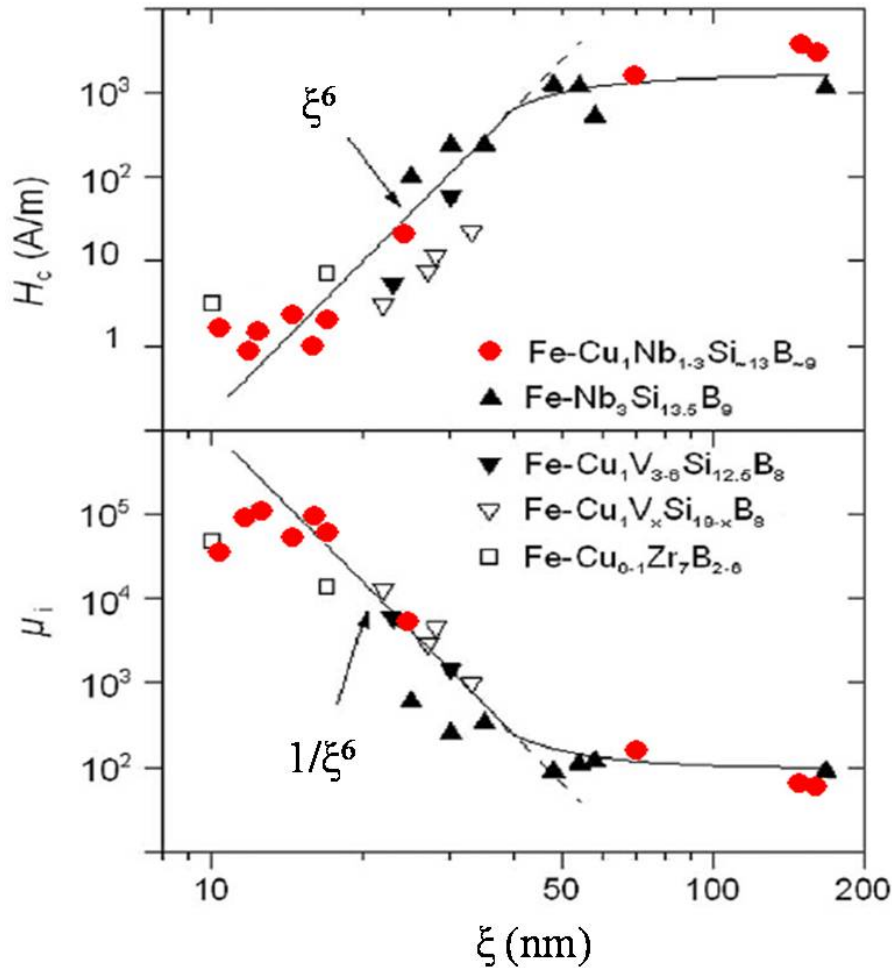


Figura 2.5: Efeito do tamanho de grão ξ na coercividade e na permeabilidade relativa em materiais ferromagnéticos do tipo Finemet [5].

As fitas do tipo Finemet podem apresentar anisotropias induzidas devido a tensões

ou aplicação de campo magnético durante o processo de tratamento térmico. Tais anisotropias induzidas produzem pequenas modificações em suas propriedades magnéticas macias, de forma que somente a variação do tamanho de grão é o efeito chave para otimização das propriedades magnéticas dessas amostras [4]. Por outro lado, em filmes finos temos que as anisotropias magnetoelástica e a magnetocristalina se tornam competitivas devido à geração de tensões internas com o processo de recobrimento e o crescimento de grão. Assim, um filme do tipo Finemet com excelente propriedade magnética macia não é obtido somente com a redução da anisotropia magnetocristalina, mas com uma estrutura nanocristalina que minimize tanto a anisotropia magnetocristalina quanto a anisotropia devido a interação magnetoelástica.

A anisotropia magnetoelástica surge do acoplamento spin-órbita. Em comparação com a anisotropia magnetocristalina, temos que nesse caso o acoplamento spin-órbita é tal que o spin segue rigidamente o orbital eletrônico. Assim uma mudança na magnetização pode provocar uma espontânea deformação na estrutura cristalina de forma que a energia do sistema se minimize, tal fenômeno se chama efeito magnetostrictivo [1]. Por outro lado, uma deformação na estrutura cristalina de um amostra magnética também provoca uma mudança na anisotropia da mesma.

A deformação produzida numa amostra magnética por um stress interno ou externo faz com que certas direções de magnetização sejam energeticamente favorecidas, assim surgindo uma anisotropia na amostra que tendem alinhar a magnetização. A seguinte energia magnetoelástica E_{me} quantifica a energia magnética envolvida na variação da magnetização quando uma deformação das dimensões da amostra é gerada por uma tensão unidirecional σ [1]

$$E_{me} = \frac{3}{2} \lambda \sigma (\sin \theta)^2, \quad (2.6)$$

onde θ é o ângulo entre a magnetização de saturação e a direção de aplicação da tensão e λ é a constante de magnetostricção que está relacionada com o efeito da mudança das dimensões de uma amostra.

A tensão a qual o sistema está sendo submetido pode ser compressiva quando $\sigma < 0$

ou extensiva quando $\sigma > 0$. Num regime linear de deformação temos que a tensão σ que atua sobre um corpo é proporcional a sua deformação e da seguinte forma [1]

$$\sigma = Y e, \quad (2.7)$$

onde Y é o módulo de Young do material e na equação 2.7 é medido por uma relativa deformação linear da seguinte forma

$$e = \frac{l - l_0}{l_0}, \quad (2.8)$$

com l_0 sendo o comprimento original da amostra antes da aplicação da deformação e l é o comprimento da amostra sob a aplicação da tensão. Assim a deformação e é adimensional e com a relação 2.7 temos que e é uma medida direta do nível de stress que amostra está sendo submetida.

As ligas do tipo Finemet podem apresentar uma considerável redução do seu efeito magnetostrictivo dependendo da fração de volume cristalizado χ . Nesse tipo de liga temos que a constante de magnetostricção λ_s , a qual determina a intensidade do efeito magnetostrictivo, é a soma de uma constante magnetostrictiva negativa devido a fase nanocristalina ($\lambda_s^{cris} < 0$) com uma constante magnetostrictiva positiva devido a fase amorfa ($\lambda_s^{amor} > 0$), de forma que o balanço dessa soma é determinada pela fração de volume cristalizado da seguinte forma

$$\lambda_s = \chi \cdot \lambda_s^{cris} + (1 - \chi) \cdot \lambda_s^{amor}, \quad (2.9)$$

com tipicamente $\lambda_s^{cris} = -5 \times 10^{-6}$ para materiais policristalinos de α -FeSi e $\lambda_s^{amor} = 2.5 \times 10^{-5}$ para materiais amorfos a base de ferro e rico em Boro e Nióbio [4]. Portanto a magnetostricção da liga Finemet vai à zero para altos valores de fração de volume cristalizado χ , de forma a compensar o alto valor da magnetostricção da fase amorfa.

Nessa tese observamos uma anisotropia uniaxial em filmes finos como depositados com composição $\text{Fe}_{73.5}\text{Nb}_3\text{Cu}_1\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ e espessura de 100 nm, tal anisotropia surgiu devido a

aplicação de um campo magnético externo durante o processo de deposição. E para filmes mais espessos observamos o surgimento de uma anisotropia para fora do plano devido a uma tensão residual. Além disso, observamos que o tratamento térmico a baixas temperaturas conduz um alívio da tensão residual, porém, com o crescimento de grãos, observamos um acréscimo dessas tensões internas ao filme.

Nas amostras sem tratamento observamos que a produção desses filmes por Sputtering induz tensões internas devido à acomodação do material durante o processo de recobrimento, as quais tendem a variar com a espessura do filme, como mencionado nas referências [40–42]. E no caso das amostras cristalizadas temos que as tensões são geradas devido à formação de vacâncias e defeitos na região intergranular e a diferença de expansão térmica entre o substrato e o filme, como previsto nas referências [43, 44]. Investigamos o efeito dessas tensões sobre as propriedades magnéticas quase estáticas e a dinâmica da magnetização. No próximo capítulo iremos discutir o fenômeno de ressonância ferromagnética que influencia a resposta magnética em altas frequência.

Capítulo 3

Ressonância Ferromagnética

Uma amostra magnética pode ser constituída de um grande conjunto de momentos magnéticos m_i distribuídos dentro de um volume V . Esse sistema magnético pode ser definido em termos da média dos momentos magnéticos por unidade de volume $\mathbf{M} = \sum_i \mathbf{m}_i / V$, chamada de magnetização. Em teorias clássicas, a base da descrição de um sistema magnético está no comportamento da magnetização $\mathbf{M}$ em função do campo magnético $\mathbf{H}$ [1]. O processo que a magnetização $\mathbf{M}$ sofre durante a aplicação de um campo $\mathbf{M}$ está intimamente relacionado com a estrutura do meio magnético.

Um sistema paramagnético consiste de um meio magnético formado por um conjunto de momentos m_i com orientações distribuídas aleatoriamente, de forma que, na ausência de um campo magnético externo $\mathbf{H}_{ext}$, a magnetização $\mathbf{M}$ seja nula. Aplicando-se um campo magnético externo $\mathbf{H}_{ext}$ em um paramagneto há uma tendência que cada momento m_i se vire na direção do campo $\mathbf{H}_{ext}$ e assim produzindo uma magnetização na direção do campo magnético aplicado. Porém, a agitação térmica opõe-se a esse alinhamento e assim, somente uma fração dos momentos magnéticos se alinham na direção do campo $\mathbf{H}_{ext}$. O comportamento termodinâmico de um sistema com essas propriedades resulta da competição entre o campo magnético e a agitação térmica.

Um material ferromagnético pode apresentar um momento magnético espontâneo sem a necessidade de aplicação de um campo magnético externo. Uma amostra ferromagnética pode ser entendida como um paramagneto com uma concentração de N momentos $\mathbf{m}$, que interagem entre si de forma que seus momentos magnéticos tendam a se alinhar

paralelamente mesmo na ausência de um campo magnético externo $\mathbf{H}_{ext}$.

Em uma amostra ferromagnética altos valores de magnetização $\mathbf{M}$ são observados com aplicação de campos magnéticos $\mathbf{H}_{ext}$ relativamente baixos, tal efeito evidencia algum tipo de interação magnética interna. Para explicar esse fato Pierre Weiss propôs a hipótese do campo molecular em 1907 [17]. Ele supôs que o campo molecular fosse equivalente a um campo magnético interno $\mathbf{B}_m$ proporcional à magnetização $\mathbf{M}$ do material dado por

$$\mathbf{B}_m = \lambda \mathbf{M}, \quad (3.1)$$

onde λ é o coeficiente de campo molecular que é independente da temperatura. A ordem imposta pelo campo molecular é contrária a agitação térmica, de forma que em altas temperaturas a energia térmica passa a prevalecer, quebrando o ordenamento ferromagnético. Weiss não foi capaz de descrever a origem física do campo molecular $\mathbf{B}_m$. Atualmente sabe-se que as propriedades magnéticas de materiais ferromagnéticos estão relacionadas com a interação de troca que regula o alinhamento entre os momentos magnéticos e vários tipos de interações magnética que serão melhor discutidas nas próximas secções.

As propriedades dos materiais ferromagnéticos podem ser determinadas pela resposta do ferromagneto a um campo magnético externo. A resposta da magnetização $\mathbf{M}$ ao campo magnético externo $\mathbf{H}_{ext}$ é a susceptibilidade magnética dada por

$$\mathbf{M} = \chi \mathbf{H}_{ext}. \quad (3.2)$$

A susceptibilidade magnética χ depende de várias características do material ferromagnético relacionadas com suas interações internas e o campo magnético externo. A medida da susceptibilidade é uma forma útil de investigar as propriedades de sistemas magnéticos como veremos nos próximos capítulos.

3.1 Equação de movimento

A magnetização $\mathbf{M}$ de uma amostra ferromagnética sofre a ação de um torque quando é removida do seu equilíbrio pela aplicação de um campo magnético externo $\mathbf{H}_{ext}$. A res-

posta da magnetização a esse campo magnético $\mathbf{H}_{ext}$ é um movimento de precessão em torno do campo magnético efetivo interno $\mathbf{H}_{ef}$ com uma frequência característica do sistema. O campo magnético efetivo e a frequência característica do sistema são determinados pelo campo magnético aplicado $\mathbf{H}_{ext}$ e vários campos internos devido a interações dipolar, de troca e anisotropias, tais campos internos são função da magnetização.

Landau e Lifshitz propuseram a seguinte equação para descrever o movimento de precessão da magnetização em torno do campo efetivo $\mathbf{H}_{ef}$

$$\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} = -\gamma \mathbf{M} \times \mathbf{H}_{ef}, \quad (3.3)$$

onde γ é a razão giromagnética do elétron. Note que a equação 3.3 não permite processos de perdas para dissipação da energia magnética, tais processos serão melhor discutidos na secção 3.4 e capítulo 4.

Para resolver a equação 3.3 vamos considerar que a magnetização $\mathbf{M}$ está sob a influência de um campo magnético *ac* em um experimento típico de ressonância ferromagnética (FMR). Nesse experimento temos que a função do campo *ac* é desviar a magnetização do sua posição de equilíbrio de forma que a frequência dessa excitação seja próxima da frequência característica do sistema e assim a magnetização $\mathbf{M}$ entra em um movimento de precessão em torno do campo magnético efetivo $\mathbf{H}_{ef}$ que é determinado pela energia livre magnética E da seguinte forma

$$\mathbf{H}_{ef} = -\frac{\partial E}{\partial \mathbf{M}}. \quad (3.4)$$

Para descrever o movimento de precessão da magnetização pode-se separar o campo magnético efetivo e a magnetização em duas componentes uma estática e outra dinâmica da seguinte forma .

$$\mathbf{H}_{ef}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{H}_0 + \mathbf{h}(\mathbf{r}, t) \quad \mathbf{M}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{M}_0 + \mathbf{m}(\mathbf{r}, t), \quad (3.5)$$

onde iremos supor que as partes dinâmica $(\mathbf{h}(\mathbf{r}, t), \mathbf{m}(\mathbf{r}, t))$ são muito menores do que

as partes estáticas ($\mathbf{H}_0$, $\mathbf{M}_0$). No estado de equilíbrio termodinâmico a direção da $\mathbf{M}_0$ coincide com a direção da parte estática do campo efetivo $\mathbf{H}_0$.

Determinar a orientação de equilíbrio da magnetização para um campo efetivo $\mathbf{H}_0$ orientado de forma arbitrária é um problema complicado de resolver matematicamente. Então, vamos escolher um sistema de coordenadas de tal forma que a posição de equilíbrio da componente estática da magnetização é orientada ao longo do eixo $\hat{\mathbf{z}}$, de forma que podemos escrever $\mathbf{M}_0 = M_s \hat{\mathbf{z}}$ com M_s sendo a magnetização de saturação. E pela condição de equilíbrio termodinâmico temos que o campo magnético efetivo tem que ser orientado ao longo do eixo z e assim $\mathbf{H}_0 = H_i \hat{\mathbf{z}}$, onde H_i é o módulo da parte estática do campo efetivo.

Vamos considerar que as componentes estáticas da magnetização e do campo efetivo são uniformes ao longo da amostra. E assim equação 3.3 é escrita como uma soma de quatro produtos vetoriais. Como estamos considerando o limite pequenas oscilações então iremos desprezar o produto vetorial $\mathbf{h}(\mathbf{r}, t) \times \mathbf{m}(\mathbf{r}, t)$ e o produto vetorial entre as componentes estáticas $\mathbf{M}_0 \times \mathbf{H}_0$ deve ser zero no equilíbrio.

Considerando as aproximações descrita acima temos que as componentes dinâmica da equação 3.5 ficam no plano transversal xy e a equação 3.3 fica da seguinte forma

$$\begin{aligned} \frac{\partial m_x(\mathbf{r}, t)}{\partial t} &= -\gamma(H_i m_y(\mathbf{r}, t) - M_s h_y(\mathbf{r}, t)), \\ \frac{\partial m_y(\mathbf{r}, t)}{\partial t} &= \gamma(H_i m_x(\mathbf{r}, t) - M_s h_x(\mathbf{r}, t)). \end{aligned} \quad (3.6)$$

O procedimento de aproximação adotado para obter a equação 3.6 é chamado de linearização da equação de Landau-Lifshitz (Eq. 3.3). Resolvendo o sistema de equações dado por 3.6, com apropriadas condições de contorno, podemos determinar a condição de ressonância da precessão uniforme da magnetização e a dispersão de ondas de spin no limite de pequenas oscilações.

3.2 Modo de precessão uniforme

Nesta secção será obtido a condição de ressonância para o caso de oscilações uniforme , onde todos os momentos magnéticos da amostra oscilam com mesma fase (como mostrado

na figura 3.1). As condições de contorno adotadas para resolver as equações 3.6 são determinadas para uma amostra com a forma geométrica de um elipsoide. As amostras utilizadas nesta tese são filmes finos, porém tais formas geométricas podem ser tratadas como casos limites das condições de contorno determinadas por um elipsoide [17].

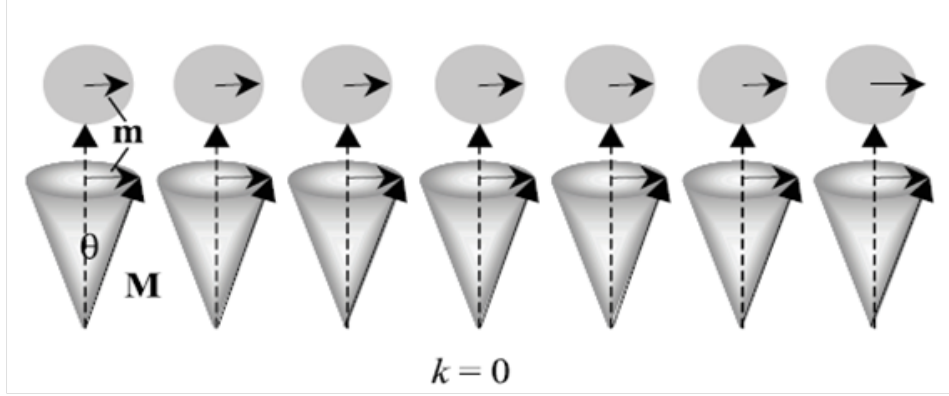


Figura 3.1: Precessão uniforme de um conjunto de momentos magnéticos. Nesse modo de precessão todos os momentos magnéticos oscilam com a mesma fase de forma que o vetor de onda de spin k é igual a zero, figura retirada da referência [6]

Vamos considerar uma amostra homogeneamente magnetizada de forma que a magnetização $\mathbf{M}(t)$ e o campo magnético efetivo $\mathbf{H}_{ef}(t)$ são somente funções do tempo. No limite de pequenas oscilações a magnetização pode ser escrita no sistema de coordenadas cartesiana como

$$\mathbf{M}(t) = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ M_s \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} m_x(t) \\ m_y(t) \\ 0 \end{pmatrix}, \quad (3.7)$$

aqui separamos os termos estático e dinâmico da magnetização conforme a equação 3.5 porém sem a dependência espacial devido a condição de precessão uniforme.

O campo magnético efetivo $\mathbf{H}_{ef}(t)$ deve ser escrito como a soma do campo magnético externo $\mathbf{H}_{ext}$, o campo magnético excitação ac $\mathbf{h}_{ac}(t)$ e o campo desmagnetizante $\mathbf{H}_D(t)$. Esse campo $\mathbf{H}_D(t)$ é gerado devido as cargas magnéticas que se formam nos contornos

da amostra. Dessa forma o campo efetivo é escrito da seguinte maneira

$$\begin{aligned}\mathbf{H}_{ef}(t) &= \mathbf{H}_{ext} + \mathbf{h}_{ac}(t) + \mathbf{H}_D(t) \\ &= \mathbf{H}_{ext} + \mathbf{h}_{ac}(t) - 4\pi\overline{N} \cdot \mathbf{M}(t),\end{aligned}\tag{3.8}$$

onde $\overline{N}$ é o tensor desmagnetizante. Esse tensor é simétrico e torna-se diagonal nos eixos que coincidem com os eixos do elipsoide [17]. As componentes desse tensor nos eixos do elipsoide N_{XX} , N_{YY} e N_{ZZ} são chamadas de fatores desmagnetizante e a sua soma é

$$N_{XX} + N_{YY} + N_{ZZ} = 1.\tag{3.9}$$

Contudo, geralmente, o tensor desmagnetizante não é diagonal em coordenadas cartesianas do sistema de medida, porém ainda é simétrico. Considerando um sistema com coordenadas cartesianas em que a posição de equilíbrio da magnetização está na direção do eixo z conforme a equação 3.7 temos que o tensor desmagnetizante $\overline{N}$ é descrito da seguinte forma

$$\overline{N} = \begin{pmatrix} N_{XX} & N_{XY} & N_{XZ} \\ N_{XY} & N_{YY} & N_{YZ} \\ N_{XZ} & N_{YZ} & N_{ZZ} \end{pmatrix},\tag{3.10}$$

dessa forma o campo magnético efetivo 3.8 pode ser separado em suas componentes cartesianas da seguinte forma

$$\begin{aligned}\begin{pmatrix} H_{efx}(t) \\ H_{efy}(t) \\ H_{efz}(t) \end{pmatrix} &= \begin{pmatrix} H_x - 4\pi N_{XZ} M_s \\ H_y - 4\pi N_{YZ} M_s \\ H_z - 4\pi N_{ZZ} M_s \end{pmatrix} \\ &+ \begin{pmatrix} h_{acx}(t) - 4\pi(N_{XX}m_x(t) + N_{XY}m_y(t)) \\ h_{acy}(t) - 4\pi(N_{XY}m_x(t) + N_{YY}m_y(t)) \\ h_{acz}(t) - 4\pi(N_{XZ}m_x(t) + N_{YZ}m_y(t)) \end{pmatrix}.\end{aligned}\tag{3.11}$$

Pela condição de equilíbrio, a parte estática da magnetização 3.7 tem que estar na mesma

direção da parte estática do campo efetivo (1º termo da Equação 3.11), dessa forma temos que a parte estática do campo efetivo tem que estar na direção do eixo $\hat{\mathbf{z}}$ e assim temos que as componentes (x, y) da parte estática do campo efetivo deve ser zero

$$\begin{aligned} H_x - 4\pi N_{XZ}M_s &= 0 \\ H_y - 4\pi N_{YZ}M_s &= 0 \end{aligned} \quad (3.12)$$

e as coordenadas transversais (x, y) da parte dinâmica do campo efetivo uniforme $\mathbf{h}(t)$ fica da seguinte forma

$$\begin{pmatrix} h_x(t) \\ h_y(t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} h_{acx}(t) \\ h_{acy}(t) \end{pmatrix} - 4\pi \begin{pmatrix} N_{XX} & N_{XY} \\ N_{XY} & N_{YY} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} m_x(t) \\ m_y(t) \end{pmatrix}, \quad (3.13)$$

com isso a equação que determina a dinâmica da magnetização 3.6 para o caso de uma precessão uniforme onde é considerado o efeito do campo desmagnetizante fica da seguinte forma

$$\begin{aligned} \frac{dm_x(t)}{dt} &= \gamma(-H_{xy}m_x(t) - H_{yy}m_y(t) - M_sh_{acy}(t)), \\ \frac{dm_y(t)}{dt} &= \gamma(H_{xx}m_x(t) + H_{xy}m_y(t) - M_sh_{acx}(t)), \end{aligned} \quad (3.14)$$

onde os termos H_{xx} , H_{yy} e H_{xy} são escritas da seguintes forma

$$\begin{aligned} H_{xx} &= H_z + 4\pi M_s(N_{XX} - N_{ZZ}), \\ H_{yy} &= H_z + 4\pi M_s(N_{YY} - N_{ZZ}), \\ H_{xy} &= 4\pi M_s N_{XY}. \end{aligned} \quad (3.15)$$

A equação 3.14 descreve um simples oscilador harmônico sem amortecimento impulsionado pelo campo magnético de excitação ac $\mathbf{h}_{ac}(t)$. Para resolver a equação 3.14 vamos supor que a parte dinâmica da magnetização (2º temo da equação 3.7) e o campo magnético de excitação ac $\mathbf{h}_{ac}(t)$ têm a seguinte dependência harmônica com o tempo

$$\mathbf{m}(t) = \mathbf{m}_0 \exp(i\omega t) \quad \mathbf{h}_{ac}(t) = \mathbf{h}_{ac0} \exp(i\omega t), \quad (3.16)$$

com isso podemos resolver a equação 3.14 para o caso de um movimento sem o campo magnético de excitação e assim obtendo as seguintes auto-frequências

$$\omega_0 = |\gamma| \sqrt{H_{xx}H_{yy} - H_{xy}^2}. \quad (3.17)$$

A máxima radiação eletromagnética absorvida por uma amostra ferromagnética com baixa anisotropia ocorre a frequências aproximadamente iguais das auto-frequências 3.17, tais frequências são chamadas de frequências de ressonância ferromagnética [59]. Se considerarmos que o campo externo $\mathbf{H}_{ext}$ está direcionado ao longo de um dos eixos do elipsoide e tal eixo está na direção $\hat{\mathbf{z}}$, então, como já mencionado, o tensor 3.10 torna-se diagonal e assim equação 3.17 fica da seguinte forma

$$\omega_0 = |\gamma| \sqrt{(H_z + 4\pi M_s(N_{XX} - N_{ZZ}))(H_z + 4\pi M_s(N_{YY} - N_{ZZ}))}. \quad (3.18)$$

Esta fórmula 3.18 foi obtida a primeira vez por Kittel e em geral é chamada de relação de Kittel. A condição de ressonância determinada pela equação 3.18 para uma amostra com a forma de um elipsoide pode ser usada para calcular a frequência de ressonância ferromagnética para outras formas geométricas. As diferentes formas geométricas estão relacionadas a diferentes fatores desmagnetizantes e frequências de ressonância ferromagnética, tais parâmetros são listados na tabela 3.1. Na próxima seção iremos discutir sobre o modo de precessão não uniforme.

3.3 Ondas de spin

Nesta seção iremos encontrar as condições de ressonância para oscilações não uniforme da magnetização. Em tais oscilações os momentos magnéticos da amostra oscilam com uma certa defasagem (como mostrado na figura 3.2) e esse modo é usualmente chamado de modo de ondas de spin. De forma que obter as condições de ressonância para esse modo é o mesmo que determinar a relação de dispersão para ondas de spin. Vamos começar supondo que a dependência espacial de ambos $\mathbf{h}(\mathbf{r}, t)$ e $\mathbf{m}(\mathbf{r}, t)$ na equação 3.5

Forma geométrica	N_{XX}	N_{YY}	N_{ZZ}	Frequência de ressonância ferromagnética
Esfera	1/3	1/3	1/3	$\omega_0 = \gamma H$
Filme magnetizado perpendicularmente	0	0	1	$\omega_0 = \gamma (H - 4\pi M_s)$
Filme magnetizado no plano	1	0	0	$\omega_0 = \gamma \sqrt{(H)(H + 4\pi M_s)}$
cilindro magnetizado longitudinalmente	1/2	1/2	0	$\omega_0 = \gamma (H + 2\pi M_s)$
cilindro magnetizado transversalmente	0	1/2	1/2	$\omega_0 = \gamma \sqrt{(H)(H - 2\pi M_s)}$

Tabela 3.1: Fatores desmagnetizantes e frequência de ressonância ferromagnética para algumas formas geométricas [17]

podem ser expandidos na seguinte serie de Fourier

$$\mathbf{m}(\mathbf{r}, t) = \sum_{\mathbf{k}} \mathbf{m}_{\mathbf{k}}(t) \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \quad \mathbf{h}(\mathbf{r}, t) = \sum_{\mathbf{k}} \mathbf{h}_{\mathbf{k}}(t) \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}). \quad (3.19)$$

A equação 3.19 inclui o caso particular do modo de precessão uniforme onde o número de onda de spin igual a zero ($k = 0$), o qual já foi discutido na secção anterior. Nessa secção iremos considerar somente o caso de ondas de spin com $k \neq 0$. Utilizando a expansão de Fourier conforme 4.11 na equação 3.6 obtemos a seguinte relação análoga

$$\begin{aligned} \frac{dm_{\mathbf{k}x}(t)}{dt} &= -\gamma(H_i m_{\mathbf{k}y}(t) - M_s h_{\mathbf{k}y}(t)), \\ \frac{dm_{\mathbf{k}y}(t)}{dt} &= \gamma(H_i m_{\mathbf{k}x}(t) - M_s h_{\mathbf{k}x}(t)). \end{aligned} \quad (3.20)$$

Agora precisamos determinar uma relação entre as componentes da parte dinâmica do campo magnético efetivo $h_{\mathbf{k}x,y}(t)$ e as componentes da parte dinâmica da magnetização $m_{\mathbf{k}x,y}(t)$. Essa relação pode ser escrita em uma forma matricial equivalente a equação 3.13. De forma que iremos desenvolver a mesma linha de raciocínio da secção 3.2 onde foi discutido o caso do modo uniforme.

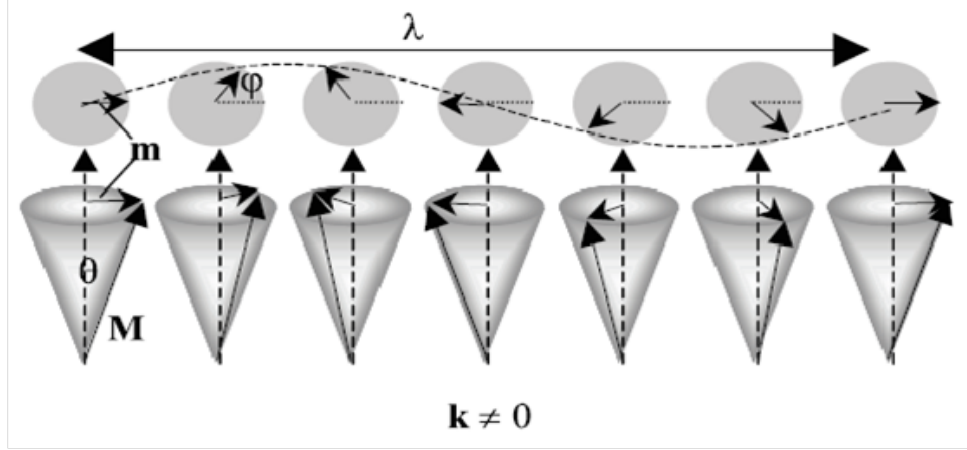


Figura 3.2: Precessão não uniforme de um conjunto de momentos magnéticos. Nesse modo de precessão todos os momentos magnéticos oscilam com uma certa defasagem de forma que o vetor de onda de spin k é diferente de zero, figura retirada da referência [6]

Vamos supor que o campo magnético de excitação ac $\mathbf{h}_{ac}(t)$ é uniforme em relação aos comprimentos de ondas de spin com $\mathbf{k} \neq 0$ e, portanto, não contribui para os modos de onda de spin. Devemos encontrar uma relação equivalente a equação 3.13 para parte dinâmica do campo efetivo magnético $\mathbf{h}_{\mathbf{k}}(t)$ dependente do vetor de onda de spin $\mathbf{k}$, a qual deve ter a seguinte forma

$$\mathbf{h}_{\mathbf{k}}(t) = -4\pi\overline{N}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{m}_{\mathbf{k}}(t), \quad (3.21)$$

de forma que para determinar o tensor $\overline{N}_{\mathbf{k}}$ é preciso determinar a relação entre a parte dinâmica do campo magnético efetivo $\mathbf{h}(\mathbf{r}, t)$ e da magnetização $\mathbf{m}(\mathbf{r}, t)$ com a dependência espacial para então podermos transformá-la para o espaço dos vetores de onda de spin $\mathbf{k}$. Para isso vamos considerar que o campo magnético efetivo dinâmico $\mathbf{h}(\mathbf{r}, t)$ pode ser escrito aproximadamente como uma soma do campo de troca $\mathbf{h}_{ex}(\mathbf{r}, t)$ e o campo dipolar $\mathbf{h}_{dip}(\mathbf{r}, t)$.

O campo de troca surge do acoplamento eletrostático entre orbitais eletrônicos e do princípio de exclusão de Pauli, de forma que descreve a interação entre os momentos magnéticos do material. O campo de troca age como um campo efetivo que tende a alinhar os momentos devido a interação de troca. A ação do campo $\mathbf{h}_{ex}(\mathbf{r}, t)$ em um conjunto de momentos magnéticos pode ser descrito através de um modelo de sistema

contínuo e expresso em função da magnetização $\mathbf{m}(\mathbf{r}, t)$ da seguinte forma [17]

$$\mathbf{h}_{ex}(\mathbf{r}, t) = \frac{D}{M_s} \nabla^2 \mathbf{m}(\mathbf{r}, t), \quad (3.22)$$

onde D é a constante de troca não uniforme e a transformada de Fourier do campo de troca 3.22 produz a seguinte relação

$$\mathbf{h}_{\mathbf{k},ex}(t) = -\frac{D}{M_s} k^2 \mathbf{m}_{\mathbf{k}}(t), \quad (3.23)$$

onde $k = |\mathbf{k}|$ é o número de onda de spin. Podemos escrever a equação 3.23 através do tensor de campo de troca $\overline{N}_{\mathbf{k},ex}$ da seguinte maneira

$$\mathbf{h}_{\mathbf{k},ex}(t) = -4\pi \overline{N}_{\mathbf{k},ex} \cdot \mathbf{m}_{\mathbf{k}}(t), \quad (3.24)$$

onde o tensor $\overline{N}_{\mathbf{k},ex}$ tem a seguinte forma

$$\overline{N}_{\mathbf{k},ex} = \frac{Dk^2}{4\pi M_s} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}. \quad (3.25)$$

O campo dipolar $\mathbf{h}_{dip}(\mathbf{r}, t)$ é o campo devido a presença de cargas magnéticas. Tais cargas magnéticas surgem devido aos contornos da amostra, onde ocorre uma descontinuidade do meio magnético. O campo $\mathbf{h}_{dip}(\mathbf{r}, t)$ pode ser obtido a partir das equações de Maxwell considerada no limite magnetostático. Nessa aproximação as equações de Maxwell tomam a seguinte forma [60]

$$\begin{aligned} \nabla \times \mathbf{h}_{dip}(\mathbf{r}, t) &= 0, \\ \nabla \cdot \mathbf{h}_{dip}(\mathbf{r}, t) &= -4\pi \nabla \cdot \mathbf{m}(\mathbf{r}, t), \end{aligned} \quad (3.26)$$

a aproximação magnetostática é válida para ondas de spin com número de onda k maiores que o número de onda da onda eletromagnética $k_0 = \omega/c$ associada ao campo magnético de excitação ac $\mathbf{h}_{ac}(t)$. Para resolver o conjunto de equações 3.26 é preciso determinar as

condições de contorno, as quais depende da geometria da amostra.

Vamos considerar o caso de uma amostra infinitamente extensa para determinar o campo dipolar. Neste caso o campo dipolar dependente do vetor de onda de spin obtido a partir das equações 3.19 e 3.26 é da seguinte forma [17]

$$\mathbf{h}_{\mathbf{k},dip}(t) = -4\pi \frac{\mathbf{k}(\mathbf{k} \cdot \mathbf{m}_{\mathbf{k}}(t))}{k^2}. \quad (3.27)$$

Vamos descrever a direção do vetor de onda de spin $\mathbf{k}$ em coordenadas esféricas determinadas pelo próprio vetor de onda de spin e seus ângulos polares θ_k e azimuthal φ_k , mostrados na figura 3.3. Com isso vamos reescrever a equação 3.27 na seguinte forma tensorial

$$\mathbf{h}_{\mathbf{k},dip}(t) = -4\pi \bar{N}_{\mathbf{k},dip} \cdot \mathbf{m}_{\mathbf{k}}(t), \quad (3.28)$$

onde o tensor $\bar{N}_{\mathbf{k},dip}$ tem a seguinte forma

$$\bar{N}_{\mathbf{k},dip} = \begin{pmatrix} \text{sen}^2\theta_k \cos^2\varphi_k & \text{sen}^2\theta_k \text{sen}\varphi_k \cos\varphi_k & \text{sen}\theta_k \cos\theta_k \cos\varphi_k \\ \text{sen}^2\theta_k \text{sen}\varphi_k \cos\varphi_k & \text{sen}^2\theta_k \text{sen}^2\varphi_k & \text{sen}\theta_k \cos\theta_k \text{sen}\varphi_k \\ \text{sen}\theta_k \cos\theta_k \cos\varphi_k & \text{sen}\theta_k \cos\theta_k \text{sen}\varphi_k & \cos^2\theta_k \end{pmatrix}. \quad (3.29)$$

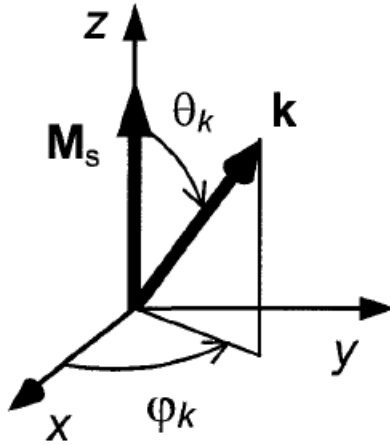


Figura 3.3: coordenadas do vetor de ondas de spin em uma amostra infinitamente extensa com a magnetização orientada na direção $\hat{\mathbf{z}}$

Vamos considerar que o campo magnético efetivo pode ser descrito conforme a equação 3.21, então vamos reescrever a equação de movimento 3.20 em termos das componentes de Fourier transversais da magnetização $m_{\mathbf{k}x,y}(t)$ da seguinte forma análoga a equação 3.14 para o modo uniforme

$$\begin{aligned}\frac{dm_{\mathbf{k}x}(t)}{dt} &= \gamma(-H_{\mathbf{k}xy}m_{\mathbf{k}x}(t) - H_{\mathbf{k}yy}m_{\mathbf{k}y}(t)), \\ \frac{dm_{\mathbf{k}y}(t)}{dt} &= \gamma(H_{\mathbf{k}xx}m_{\mathbf{k}x}(t) + H_{\mathbf{k}xy}m_{\mathbf{k}y}(t)),\end{aligned}\tag{3.30}$$

de forma que os campos não uniforme $H_{\mathbf{k}xx}$, $H_{\mathbf{k}yy}$ e $H_{\mathbf{k}xy}$ são descritos da seguinte forma

$$\begin{aligned}H_{\mathbf{k}xx} &= H_i + 4\pi M_s N_{\mathbf{k}XX}, \\ H_{\mathbf{k}yy} &= H_i + 4\pi M_s N_{\mathbf{k}YY}, \\ H_{\mathbf{k}xy} &= 4\pi M_s N_{\mathbf{k}XY}.\end{aligned}\tag{3.31}$$

Assim, com uma forma similar à relação 3.17, as auto-frequências para o modo de onda de spin com vetor de onda de spin $\mathbf{k}$ tem a seguinte forma

$$\omega_{\mathbf{k}} = |\gamma| \sqrt{H_{\mathbf{k}xx}H_{\mathbf{k}yy} - H_{\mathbf{k}xy}^2}.\tag{3.32}$$

A relação da frequência $\omega_{\mathbf{k}}$ com o vetor de onda de spin $\mathbf{k}$ é a chamada relação de dispersão das ondas de spin. Para o caso de uma amostra infinitamente extensa o tensor $\overline{N}_{\mathbf{k}}$ na equação 3.21 será a soma do tensor dipolar 3.29 e o tensor de troca 3.25. Assim, as equações 3.31 ficam da seguinte forma:

$$\begin{aligned}H_{\mathbf{k}xx} &= H_i + Dk^2 + 4\pi M_s \sin^2 \theta_k \cos^2 \varphi_k, \\ H_{\mathbf{k}yy} &= H_i + Dk^2 + 4\pi M_s \sin^2 \theta_k \sin^2 \varphi_k, \\ H_{\mathbf{k}xy} &= 4\pi M_s \sin^2 \theta_k \sin \varphi_k \cos \varphi_k,\end{aligned}\tag{3.33}$$

e a relação de dispersão de ondas de spin para o caso de uma amostra infinitamente

extensa com baixa anisotropia é dado por

$$\omega_{\mathbf{k}} = |\gamma| \sqrt{(H_i + Dk^2)(H_i + Dk^2 + 4\pi M_s \sin^2 \theta_k)}, \quad (3.34)$$

onde a dependência com ângulo azimutal φ_k é desconsiderada para o caso de uma amostra com baixa anisotropia.

No caso de filmes finos, a solução do campo dipolar foi encontrado por Kalinikos e Slavin [61] usando a abordagem de teorias de perturbação clássica e descrevendo o campo dipolar por funções de Green tensoriais. Essa solução geral foi obtida para o campo magnético efetivo estático orientado em uma direção arbitrária com a magnetização de saturação orientada na mesma direção.

Para obter a relação de dispersão no caso de filmes finos vamos utilizar o sistema de coordenadas descrito conforme a figura 3.4 para um filme com espessura d e dimensões laterais infinitamente extensa. A direção do vetor de onda de spin é determinada pelo ângulo θ_k , o qual é definido com respeito a projeção da magnetização de saturação no plano do filme. Na abordagem utilizada por Kalinikos e Slavin [61] foi proposto por Harte [55] que a magnitude da magnetização pode ser considerada constante ao longo da espessura do filme fino. Nessas condições, a série de Fourier da equação 3.19 restringe-se ao espaço bidimensional de vetores de onda $\mathbf{k}$ confinados no plano do filme. Assim, considerando a aproximação para filmes finos proposta por Hartre [55] e o sistema de coordenadas da figura 3.4, temos que os campos não uniformes $H_{\mathbf{k}xx}$, $H_{\mathbf{k}yy}$ e $H_{\mathbf{k}xy}$ da equação 3.31 têm a seguinte forma:

$$\begin{aligned} H_{\mathbf{k}xx} &= H_i + Dk^2 \\ &\quad + 4\pi M_s [(1 - N_k) \cos^2 \theta_k \cos^2 \theta_M + N_k \sin^2 \theta_M], \\ H_{\mathbf{k}yy} &= H_i + Dk^2 + 4\pi M_s (1 - N_k) \sin^2 \theta_k, \\ H_{\mathbf{k}xy} &= 4\pi M_s (1 - N_k) \sin \theta_k \cos \theta_k \cos \theta_M. \end{aligned} \quad (3.35)$$

Sendo assim, a relação de dispersão para um filme fino confinado no plano do filme

($\theta_M = \pi/2$) fica da seguinte forma

$$\omega_{\mathbf{k}} = |\gamma| \sqrt{(H_i + Dk^2 + 4\pi M_s N_k)(H_i + Dk^2 + 4\pi M_s(1 - N_k) \sin^2 \theta_k)}, \quad (3.36)$$

onde $N_k = (1 - e^{-kd})/kd$ é o fator dipolar proposto por Harte [55], d é a espessura do filme e, no caso de um filme com baixa anisotropia, a parte estática do campo efetivo H_i é igual ao campo magnético externo estático H_{ext} . Pode-se ver que no limite de $k \rightarrow 0$ a relação de dispersão para onda de spin em filme finos $\omega_{\mathbf{k}}$ (equação 3.36) toma a forma da frequência de ressonância do modo de precessão uniforme ω_0 para filmes magnetizados no plano da amostra (mostrado na tabela 3.1).

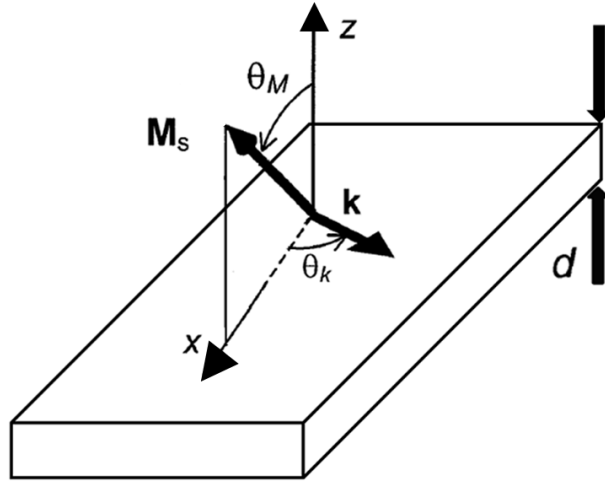


Figura 3.4: Coordenadas do vetor de onda de spin $\mathbf{k}$ em uma filme fino com espessura d e dimensões laterais infinita. Nesse sistema o vetor de onda de spin é confinado no plano da amostra.

3.4 Equação de movimento amortecido

Nesta secção iremos discutir uma maneira de adicionar o termo dissipativo da energia magnética nos processos de oscilação da magnetização. Em uma amostra magnética qualquer oscilação da magnetização é acompanhada de uma dissipação de sua energia, a qual é transformada em outros tipos de energia. Esse processo de perda tende a causar a relaxação da magnetização para sua posição de equilíbrio [17].

Uma forma de contabilizar a dissipação nos processos de oscilação da magnetização é através da medida da suscetibilidade magnética ac , ou seja através da resposta da mag-

netização a um campo magnético *ac*. Ao determinar uma expressão para suscetibilidade magnética *ac* iremos obter uma parte imaginária, a qual estará relacionada ao processo de perdas de energia magnética [17]. A maneira apropriada de determinar essa suscetibilidade imaginária é através da adição de um termo de dissipação na equação de movimento da magnetização 3.3.

Historicamente a primeira equação fenomenológica do movimento da magnetização com um termo dissipativo foi sugerida por Landau e Lifshitz, que propuseram uma modificação da equação 3.3, com um adicional termo de torque, com a seguinte forma [19]:

$$\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} = -\gamma \mathbf{M} \times \mathbf{H}_{ef} - \frac{\gamma \lambda}{M^2} \mathbf{M} \times (\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{ef}). \quad (3.37)$$

λ é um parâmetro que tem dimensão de campo magnético e regula o amortecimento da precessão da magnetização. O segundo termo do lado direito da equação 3.37 é um termo de relaxação, que age como um torque, forçando a magnetização para a sua posição de equilíbrio.

A equação 3.37 descreve muito bem um sistema magnético com baixo amortecimento. Thomas L. Gilbert propôs que a equação 3.37 fosse modificada para descrever sistemas com alto amortecimento, com isso a equação 3.37 passou a ter seguinte forma [19]

$$\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} = -\gamma \mathbf{M} \times \mathbf{H}_{ef} + \frac{\alpha}{M} \mathbf{M} \times \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t}. \quad (3.38)$$

Essa equação 3.38 é chamada equação de Landau-Lifshitz-Gilbert e o parâmetro de amortecimento de Gilbert $\alpha = \lambda/M$ não possui dimensão. Basicamente, o produto vetorial $\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{ef}$ no segundo termo do lado direito da equação 3.37 pelo termo proporcional à taxa de variação da magnetização com o tempo $-\gamma^{-1} \partial \mathbf{M} / \partial t$.

Vamos resolver a equação 3.38 no limite de pequenas oscilações. Tal procedimento é chamado de linearização da equação de Landau-Lifshitz-Gilbert. Utilizaremos um procedimento semelhante ao realizado na secção 3.1, onde obtivemos a equação de Landau-Lifshitz (equação 3.3) em sua forma linear (equação 3.6). Separamos o campo magnético efetivo e a magnetização em duas componentes; uma estática e outra dinâmica da seguinte

forma:

$$\mathbf{H}_{ef}(t) = \mathbf{H}_0 + \mathbf{h}(t) \quad \mathbf{M}(t) = \mathbf{M}_0 + \mathbf{m}(t). \quad (3.39)$$

Supomos que $\mathbf{H}_0 \gg \mathbf{h}(t)$, $\mathbf{M}_0 \gg \mathbf{m}(t)$ e que a direção de equilíbrio da magnetização $\mathbf{M}_0$ coincide com a direção da parte estática do campo magnético efetivo $\mathbf{H}_0$ (ou seja, $\mathbf{M}_0 \times \mathbf{H}_0 = 0$). Também iremos supor soluções harmônicas para a parte dinâmica da magnetização $\mathbf{m}(t)$ e o campo externo *ac* $\mathbf{h}(t)$ com a seguinte forma

$$\mathbf{h}(t) = \mathbf{h}_0 \exp(i\omega t) \quad \mathbf{m}(t) = \mathbf{m}_0 \exp(i\omega t), \quad (3.40)$$

com isso a equação 3.38 fica da seguinte forma:

$$i\omega \mathbf{m}_0 = -\gamma \mathbf{m}_0 \times \mathbf{H}_0 - \frac{i\alpha\omega}{M_0} \mathbf{m}_0 \times \mathbf{M}_0 - \gamma \mathbf{M}_0 \times \mathbf{h}_0. \quad (3.41)$$

Considerando que o nosso sistema de coordenadas é de tal forma que $\mathbf{H}_0$ e $\mathbf{M}_0$ estão na direção do eixo $\hat{\mathbf{z}}$ e o campo magnético *ac* $\mathbf{h}$ está no plano transversal xy , temos que a equação 3.41 pode ser representada pelo sistema de equações

$$\begin{aligned} i\omega m_{0x} + (\gamma H_0 + i\alpha\omega) m_{0y} &= \gamma M_0 h_{0y}, \\ -(\gamma H_0 + i\alpha\omega) m_{0x} + i\omega m_{0y} &= -\gamma M_0 h_{0x}, \\ i\omega m_{0z} &= 0. \end{aligned} \quad (3.42)$$

A partir da solução desse sistema de equações 3.42 obtemos as seguintes relações

$$m_{0x} = (\chi' - i\chi'') h_{0x} + i(\chi'_i - i\chi''_i) h_{0y} \quad m_{0y} = (\chi' - i\chi'') h_{0y} - i(\chi'_i - i\chi''_i) h_{0x}, \quad (3.43)$$

onde os termos $\chi' - i\chi''$ e $(\chi'_i - i\chi''_i)$ são componentes reais e imaginárias do tensor

suscetibilidade $\bar{\chi}$, definido por $\mathbf{m} = \bar{\chi}\mathbf{h}$. $\bar{\chi}$ tem a seguinte forma matricial

$$\bar{\chi} = \begin{pmatrix} (\chi' - i\chi'') & i(\chi'_i - i\chi''_i) & 0 \\ -i(\chi'_i - i\chi''_i) & (\chi' - i\chi'') & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (3.44)$$

Os termos χ' , χ'' , χ'_i e χ''_i são dados por

$$\begin{aligned} \chi' &= \frac{1}{Z} \gamma M_0 \gamma H_0 [(\gamma H_0)^2 - (1 - \alpha^2)\omega^2], \\ \chi'' &= \frac{1}{Z} \alpha \gamma M_0 \omega [(\gamma H_0)^2 + (1 + \alpha^2)\omega^2], \\ \chi'_i &= \frac{1}{Z} \gamma M_0 \omega [(\gamma H_0)^2 - (1 + \alpha^2)\omega^2], \\ \chi''_i &= \frac{1}{Z} 2\alpha \gamma M_0 \gamma H_0 \omega^2, \end{aligned} \quad (3.45)$$

onde

$$Z = [(\gamma H_0)^2 - (1 + \alpha^2)\omega^2]^2 + 4\alpha^2 \omega_H^2 \omega^2. \quad (3.46)$$

Quando a oscilação da magnetização entra em ressonância com campo magnético externo *ac* $\mathbf{h}$, a parte real do tensor suscetibilidade 3.44 muda de sinal e a parte imaginária passa pelo máximo [17]. Com isso, a partir do conjunto de equações 3.45, obtemos a seguinte condição de ressonância.

$$\omega = \frac{\gamma H_0}{\sqrt{1 + \alpha^2}}. \quad (3.47)$$

Na ressonância, os termos do tensor suscetibilidade (dados pela Equação 3.45) tomam a seguinte forma

$$\begin{aligned} \chi'_{res} &= \frac{\gamma M_0}{2\gamma H_0}, & \chi''_{res} &= \frac{\gamma M_0}{2\alpha\omega}, \\ \chi'_{i\,res} &= 0, & \chi''_{i\,res} &= \frac{M_0}{2\alpha H_0} \approx \chi''_{res}. \end{aligned} \quad (3.48)$$

Podemos ver na equação 3.48 que a suscetibilidade aumenta quando o parâmetro de

amortecimento de Gilbert diminui, ou seja, maior é absorção da radiação eletromagnética para baixos valores de dissipação. Em torno da frequência (ou do campo de ressonância) as expressões 3.45 podem ser aproximadas por [17]

$$\begin{aligned}\chi' &\approx \chi'_i \approx \frac{\gamma M_0}{2} \frac{\omega - \gamma H_0}{\alpha^2 \omega^2 + (\omega - \gamma H_0)^2}, \\ \chi'' &\approx \chi''_i \approx \frac{\gamma M_0}{2} \frac{\alpha \omega}{\alpha^2 \omega^2 + (\omega - \gamma H_0)^2}.\end{aligned}\tag{3.49}$$

As expressões 3.49 providenciam uma forma útil de determinar a relação entre a parte imaginária da suscetibilidade χ'' (associada aos processos de perdas) e o parâmetro de amortecimento de Gilbert α .

No caso de uma medida de χ'' com frequência angular ω fixa, onde o campo externo é variado, podemos determinar a largura de linha a meia altura ΔH que é dado por

$$\Delta H = \frac{2\alpha\omega}{\gamma}.\tag{3.50}$$

Com a relação 3.50, a qual foi obtida a partir da equação 3.49, podemos ver que a medida da largura de linha a meia altura da parte imaginária da suscetibilidade é um método útil para quantificar o parâmetro de dissipação do sistema magnético.

A equação fenomenológica desenvolvida por Landau-Lifshitz-Gilbert 3.38 é amplamente usada para caracterizar a dinâmica da magnetização de materiais ferromagnéticos e inclusive a relaxação da precessão da magnetização para a posição de equilíbrio. A largura de linha ΔH obtida na relação 3.50 reflete somente a relaxação do modo precessão uniforme. No entanto, a largura de linha de FMR total é o resultado de outros processos físicos de relaxação. No próximo capítulo iremos discutir os processos físicos de relaxação da magnetização e como estão relacionados com a largura de linha de FMR total.

Capítulo 4

Mecanismos de Relaxação

Um processo de relaxação físico descreve o retorno de um sistema que foi perturbado para o seu estado de equilíbrio termodinâmico. Nesse capítulo estamos interessados em estudar alguns processos físicos associados a relaxação da oscilação da magnetização para sua posição de equilíbrio e sua relação com a largura de linha de FMR, como também efeitos de alargamento da largura de linha de FMR.

Nas próximas seções iremos discutir com maiores detalhes os processos de relaxação intrínsecos, os processos de relaxação extrínsecos e o alargamento da largura de linha de FMR. Os processos de relaxação intrínsecos estão associados a direta dissipação do modo de precessão uniforme, enquanto que os processos de relaxação extrínsecos estão associados ao fluxo de momento angular do modo de precessão uniforme para os modos de ondas de spin. Nessa seção iremos estudar também o alargamento da largura de linha de FMR, a qual está associada a uma variação espacial das condições de ressonância no interior da amostra e não se relaciona a um mecanismo de relaxação.

4.1 Mecanismos de Relaxação intrínseco

A direta dissipação do modo de precessão uniforme associada a mecanismos de relaxação intrínsecos ao sistema magnético tem sua origem na interação dos momentos magnéticos com outros sistemas, como por exemplo a rede cristalina, os elétrons de condução, etc. A interação entre esses sistemas corresponde ao espalhamento entre a quase-partícula associada a quantização das ondas de spin (mágnons) e a quase-partícula associada a quantização das oscilações da rede cristalina (fónons) ou outras partículas

que possam acoplar com os mágnons como por exemplo os elétrons de condução.

O mecanismo de relaxação intrínseco considerado nessa tese é determinado pelo parâmetro de amortecimento de Gilbert, o qual determina o termo dissipativo da equação fenomenológica de Landau-Lifshitz-Gilbert(LLG). No capítulo anterior encontramos que a partir dessa equação fenomenológica a largura de linha de FMR tem a seguinte forma

$$\Delta H_G = \frac{2\alpha\omega}{|\gamma|} \quad (4.1)$$

Esse comportamento linear da largura de linha com a frequência tem sido bastante observado em filmes [62, 63]. Recentes trabalho com cálculos ab initio de estrutura de banda têm mostrado que os processos de relaxação da magnetização relacionados ao espalhamento de mágnons por elétrons de condução são consistentes com a descrição fenomenológica proposta por Landau-Lifshitz-Gilbert, tais resultados foram obtidos para os metais ferro, cobalto e o níquel [64]. Os mecanismos de relaxação intrínseco em metais serão melhor discutidos na subseção seguinte.

4.1.1 Espalhamento devido a interação de mágnon-elétron

Experimentos de FMR realizados em amostras de níquel mostraram que o mecanismo de relaxação intrínseco é causado pela natureza itinerante dos elétrons de condução e a interação spin-órbita [65]. Para explicar esse resultado foi proposto um modelo baseado na interação de troca s - d , a qual considera a interação de troca entre os momentos dos elétrons itinerantes(elétrons da banda s) e localizados(elétrons da banda d).

No modelo proposto por Heinrich et al [66] temos que mágnons e elétrons são espalhados coerentemente pela interação de troca s - d , de forma que o momento angular total e o vetor de onda se conservam. Devido a isso temos que os elétrons itinerantes sofrem uma inversão de sua orientação de spin (interação do tipo *spin-flip*) quando espalhados por um mágnon. O espalhamento coerente é interrompido por espalhamentos incoerentes com fônons e mágnons termicamente excitados. Tal espalhamento incoerente conduz ao relaxamento das oscilações da magnetização.

Uma outra descrição física dos mecanismos de relaxação intrínsecos foi desenvolvido

por Kambersky et al [67]. Esse é um modelo de transições intra bandas o qual se baseia na mudança da superfície de Fermi com a direção da magnetização [67]. A precessão da magnetização distorce a superfície de Fermi periodicamente e o processo de reocupação eletrônica é determinada por um tempo de relaxação finito [67]. Em ambos modelos (Kambersky e Heinrich) temos que o amortecimento é compatível com o descrito pela equação fenomenológica de Landau-Lifshitz-Gilbert (Eq. 3.38).

4.2 Mecanismos de Relaxação extrínseco

O fluxo de momento angular entre os modos de precessão da magnetização é um mecanismo de relaxação extrínseco pois depende das condições do experimento de FMR. Esses mecanismos de relaxação extrínseco são devidos tanto a um movimento de precessão não linear da magnetização quanto ao espalhamento do modo de precessão uniforme pelas imperfeições e não homogeneidades da amostra. Em nossos experimentos de FMR (os quais foram realizados com baixa potência de excitação) desconsideramos o movimento não linear da precessão da magnetização, o qual dá origem aos processos de decaimento três e quatro mágnons. Por outro lado o espalhamento dois mágnons (TMS) associado a não homogeneidades da amostra pode ser bastante pronunciado mesmo em regimes de precessão linear da magnetização.

Em trabalhos anteriores de FMR em amostras *bulk* (massivas) de ferritas observou-se que a largura de linha obtida foi substancialmente maior do a que esperada para processos de relaxação intrínsecos. LeCraw et al [68] observou uma relação direta entre a largura de linha e o tamanho de grãos da lixa utilizada para polir essas amostras de ferritas. Foi proposto que as imperfeições superficiais causadas pelo polimento induz um acoplamento entre o modo de precessão uniforme ($k = 0$) e as ondas de spin ($k \neq 0$) degeneradas. De forma que a precessão da magnetização relaxa através do espalhamento em ondas de spin que estão na mesma frequência do modo de precessão uniforme. Esse mecanismo de relaxação foi chamado de espalhamento dois magnóns.

O processo de espalhamento dois mágnons está relacionado com a variação espacial local do campo efetivo $\mathbf{H}_{ef}$, onde essa flutuação ocorre com um curto comprimento de onda. Tal variação conduz ao acoplamento do modo de precessão uniforme e de ondas de

Spin com mesma frequência. Uma variação espacial do campo efetivo pode ser observado em filmes policristalinos com grãos orientados aleatoriamente, onde há uma flutuação do campo de anisotropia magnetocristalina efetivo de um grão (ou de um aglomerado de grãos) para outro. Também pode se observar TMS em sistema com pequenos poros ou pequenas fases intermediárias e defeitos superficiais.

Em um trabalho teórico seminal, desenvolvido por Spark et al [69], foi explicado que o aumento da largura de linha é o resultado do espalhamento do modo de precessão uniforme devido ao campo dipolar produzido por defeitos superficiais. Em amostras policristalinas o espalhamento do modo de precessão uniforme pode ocorrer devido a porosidade entre os grãos e/ou a partir de uma orientação aleatória dos eixos de anisotropia local. A teoria básica para o espalhamento dois mágnons devido a essa orientação aleatória da anisotropia foi descrita por Schlomann [70] para amostras *Bulk*. O processo de espalhamento dois mágnons também foi proposto por Arias e Mills posteriormente como possível mecanismo relaxação atuando em filme ultrafinos, os quais tem a sua espessura da ordem do seu comprimento de troca [71]. Nesse modelo o espalhamento do modo de precessão uniforme ocorre a partir de defeitos superficiais, os quais geram campos dipolares e uma variação na anisotropia superficial.

Uma variedade de métodos tem sido usado para obter a taxa de relaxação de TMS. No caso de amostras de filmes ultrafinos Arias e Mills desenvolveram uma teoria baseado no formalismo de funções de Green com aproximação contínua. Em 2004 McMichael e Krivosik usaram um método de equação de movimento acoplada para descrever TMS em filmes ultrafinos [51], onde o termo de não homogeneidade é introduzindo como um campo adicional ao campo efetivo na equação de movimento da magnetização e em outra formulação a não homogeneidade é considerado como um termo de energia adicional no Hamiltoniano [52]. Tal método também foi utilizado por Schloemann [70] para descrever TMS em amostras *Bulk*.

De uma forma geral a largura linha ΔH_{TMS} devido ao TMS obtida por Schloemann [70] para amostras *Bulk* e McMichael [51] para filmes finos pode ser escrita através da

seguinte relação

$$\Delta H_{TMS} = \frac{2}{|\gamma|} \pi \sum_{\mathbf{k}} |W_{0\mathbf{k}}|^2 \delta(\omega_0 - \omega_{\mathbf{k}}), \quad (4.2)$$

onde $|W_{0\mathbf{k}}|^2$ determina a intensidade do acoplamento entre o modo de precessão uniforme ($k = 0$) e o modo de vetor de onda $\mathbf{k}$ e a delta de Dirac $\delta(\omega_0 - \omega_{\mathbf{k}})$ seleciona os modos com frequência $\omega_{\mathbf{k}}$ igual ao modo de precessão uniforme ω_0 . Esse acoplamento entre os modos de oscilação depende fortemente das distribuições e dos tamanhos das imperfeições na amostra. Como vimos no capítulo anterior a relação de dispersão $\omega_{\mathbf{k}}$ difere bastante se a amostra é considerada infinitamente extensa (*Bulk*) ou um filme fino, portanto, como veremos nas secções seguintes, a relação de η_{TMS} com o campo magnético/frequência de excitação será consideravelmente diferente se amostra é *Bulk* ou filmes finos.

4.2.1 Mecanismos espalhamento dois magnons em *Bulk*

A teoria de espalhamento dois magnons para uma amostra massiva (*Bulk*) de ferrita policristalina com a anisotropia magnetocristalina orientada aleatoriamente foi desenvolvida por Schloemann [70]. Essa teoria produz o seguinte resultado para a intensidade de acoplamento entre os modos de oscilação

$$|W_{0\mathbf{k}}|^2 = \frac{4}{105} (|\gamma| H_A)^2 \left(1 + 19|\gamma| \frac{H_i + Dk^2 + 2\pi M_s \sin^2 \theta_k}{\omega} \right) g(k), \quad (4.3)$$

onde H_A é o campo de anisotropia, H_i é a parte estática do campo efetivo, D é a constante de rigidez de troca, k e θ_k são a magnitude do vetor de onda e o ângulo polar da propagação da onda de spin, respectivamente. A função $g(k)$ contabiliza a distribuição e o tamanho dos grãos, de forma que para uma distribuição aleatória de eixos de anisotropia magnetocristalina temos que essa função tem a seguinte forma [70]

$$g(k) = \frac{1}{V} \frac{8\pi\xi^3}{[1 + (k\xi)^2]^2}, \quad (4.4)$$

onde ξ é o tamanho de grão e V é o volume da amostra. A função $g(k)$ cai rapidamente para vetores de onda $k \gg 1/\xi$ e assim considera o fato que o modo de precessão uniforme

é mais espalhado para ondas de spin com o comprimento de onda da ordem do tamanho de grão.

No caso de espalhamento de ondas de spin com o limite de $k \rightarrow 0$ podemos obter analiticamente a largura de linha TMS 4.2 com uso das equações 4.3 e 4.4. O resultado tem a seguinte forma [70]

$$\Delta H_{TMS} = \frac{8\pi\sqrt{3}}{21} \frac{H_A^2}{4\pi M_s} G\left(\frac{\omega}{\omega_M}\right), \quad (4.5)$$

onde $\omega_M = |\gamma|4\pi M_s$ e a função $G(x)$ é dada por

$$G(x) = \frac{x^2 - x/3 + 19/360}{\sqrt{(x - 1/3)^3(x - 2/3)}}, \quad x > 2/3, \quad (4.6)$$

$$0, \quad x \leq 2/3.$$

A equação 4.5 fornece a largura de linha devido ao processo de espalhamento dois mágnons em uma amostra massiva com uma distribuição aleatória da anisotropia.

4.2.2 Mecanismos espalhamento dois magnons em filmes finos

A partir da equação de LLG pode se obter que a largura de linha depende linearmente da frequência mas isso não pode ser considerado uma afirmação geral como podemos observar o caso de amostras de filmes ultrafinos com defeitos superficiais [72–74] e como vimos no caso de amostras massivas (*Bulk*) que podem ter a sua largura de linha de FMR em função da frequência descrita pelas Equações 4.6 e 4.5 [53, 54]. Nesses casos, observamos que a largura de linha do espectro em campo variado é uma função claramente não linear da frequência, isso acontece em alguns filmes cristalinos e filmes finos policristalinos [31, 62, 63, 75].

Para análise do processo TMS em filmes finos costuma-se adotar a aproximação de Harte [55], que supõe que os modos de ondas de spin que não têm variação na secção transversal do filme. Considerando esse limite e uma abordagem Hamiltoniana Pavol et al [52] obtiveram a seguinte expressão para a largura de linha devido ao TMS para filmes policristalinos:

$$\Delta H_{TMS} = \frac{|\gamma| H_A^2 \xi^2}{P_A(\omega)} \int \Lambda_{0k} C_k(\xi) \delta(\omega - \omega_k) d^2 k, \quad (4.7)$$

onde H_A é o campo de anisotropia efetivo para grão orientados aleatoriamente, dado por $H_A = 2K/M_S$, onde K é densidade de energia de anisotropia, ξ é o tamanho de grão, $P_A(\omega) = \partial \omega_{FMR} / \partial |\gamma| H$ é a derivada da frequência angular dependente do campo ω_{FMR} calculada no campo de ressonância $H = H_{FMR}$ na frequência de operação e γ é a razão giromagnética. $P_A(\omega)$ é o fator que converte as larguras de linha na varredura em frequência e em campo.

A função $C_k(\xi)$ é a transformada de Fourier da função de correlação campo efetivo não uniforme de grão a grão. De forma que $C_k(\xi)$ contabiliza o espalhamento de ondas de spins com o vetor de ondas de spins k em um meio com tamanho de grão ξ , dado por [31]

$$C_k(\xi) = \frac{1}{[1 + (k\xi)^2]^{3/2}}. \quad (4.8)$$

No espaço real essa função corresponde a uma correlação do campo efetivo entre pontos do filme $\mathbf{r}$ e $\mathbf{r}'$ que decai com a forma $e^{-|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|/\xi}$.

A função Λ_{0k} contabiliza a média das flutuações dos eixo de anisotropia e a elipticidade da precessão tanto do modo uniforme quanto de ondas spin e tem a seguinte forma [31]

$$\Lambda_{0k} = c_1 e_0 e_k + \frac{c_2}{e_0 e_k} + c_3 \frac{e_0}{e_k} + c_3 \frac{e_k}{e_0} + c_4, \quad (4.9)$$

onde e_0 e e_k são os fatores de elipticidade do modo uniforme e de uma onda de spin com vetor de onda k e esses fatores tem a seguinte forma

$$e_0 = \sqrt{\frac{H + 4\pi M_s}{H}} \quad (4.10)$$

e

$$e_k = \sqrt{\frac{H + Dk^2 + 4\pi M_s N_k}{H + Dk^2 + 4\pi M_s (1 - N_k) \sin^2 \theta_k}}. \quad (4.11)$$

A integral na equação 4.7 é realizada do modo uniforme $k = 0$ até todos os modos SW degenerados disponíveis, de forma que a função delta de Dirac $\delta(\omega - \omega_k)$ seleciona os estados degenerados. Assim, considerando a relação de dispersão que foi obtida no capítulo 3, para filmes finos

$$\omega_{\mathbf{k}} = |\gamma| \sqrt{(H_i + Dk^2 + 4\pi M_s N_k)(H_i + Dk^2 + 4\pi M_s (1 - N_k) \sin^2 \theta_k)}, \quad (4.12)$$

a integral da equação 4.7 não tem solução analítica e precisa ser resolvida numericamente. O mecanismo de TMS é um processo de relaxamento físico que depende da não homogeneidade da amostra. Portanto é considerado um processo extrínseco de relaxamento. Nessa tese observamos que todas as nossas amostras possuem uma relação não linear da largura de linha com a frequência ω e o tamanho de grão ξ . No caso dos filmes de 100 nm a contribuição ΔH_{TMS} foi obtida com a equação 4.7, a qual foi resolvida numericamente, enquanto que para filmes mais espessos (200 nm e 500 nm) a contribuição ΔH_{TMS} tem a forma dada pela equação 4.5 devido a sua alta dispersão de anisotropia.

4.3 Alargamento da largura de linha

Uma das contribuições para o comportamento da largura de linha em função frequência é o termo de inhomogeneidade ΔH_{INO} constante. Esse termo independente da frequência é atribuído a flutuações espaciais de alguma propriedade magnética da amostra como por exemplo a anisotropia [51]. O aumento da largura de linha de FMR, tratado nessa tese, é similar ao espalhamento dos magnons, no sentido que ambos são devidos a não homogeneidade da amostra, porém esse alargamento não é devido a um processo de relaxação. Esse mecanismo de alargamento é gerado devido a uma variação espacial de alguma propriedade magnética da amostra, a qual forma regiões com condições de ressonância ligeiramente diferentes no interior da amostra. Nesse caso o campo efetivo devido

a essas flutuações é mais forte que as interações de troca e dipolar em diferentes partes da amostra, e a amostra tem sua ressonância ferromagnética tratada teoricamente como uma coleção de regiões com variações do campo de ressonância [51].

Em materiais policristalinos com distribuição de grãos aleatória, os eixos fáceis cristalográficos dos grãos ou de aglomerados de grãos estão distribuído em direções aleatórias. Essa distribuição dos eixos gera uma variação espacial do campo de FMR que resulta no aumento da largura de linha de FMR independente da frequência. A não homogeneidade do campo efetivo pode também resultar de um stress não uniforme residual através do acoplamento magnetoelástico e assim a largura de linha devido a não homogeneidade do campo efetivo se relaciona com o nível de stress na amostra. Mostraremos que a contribuição ΔH_{INO} para a largura de linha de FMR é comparável ou mesmo a principal contribuição para a largura de linha experimental ΔH_{EXP} . ΔH_{INO} está intimamente relacionada com o nível de stress residual não uniforme de nossas amostras, que pode ser reduzido pelo tratamento térmico adequado. No próximo capítulo iremos descrever os procedimentos e as técnicas utilizadas na investigação das propriedades estruturais, magnéticas quase estática e dinâmica e do processos de relaxação e alargamento da largura de linha de FMR em nossas amostras.

Capítulo 5

Métodos e Procedimentos Experimentais

Neste capítulo iremos discutir os procedimentos adotados para investigar as propriedades estruturais e magnéticas de filmes com composição $\text{Fe}_{73.5}\text{Nb}_3\text{Cu}_1\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ e espessuras de 100 nm, 200 nm e 500 nm. Os filmes com essa composição podem ser precursores de filmes do tipo Finemet dependendo das condições de deposição e de tratamento térmico. Os filmes foram depositados por RF *Magnetron Sputtering* e posteriormente partes dessas amostras foram recozidas em forno tubular sob alto vácuo a diferentes temperaturas. As seções abaixo irão discutir com maiores detalhes os procedimentos e as técnicas utilizadas para a produção e caracterização dessas amostras.

5.1 Produção das Amostras

As amostras de filmes amorfos precursores de Finemet com composição $\text{Fe}_{73.5}\text{Nb}_3\text{Cu}_1\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ foram produzidas por RF *Magnetron Sputtering* tratadas termicamente em forno convencional sob alto vácuo. A deposição dos filmes foi realizada no laboratório de Magnetismo e Materiais Magnéticos da universidade Federal de Santa Maria (UFSM) em um sistema de deposição de fabricação própria, onde foram produzidos filmes com espessuras de 100 nm, 200 nm e 500 nm sobre um substrato de vidro. Essas amostras foram tratadas termicamente por 1 hora em alto vácuo, com pressões constantes de 6×10^{-6} mbar. O Vácuo foi obtido com uma bomba mecânica e uma difusora acoplada com uma armadilha de óleo de nitrogênio líquido, tal que as duas bombas foram dispostas em série. O tratamento térmico das amostras é feito a uma temperatura fixa, de forma que o tubo de quartzo é inserido no forno estabilizado na temperatura desejada. Esses

filmes foram tratados em um forno tubular na sala de fornos do Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas(CBPF).

5.1.1 *Magnetron Sputtering*

A técnica de deposição *Sputtering* ou pulverização catódica consiste no desbaste de um alvo pelo choque mecânico de átomos ionizados de um gás inerte. O processo de bombardeamento remove átomos ou agregados de átomos do alvo, os quais são utilizados para recobrir um substrato. A ionização do gás inerte é feita pela aplicação de uma diferença de potencial, que liberta alguns elétrons que ionizam os átomos do gás. O choque dos íons com o alvo (com potencial negativo) produz a emissão de elétrons secundários que novamente geram mais átomos ionizados e assim mantém o processo de pulverização catódica.

O *Magnetron Sputtering* consiste de um sistema de pulverização catódica com um arranjo de ímãs permanentes(ver figura 5.1). A configuração de campo magnético dos ímãs confina o plasma próximo à superfície do alvo. Essa armadilha magnética aumenta substancialmente a probabilidade de uma colisão ionizante entre os elétrons livres e os átomos do gás inerte, assim aumentando a eficiência de ionização e as taxas de deposição.

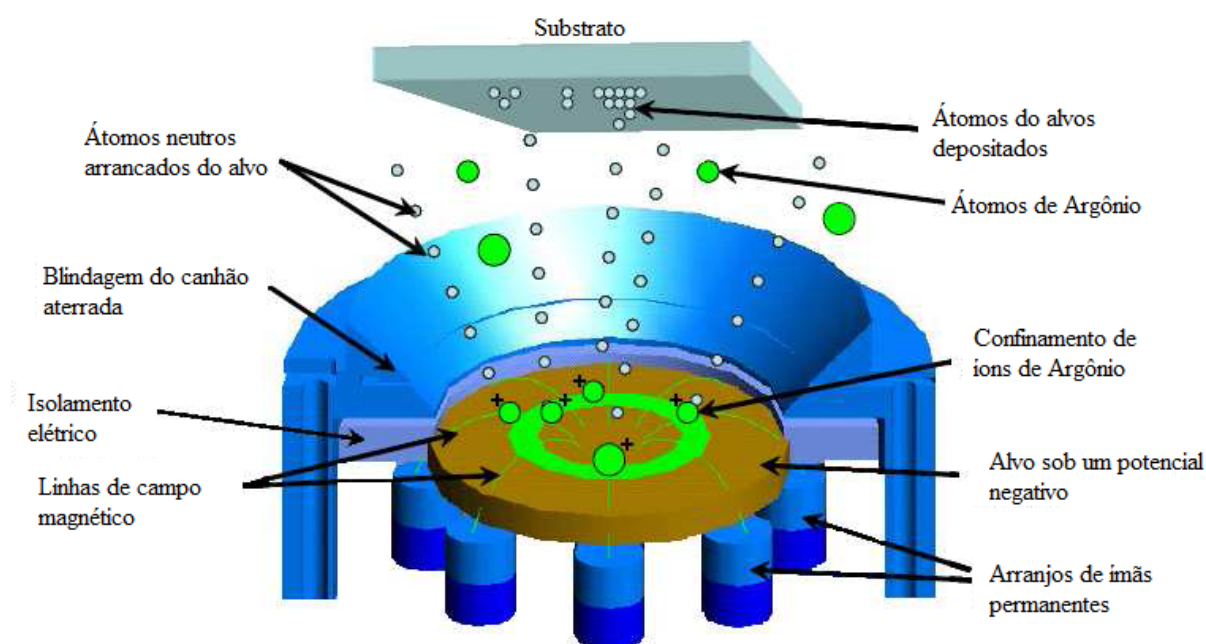


Figura 5.1: Sistema de deposição *Magnetron Sputtering* figura retirada da tese [7].

A deposição por *Magnetron Sputtering* é realizada em uma câmara onde é feito um alto vácuo, chamado de vácuo de base, na qual um fluxo de gás inerte é injetado. Nesse sistema são conectados dois eletrodos. Um eletrodo é o canhão, onde é colocado o alvo, o qual é conectado ao terminal negativo de uma fonte e o outro eletrodo é conectado ao restante do sistema, o qual fica aterrado. O plasma é produzido pela diferença de potencial entre esses eletrodos, de forma que no caso de RF *Magnetron Sputtering* a deposição é realizada com uma fonte de Rádio-Frequência e no DC *Magnetron Sputtering* utiliza-se uma fonte contínua.

Os filmes amorfos precursores de Finemet foram produzidos por RF *Magnetron Sputtering*. Foram produzidos filmes com composição nominal $\text{Fe}_{73.5}\text{Nb}_3\text{Cu}_1\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ e espessuras nominais de 100 nm, 200 nm e 500 nm sobre um substrato de vidro recoberto por uma camada de Tântalo de 2 nm. A câmara de deposição foi evacuada até uma pressão de 1×10^{-7} Torr e posteriormente foi submetido a um fluxo de argônio de 20 sccm de forma que a deposição ocorreu sob uma pressão de 5,2 mTorr. As amostras foram depositadas com o substrato passando pelo plasma a uma altura de 5 cm, potência de deposição de 65 W e aplicação de um campo magnético constante de 1 KOe paralelo ao substrato com o intuito de induzir uma anisotropia uniaxial.

5.2 Caracterização Estrutural

Nessa tese as amostras tiveram sua estrutura analisada por difração de raios x. Os experimentos foram realizados no difratômetro XPert PRO (Philips, Panalytical) do laboratório de Raios X do Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas (CBPF). A medida de difração de Raios-X foi feita na geometria de incidência rasante para filmes finos utilizando-se um ângulo de incidência igual a 1.5° e a radiação K_α do cobre ($\lambda = 1,54056 \text{ \AA}$) como fonte de raios X.

5.2.1 Difração de Raios-X

A difração é um fenômeno que ocorre quando uma onda encontra uma fenda ou um obstáculo com dimensões comparáveis ao seu comprimento de onda, de forma que são produzidos feixes de onda com diferentes direções de propagação, chamados de feixes

difratados. Tal fenômeno tem como principal característica a interferência construtiva e destrutiva entre os feixes difratados. Essa interferência ocorre devido a diferença de fase entre as ondas. Vamos considerar dois feixes de ondas com comprimentos na faixa do raios x (o qual situa-se na faixa de 0.01 a 10 nm) incidindo paralelamente com um ângulo θ entre dois planos atômicos paralelos separados por uma distância d (d é chamado de distância interplanar) no interior de uma estrutura cristalina (Figura 5.2), sendo que cada plano reflete somente uma parcela da radiação. A diferença de trajetória entre esses feixes ($2d \sin \theta$) leva a uma diferença de fase que pode produzir uma interferência construtiva ou destrutiva. Os feixes difratados são detectados quando as reflexões produzem uma interferência construtiva.

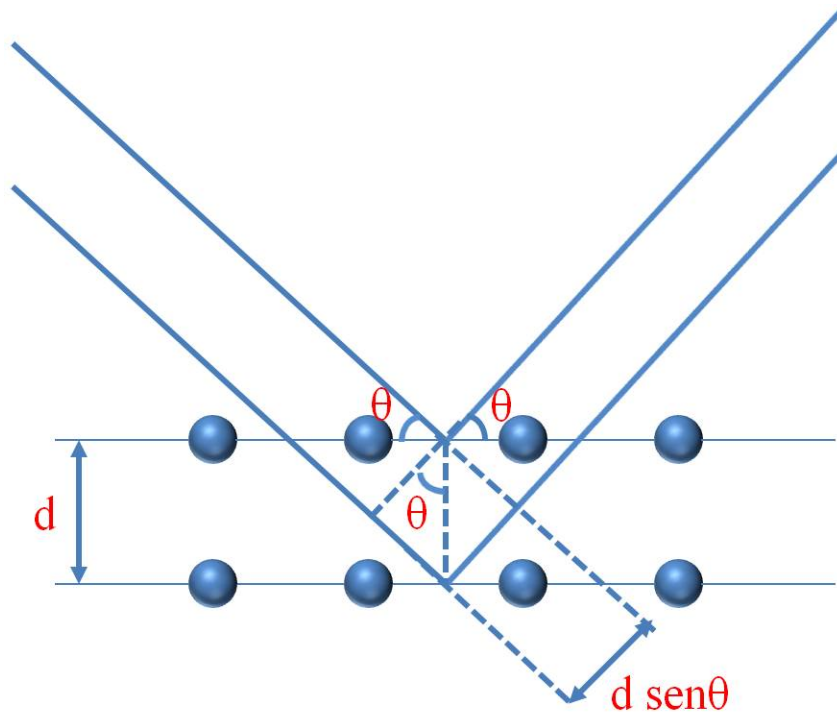


Figura 5.2: Reflexão de dois feixes de raio x entre dois planos atômicos no interior de um material cristalino.

A lei de Bragg nos diz que a interferência construtiva dos feixes difratados ocorre quando a diferença de trajetória ($2d \sin \theta$) for um número inteiro n do comprimento de onda λ da radiação incidente, de forma que o feixe de raio x detectado tem que obedecer a seguinte relação [76]

$$2d \sin \theta = n \lambda, \quad (5.1)$$

a relação 5.1 é válida para comprimento de ondas que satisfaçam a condição $\lambda \leq 2d$. Um padrão de difração de raios x é obtido pela medida da intensidade da radiação espalhada em função do ângulo, de forma que se observa um forte pico de intensidade nos ângulos de espalhamentos que satisfazem a relação de Bragg 5.1. Para materiais com célula unitária cúbica temos que o parâmetro de rede (a) pode ser encontrado a partir da distância interplanar da seguinte forma [76]

$$a = d_{hkl} \sqrt{h^2 + k^2 + l^2}, \quad (5.2)$$

onde h, k e l são os índices de Miller e d_{hkl} é a distância interplanar do conjunto de planos (hkl). O padrão de difração de um material policristalino pode ter muitos picos distintos, cada um correspondendo a difração de raios x por um conjunto de planos (hkl).

A difração de raios x é uma técnica muito usada para caracterizar a estrutura cristalina de sólidos, pois, em geral, as distâncias interplanares d em sólidos cristalinos são da ordem de angstrom, que é a mesma ordem do comprimento de onda dos raios x. A geometria mais comum para análise de difração de raios x é chamada de Bragg-Brentano, na qual a amostra é fixada em um eixo do difratômetro enquanto que a fonte de raio x é girada em um ângulo θ e o detector varia em um ângulo 2θ (ver figura 5.3 a)) [76]. Uma outra geometria bastante usada para análise de difração de raios x em filmes finos é a geometria de incidência rasante, na qual a fonte é fixada em um ângulo α e o detector varia independentemente em um ângulo 2θ (ver figura 5.3 b)) [77]. A geometria de incidência rasante permite controlar a penetração de raios x na amostra, dessa forma, adotamos essa geometria na tentativa de reduzir o sinal do substrato.

Analisando a lei de Bragg observamos que a radiação espalhada em um cristal infinito sofre interferência construtiva em valores discretos de θ , de forma que os picos de intensidade no padrão de difração de um cristal infinito devem ser funções deltas (Figura 5.4 a)), enquanto que para um cristal finito os picos de difração são alargados em uma faixa de ângulo (Figura 5.4 b)). Porém, o espectro de difração de raios x de um material amorfo mostra picos consideravelmente mais alargados, os quais se encontram centrados em ângulos correspondentes a picos de ligas cristalinas com mesma composição do

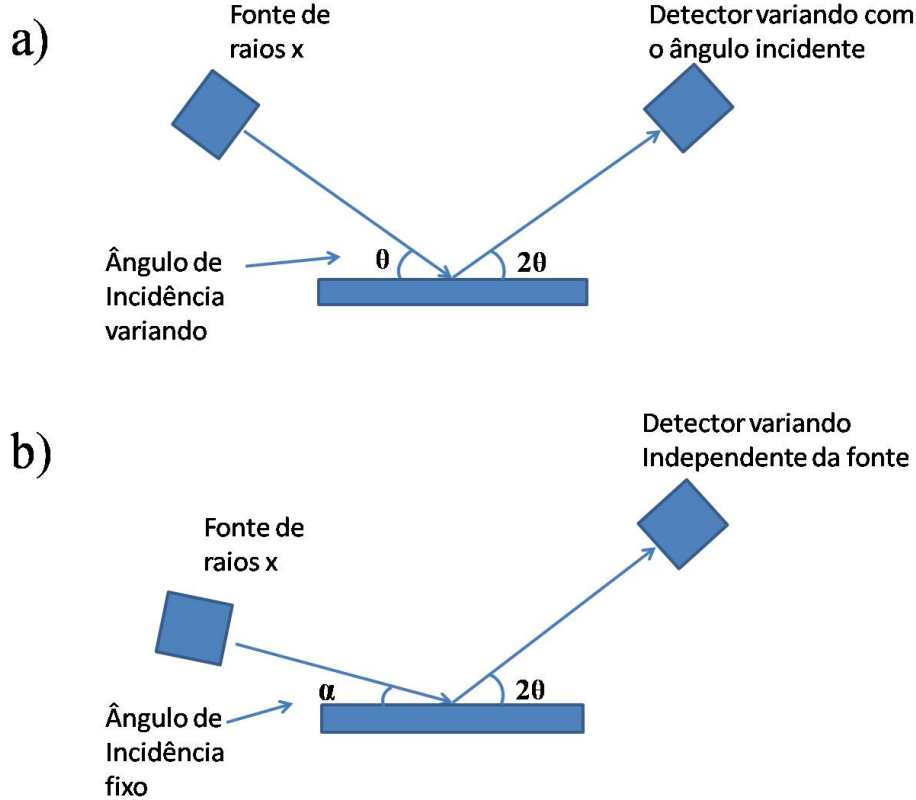


Figura 5.3: Geometrias de análise de difração de raios x. (a) Geometria Bragg-Brentano e (b) incidência rasante.

amorfo (Figura 5.4 c)). Portanto uma restrição espacial da estrutura cristalina produz um alargamento nos picos de difração [76].

O padrão de difração de raios x de ligas nanocristalinas apresenta picos menos alargados que os encontrados em materiais amorfos com mesma composição. A estrutura de grãos nanométricos promove um alargamento maior do que os observados em um cristal finito de mesma composição. O efeito do tamanho de grão na largura de linha do padrão de difração B_G pode ser obtida através da seguinte relação

$$B_G = \frac{0.9\lambda}{\xi \cos \theta}, \quad (5.3)$$

onde B_G é largura a meia altura do pico de difração em radianos, θ é o ângulo de incidência do feixe de raios x. A equação 5.3 é a conhecida fórmula de Scherrer-Debye [76] e é válida para amostras com tamanho de grão ξ abaixo de 100nm.

Em um espectro de difração de raios-x temos que o alargamento (B_G) devido ao

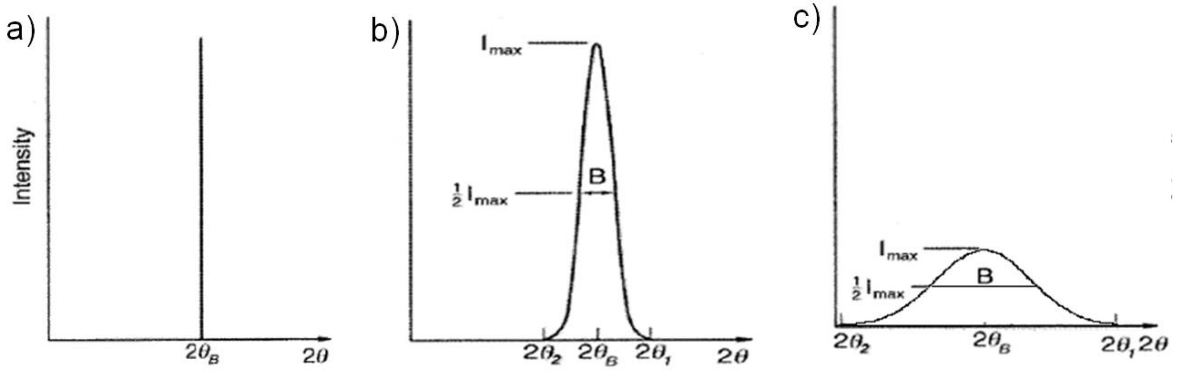


Figura 5.4: Efeito do alargamento provocado pelo estreitamento da estrutura cristalina um cristal. (a) Pico de Bragg para um cristal infinito e (b) um cristal finito e (c) um material amorfo

tamanho de grão é somente uma das contribuições ao alargamento experimental (B_{Ex}) observado nos picos de difração [76]. Em geral, o aparato de difração de raios x induz um alargamento (B_I), que se deve a fatores como divergência do feixe incidente, largura do feixe incidente, alinhamento mecânico etc. Uma forma de obter a contribuição instrumental (B_I) para o alargamento experimental do pico de difração (B_{Ex}) é através do padrão de difração de uma amostra padrão, no qual somente a componente instrumental (B_I) é apreciável. Tal amostra padrão tem que ter um tamanho de grão (ξ) relativamente grande de forma que a contribuição B_G se torna desprezível(ver fórmula 5.3).

O alargamento experimental (B_{Ex}) observado no espectro de difração de um material policristalino possui outras contribuições, além do alargamento devido ao tamanho de grão (B_G) e ao aparato instrumental (B_I). Uma outra fonte de alargamento se deve a microdeformação da estrutura granular da amostra (Fig. 5.5 c)), tais deformações não uniformes podem surgir de uma tensão não uniforme sobre a amostra [76] . Assim, o alargamento experimental (B_{Ex}) de uma amostra policristalina sob a influência de uma tensão não uniforme deve ser o resultado de três mecanismos de alargamento: o alargamento devido ao tamanho de grão(B_G), ao aparato instrumental (B_I) e à microdeformação da estrutura granular (B_S). Uma tensão uniforme sobre a amostra também pode alterar espectro de difração, promovendo um deslocamento das linhas de difração. A tensão uniforme pode aumentar o espaçamento entre os planos cristalinos de cada grão, e conseqüentemente aumentar o parâmetro de rede, de forma que as linhas de difração se

deslocam para ângulos menores (Fig. 5.5 b)).

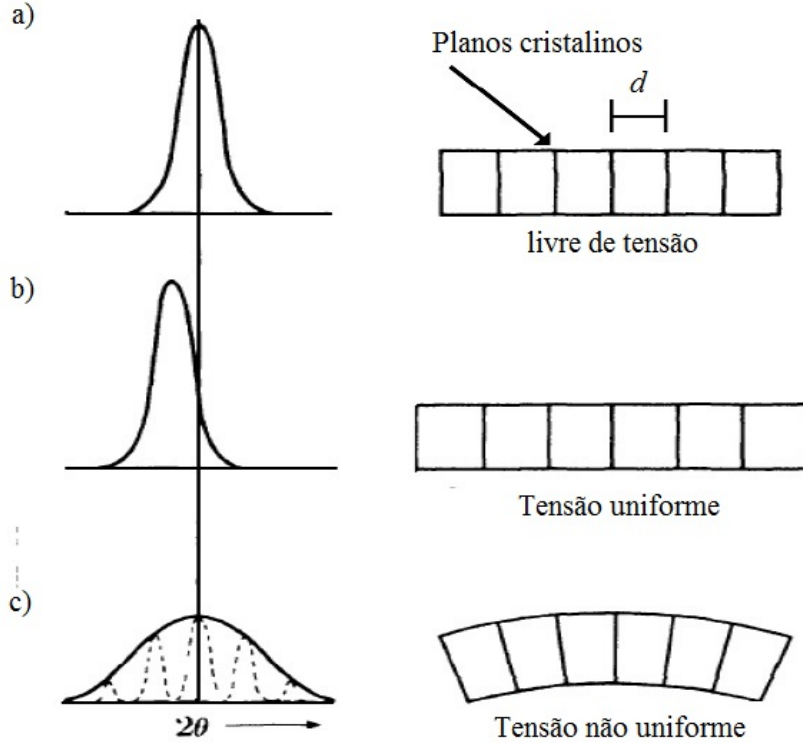


Figura 5.5: Efeito da tensão sobre os picos de difração, b) uma tensão uniforme desloca os picos e c) uma tensão não uniforme promove um alargamento dos picos de difração

Nessa tese separamos as contribuições do alargamento instrumental (B_I), do tamanho de grão (B_G) e da microdeformação (B_S) a partir do ajuste de um único pico de difração, conforme a referência [77], que é realizado por uma função Voigt. Nessa abordagem considera-se que o alargamento do perfil de difração de raios x medido (B_{Ex}) é uma convolução entre o alargamento induzido pelo aparato instrumental (B_I) e o alargamento estrutural (B_{Es}), de forma que o alargamento B_{Ex} é corrigido da seguinte forma

$$\begin{aligned} B_{Es}^L &= B_{Ex}^L - B_I^L \\ B_{Es}^G &= \sqrt{(B_{Ex}^G)^2 - (B_I^G)^2}, \end{aligned} \quad (5.4)$$

onde os índices L e G são as contribuições Lorentzianas e Gaussianas do ajuste da função Voigt. Os alargamentos instrumentais $B_I^{L,G}$ são obtidos pelo ajuste do espectro de difração de uma amostra padrão de hexaboreto de Lantânio, que tem grãos suficientemente

grandes para que não contribua para o alargamento B_G e com nível de deformações não uniformes desprezível para contribuir com B_S . As contribuições Lorentzianas e Gaussianas do alargamento estrutural $B_{Es}^{L,G}$ determinam o tamanho de grão ξ e a microdeformação ϵ da seguinte forma

$$\begin{aligned}\xi &= \frac{\lambda}{B_{Es}^L \cos\theta} \\ \epsilon &= \frac{B_{Es}^G}{4 \tan\theta},\end{aligned}\tag{5.5}$$

onde θ é o ângulo no centro do pico. Os alargamento $B_I^{L,G}$ e $B_{Es}^{L,G}$ são dados em radianos. Nessa tese utilizamos a fórmula 5.5 para obter o tamanho de grão e o nível de stress não uniforme nas amostras.

5.3 Caracterização Magnética

As amostras foram analisadas no magnetômetro de amostra vibrante (VSM) e num sistema de ressonância ferromagnética de banda larga com um analisador de rede vetorial (VNA-FMR) do laboratório de magnetometria aplicada do CBPF. Foram adotados dois sistemas diferentes de geração de campo magnético. No VNA-FMR foi utilizado um eletroímã, com campos máximos de ± 800 Oe, acoplado a um sensor de campo com resolução de 1 Oe, enquanto que no VSM foi utilizado uma bobina de Helmholtz com resolução de 0.1 Oe e campos máximos de ± 300 Oe.

5.3.1 Magnetômetro de Amostra Vibrante

O magnetômetro de amostra vibrante (VSM) permite determinar a curva de magnetização (M vs H) de uma amostra magnética, tal sistema foi desenvolvido por Foner em 1960 [78]. No VSM a amostra magnética é sujeita a uma vibração mecânica e é magnetizada por um campo magnético uniforme. A amplitude de vibração é mantida constante em relação às bobinas sensores, as quais são mantidas em uma geometria fixa. O movimento de vibração da amostra magnética produz uma alteração do fluxo magnético que induz uma tensão alternada nas bobinas sensores. A voltagem captada pelas bobinas sensores é diretamente proporcional à magnetização da amostra.

O VSM do laboratório de magnetometria aplicada possui bobinas sensores em uma configuração de dois pares de bobinas ligadas em oposição de fase, que foram posicionadas no centro das bobinas de Helmholtz (ver Figura 5.6). O sinal de referência do Lock-in foi utilizado para gerar a vibração do Drive. O sinal medido nas bobinas sensores é pré-amplificado por um filtro passa banda (30Hz a 100 Hz) e é captado pelo Lock-in, o qual mede o sinal em uma determinada fase e frequência relacionado com o sinal de referência. O Lock-in é conectado a um computador (PC) através de uma interface GPIB. Um programa em linguagem Python controla os instrumentos.

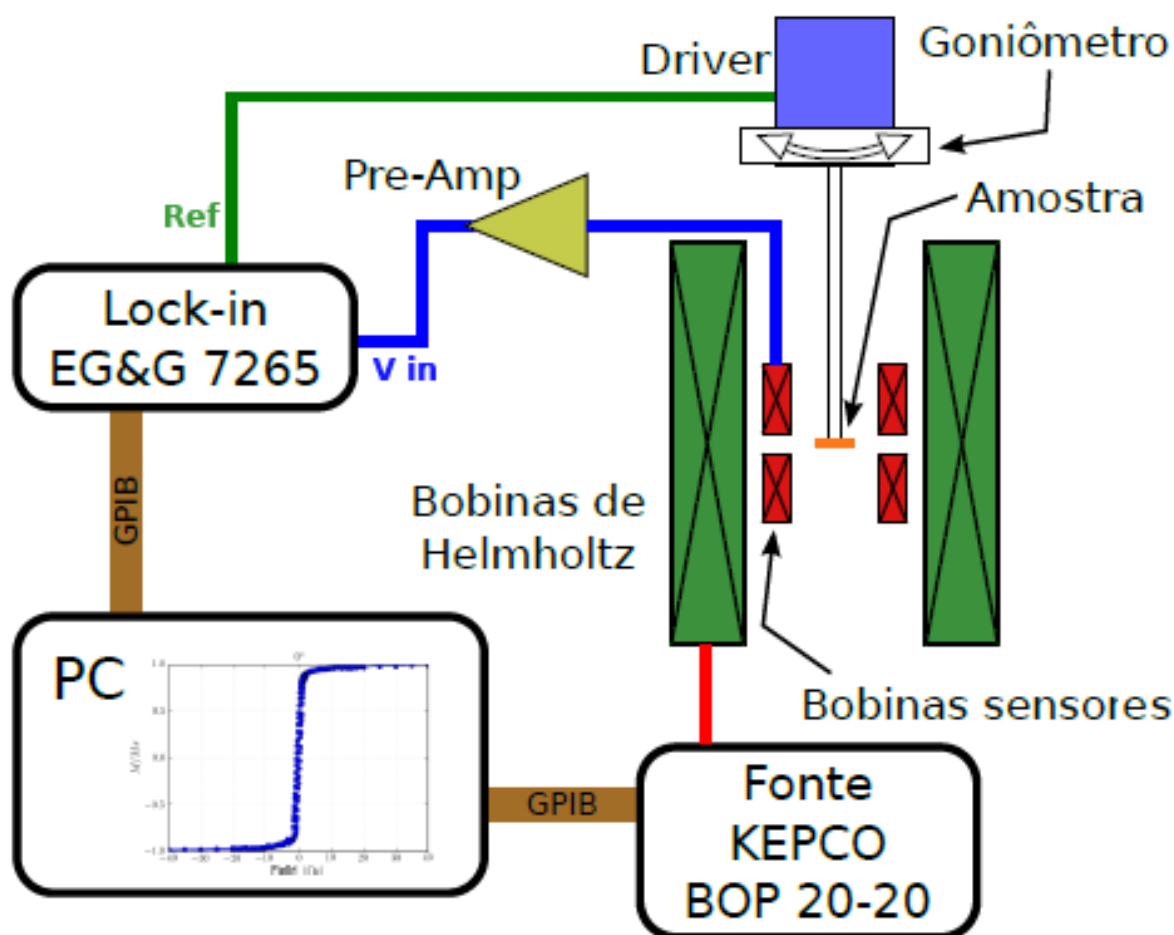


Figura 5.6: Desenho esquemático do magnetômetro de amostra vibrante do laboratório de magnetometria aplicada do CBPF, figura retirada da referência [8].

A medida da curva de magnetização, nas amostras com composição nominal $\text{Fe}_{73.5}\text{Nb}_3\text{Cu}_1\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$, foi realizada com o campo magnético aplicado no plano da amostra longitu-

dinalmente (0°) e perpendicularmente (90°) a direção definida pela aplicação do campo magnético durante a deposição dos filmes. A partir das curvas de magnetização foi obtido a magnetização de saturação, os campos coercivos (H_C) e de anisotropia (H_A) das amostras. O campo de anisotropia foi determinado a partir da distribuição do campo de anisotropia ($P(H)$), que foi obtida conforme a referência [79]. Nesse método $P(H_A)$ é deduzido a partir do ramo entre a saturação e a remanência na curva de magnetização a 90° e é dado por

$$P(H) = -H \frac{d^2 m}{dH^2}, \quad (5.6)$$

onde $m = M/M_s$ é a magnetização normalizada pela sua saturação e H é o campo magnético aplicado na medida da curva de magnetização. O campo de anisotropia (H_A) é definido como o campo magnético em que a curva $P(H)$ exibe um valor máximo.

5.3.2 Ressonância Ferromagnética de banda larga (VNA-FMR)

A dinâmica da magnetização foi estudada por experimentos de ressonância ferromagnética em banda larga com um analisador de rede vetorial (VNA-FMR). Esta técnica envolve medir a absorção de potência pela amostra ferromagnética em uma ampla faixa de frequências de excitação e em função do campo magnético externo DC . As medidas realizadas no analisador de rede vetorial consiste na conversão dos parâmetros elétricos S em potência de absorção de FMR da amostra ferromagnética, de forma a obter curvas de absorção de FMR em função do campo magnético externo numa faixa de frequência.

Nessa tese as medidas de VNA-FMR foram realizadas no Laboratório de Magnetometria Aplicada do CBPF. A excitação de microondas é feita por uma guia de onda coplanar (CPW), onde a amostra é posicionada conforme indicado na figura 5.7 e os contatos nas duas portas da guia são realizados por meio de *microprobes* Cascade microtech. O campo magnético externo DC é fornecido por um eletroímã alimentado por uma fonte KEPCO 20-20 com campos máximos de ± 800 Oe. O sinal é analisado por um analisador de rede vetorial (VNA) Rohdes & Schwarz ZVA24, que pode realizar medições na faixa de frequências de 10 MHz a 24 GHz com uma sensibilidade de -85 dB na medida dos

parâmetros S e uma potência RF de saída de até 18 dBm. Um programa em linguagem Python controla todos os instrumentos.

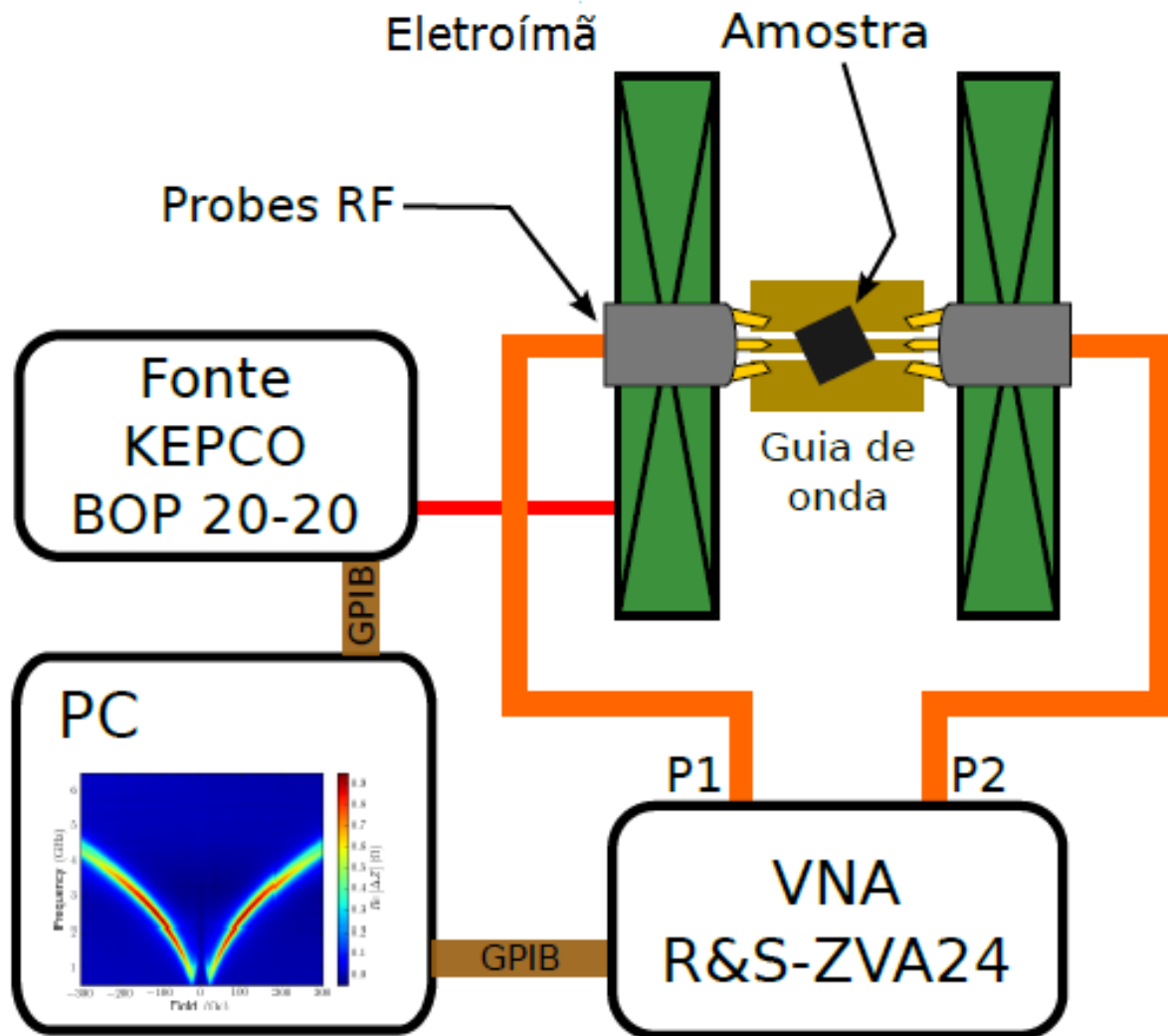


Figura 5.7: Desenho esquemático do sistema de ressonância ferromagnética em banda larga com analisador de rede vetorial do laboratório de magnetometria aplicada do CBPF, figura retirada da referência [9].

Os dados foram analisados através da potência absorvida pela amostra a qual é calculada a partir parâmetros S , que são medidos diretamente pelo VNA e são definidos como as relações entre as ondas incidentes e refletidas em um dispositivo de teste(DUT) [20]. Para obter uma medida correta dos parâmetros S associados ao nosso DUT é necessário levar o plano de referência até os contatos feitos pelas *micro – probes*. Isso pode ser conseguido realizando uma calibração do tipo TOSM (*Thru, open, short, match*). Essa calibração foi realizada utilizando um substrato padrão de impedância do modelo Rohdes

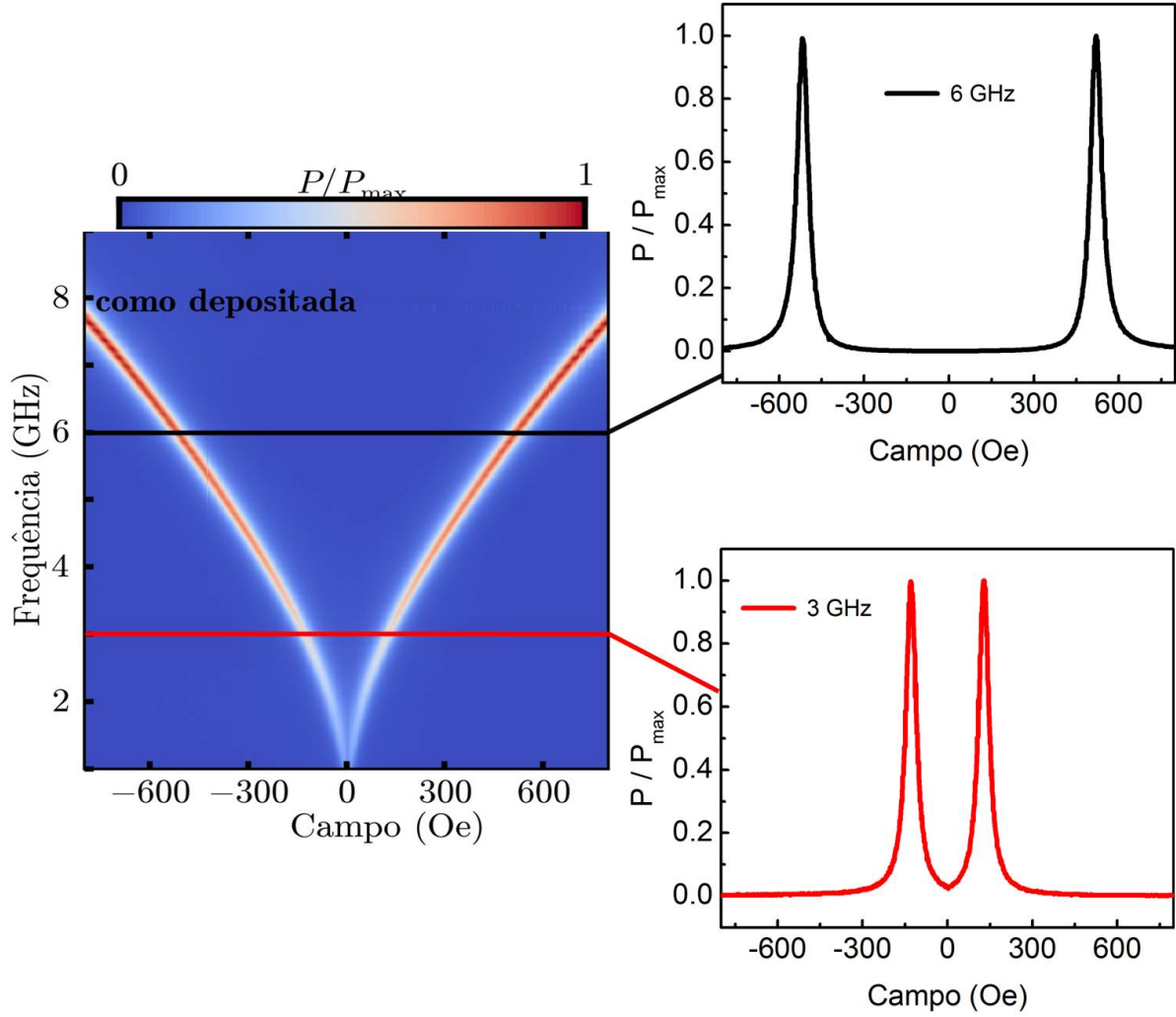


Figura 5.8: Mapa de cor da amostra de 100 nm como depositada com os cortes transversais a 3 GHz e 6 GHz. Esses cortes mostram a medida de absorção de FMR em função do campo para essas frequências

& Schwarz ZVA24. Com isso podemos obter a relação entre a potência perdida (P_{per}) e a potência incidente (P_{in}), que determinam a potência absorvida no conjunto amostra-guia de onda dada por [20]

$$\frac{P_{per}}{P_{in}} = 1 - |S_{21}|^2 - |S_{11}|^2. \quad (5.7)$$

Para obtermos a absorção devido ao processo de FMR temos que separar a absorção devido as perdas da guia de onda. Para isso, é realizado uma medida de referência dos parâmetros S^{ref} com a amostra saturada na direção do campo rf , de modo que o processo de FMR é inibido e somente as perdas da guia de onda são obtidos. Assim a potência de

absorção de FMR (P) é obtida através da seguinte relação

$$P = (1 - |S_{21}^{Med}|^2 - |S_{11}^{Med}|^2) - (1 - |S_{21}^{Ref}|^2 - |S_{11}^{Ref}|^2), \quad (5.8)$$

onde P é dado em unidades arbitrárias, de forma que é conveniente normalizar P pela potência máxima P_{max} . Em uma medida típica de VNA-FMR obtemos um conjunto de valores de P/P_{max} vs. H vs. f representados por um mapa de cor, conforme exemplo mostrado na figura 5.8, onde a cor azul representa o mínimo de P/P_{max} e a cor vermelha representa o máximo de absorção. Os cortes transversais do mapa de cor nos dão o perfil de absorção de FMR em função do campo aplicado, de forma que a largura de linha de FMR em campo (ΔH) é determinada pelo ajuste desses perfis em uma dada frequência excitação f e com o ajuste de uma coleção de frequências de excitação foram determinadas as curvas $\Delta H(f)$ investigadas nessa tese.

Capítulo 6

Resultados Experimentais

Neste capítulo iremos apresentar os resultados da caracterização estrutural, magnética quase estática e dinâmica da magnetização de filmes com composição nominal de $\text{Fe}_{73.5}\text{Nb}_3\text{Cu}_1\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ e espessuras de 100 nm, 200 nm e 500 nm, os quais foram submetidos a um tratamento térmico. Os resultados obtidos são mostrados separadamente nas seções abaixo e interpretados em termos da correlação entre as propriedades estruturais e magnéticas dos filmes. Tais propriedades estruturais são obtidas por difração de raios-x na geometria de incidência rasante (GIXRD), enquanto que as propriedades magnéticas são obtidas por análise de curvas de histerese e medidas de VNA-FMR.

Na seção de caracterização estrutural (6.1) serão mostrados os resultados relacionados à análise do padrão de difração de raios-x das amostras como depositadas e recozidas sob diferentes temperaturas. A partir desses padrões de difração obtém-se o comportamento dos parâmetros estruturais em função da temperatura de tratamento térmico. Nessa seção, mostramos a evolução da microdeformação estrutural (ϵ), do tamanho de grão (ξ) e do parâmetro de rede (a) com a temperatura de tratamento térmico para cada espessura de filme.

Na seção de caracterização estática da magnetização (6.2) investigamos o comportamento das propriedades magnéticas quase estática das amostras com a temperatura de tratamento térmico, obtidos a partir da curva de histerese. Analisamos o campo coercivo (H_c), o campo de anisotropia (H_A) e a magnetização de saturação (M_s) em função da temperatura de tratamento térmico para cada espessura de filme.

Na seção de caracterização da dinâmica da magnetização (6.3) serão mostrados os resultados da investigação da dinâmica da magnetização por medidas de VNA-FMR das amostras como depositada e com tratamento térmico. Observamos o efeito do tratamento térmico e da espessura do filme na relação dispersão dos modos de ressonância e analisamos os processos de relaxação e o aumento da largura de linha de FMR. As condições de ressonância foram determinadas pela relação de dispersão de Kittel (f_r vs H) e os processos de relaxação e alargamento da largura de linha de FMR foram determinados a partir do comportamento da largura de linha de FMR em função da frequência de excitação ($\Delta H(f)$).

6.1 Caracterização estrutural

A caracterização estrutural foi realizada por análise difração de raios-x na geometria de incidência rasante (GIXRD) para todas as amostras. Na próxima subseção são mostrados os perfis de GIXRD obtidos em função da temperatura de tratamento térmico e da espessura dos filmes. Para as amostras sem tratamento e com baixas temperaturas de recozimento observamos padrões com um pico largo de difração, compatíveis com os de um material com grãos da ordem de poucos nanômetros. Com aumento da temperatura de tratamento térmico observamos o surgimento de um segundo pico estreito, que corresponde a uma fase com grãos maiores, porém ainda da ordem de nanômetros, como podemos ver na figura 6.1.

Os picos de difração foram ajustados usando uma função Voigt, de forma que o tamanho de grão (ξ) e a microdeformação (ϵ) foram obtidos a partir das contribuições Lorentzianas e Gaussianas desse ajuste, conforme descrito na seção 5.2 do capítulo 5. Os parâmetros de rede foram obtidos a partir da lei de Bragg e observamos que os picos de difração correspondem ao plano (110) da fase α do ferro. Observamos que tanto uma deformação uniforme quanto a adição de silício podem alterar o parâmetro de rede. Na próxima subseção discutimos o efeito do tratamento térmico no tamanho de grão (ξ), na microdeformação (ϵ) e no parâmetro de rede (a) para cada espessura de filme.

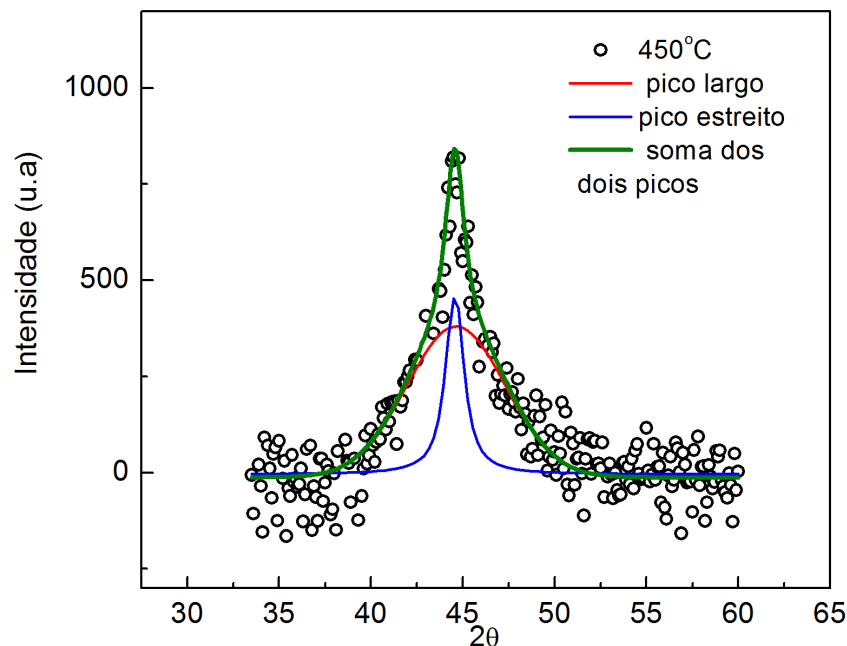


Figura 6.1: Padrão de difração obtido por incidência rasante do filme de 100 nm tratado a temperatura de 450° C. Tal amostra exibe dois picos de difração que correspondem a duas fases e observa-se a evolução de uma fase α -Fe com grão mais largos.

6.1.1 Difrátogramas de raio x em função do tratamento

A evolução dos padrões de difração com a temperatura do tratamento térmico (T_A) é mostrada nas figuras 6.2, 6.3 e 6.4, onde observamos essa evolução, respectivamente, para espessuras de 100 nm, 200 nm e 500 nm. O tamanho de grão, a microdeformação e o parâmetro de rede foram obtidos por ajustes com uma função Voigt. Os resultados são mostrados nas figuras 6.2, 6.3 e 6.4, que exibem medidas obtidas para ângulos compreendidos entre 30° e 60°. Todos os padrões apresentam um pico largo de difração centrado em torno do ângulo $2\theta \approx 44.61^\circ$, que corresponde ao plano de difração (110) da fase α do ferro. A partir de certas temperaturas observamos o aparecimento de uma segunda fase com grãos mais largos de α -Fe, que podem conter silício. Esta fase foi identificada através do ajuste de um segundo pico de difração mais estreito.

Os padrões de difração das amostras com espessura de 100 nm tratadas a diferentes temperaturas são mostrados na figura 6.2, onde observamos os padrões das amostras como depositada e recozidas nas temperaturas de 100° C a 540° C. A partir de 450° C, o espectro de difração passa a ser melhor ajustado através de duas funções Voigt, conforme o exemplo da figura 6.1. A partir desses ajustes observamos que os dois picos estão

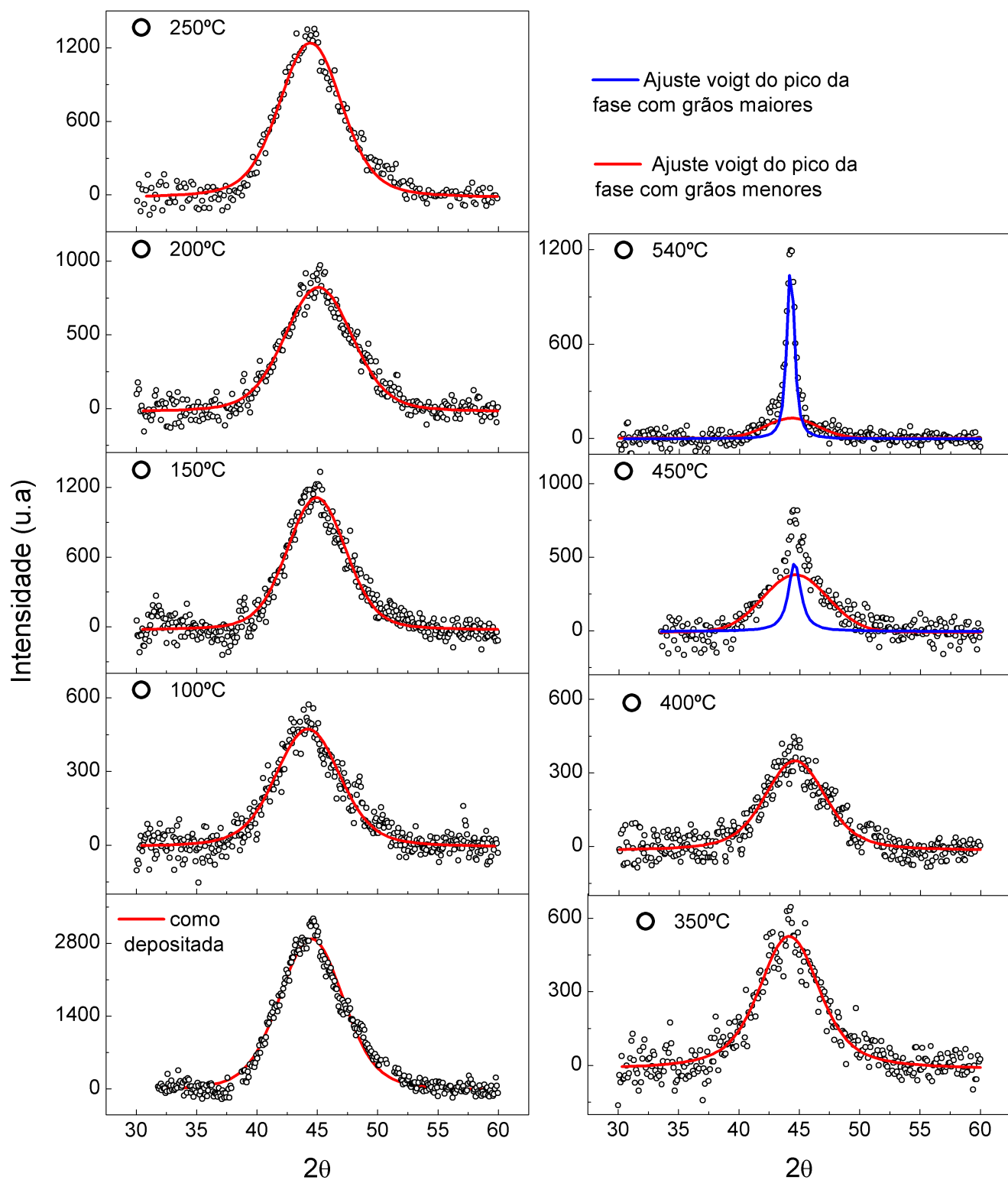


Figura 6.2: Padrões de difração obtidos por incidência rasante dos filmes de 100 nm com e sem tratamento térmico. As amostras tratadas com $T_A \leq 400^\circ\text{C}$ possuem um pico largo em torno de $2\theta \approx 44.61^\circ$ correspondendo ao pico (110) da fase $\alpha\text{-Fe}$. A partir de $T_A \geq 450^\circ\text{C}$ observa-se a evolução de uma fase com grãos mais largos.

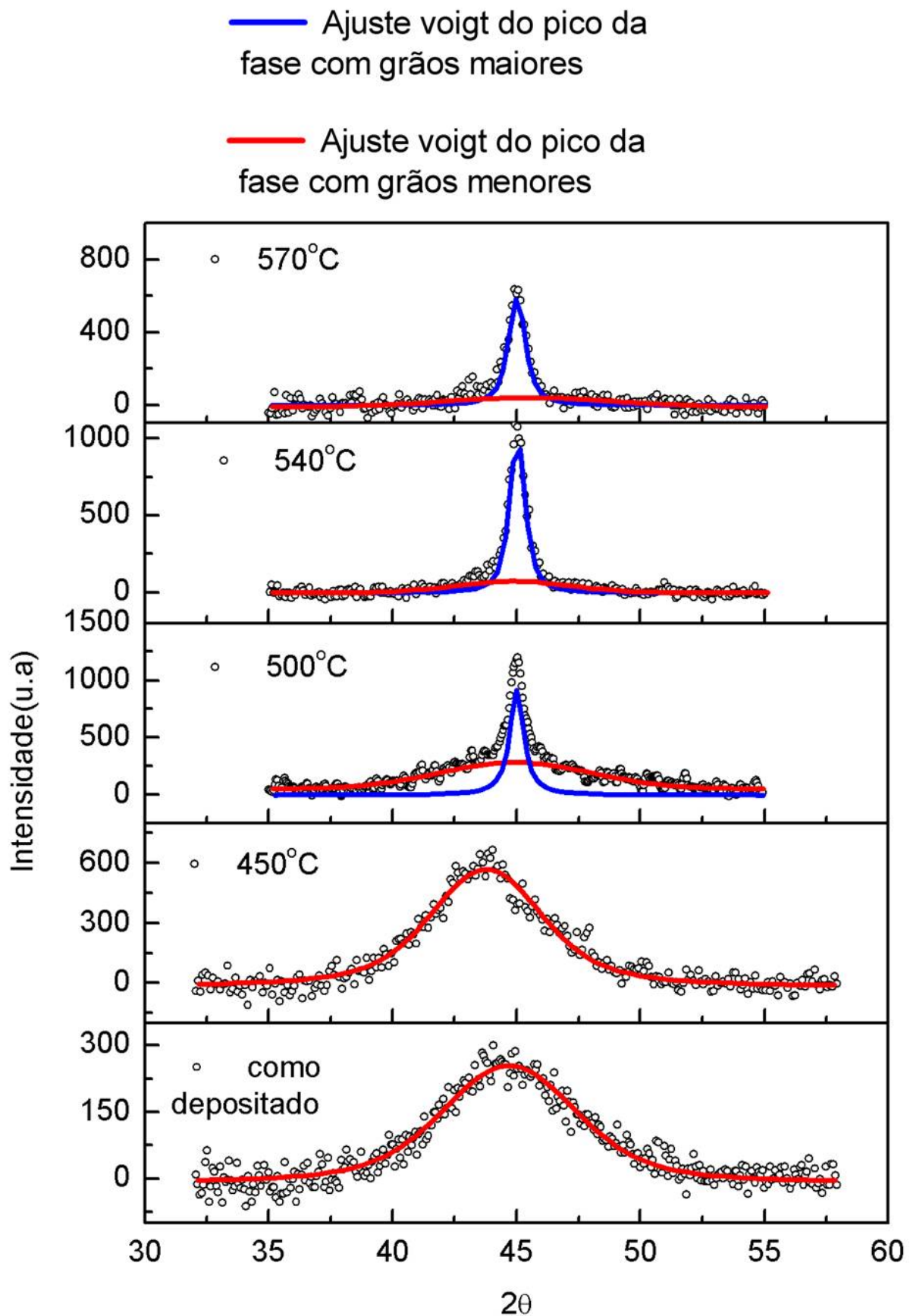


Figura 6.3: Padrões de difração obtidos por incidência rasante dos filmes de 200 nm com e sem tratamento térmico. As amostras tratadas com $T_A \leq 450^\circ\text{C}$ possuem um pico largo em torno de $2\theta \approx 44.61^\circ$ correspondendo ao pico (110) da fase $\alpha\text{-Fe}$. Para $T_A \geq 500^\circ\text{C}$ observa-se a evolução de uma fase $\alpha\text{-Fe}$ com grãos mais largos.

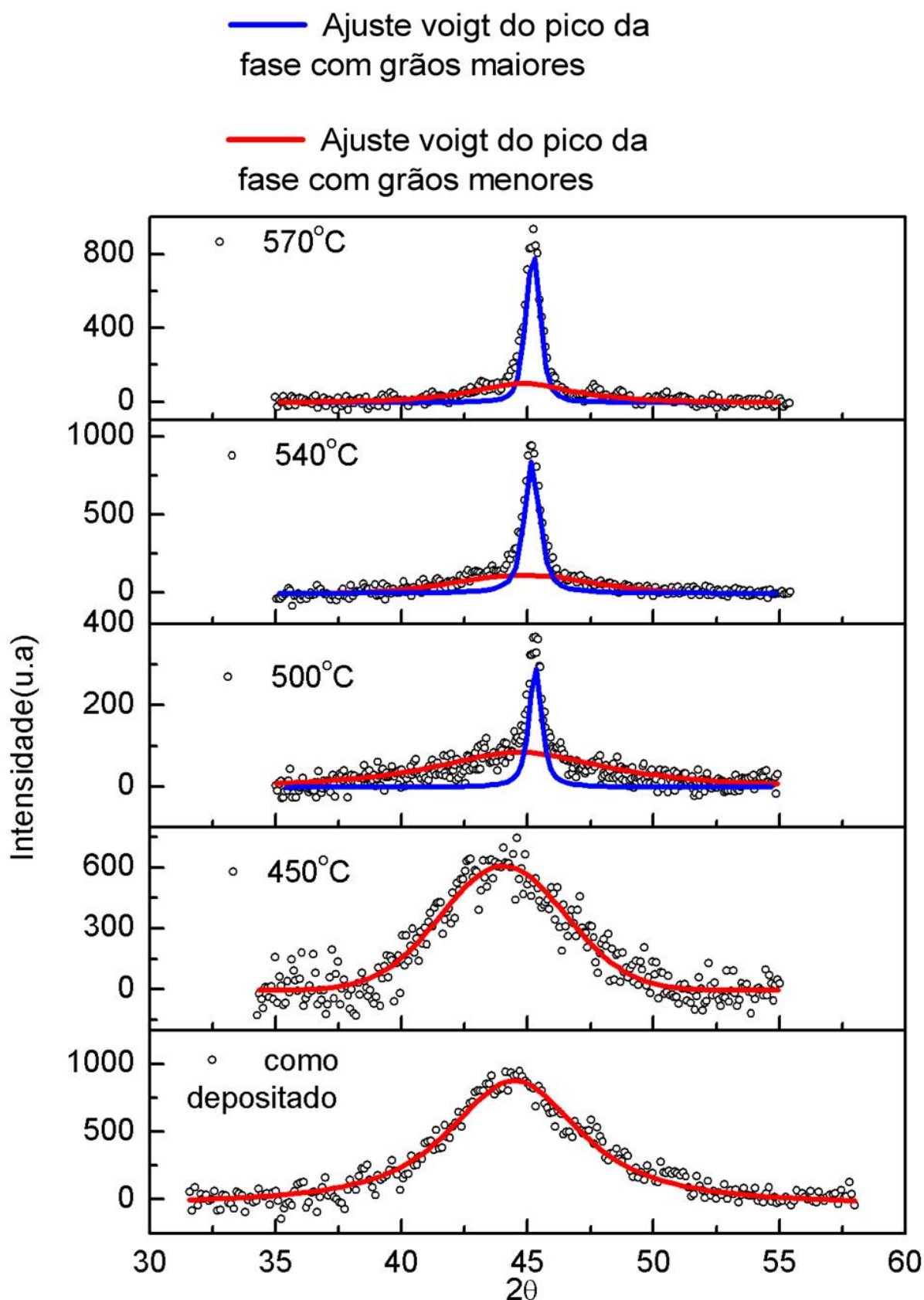


Figura 6.4: Padrões de difração obtidos por incidência rasante dos filmes de 500 nm com e sem tratamento térmico. As amostras tratadas com $T_A \leq 450^\circ\text{C}$ possuem um pico largo em torno de $2\theta \approx 44.61^\circ$ correspondendo ao pico (110) da fase $\alpha\text{-Fe}$. Para $T_A \geq 500^\circ\text{C}$ observa-se a evolução de uma fase $\alpha\text{-Fe}$ com grãos mais largos.

associados a fase α -Fe, porém com tamanhos de grão, deformações e parâmetros de rede diferentes. Um outro fato observado é que o pico de difração mais estreito passa a ser predominante com o aumento da temperatura de tratamento, como mostrado no padrão da amostra tratada a 540° C. Tal efeito indica que há um aumento da fração de volume cristalizado com o aumento da temperatura de tratamento térmico.

Os filmes com espessuras de 200 nm e 500 nm foram tratados nas temperaturas de 450° C a 570° C com a intenção de obter amostras com duas fases. Para essas espessuras, observamos o surgimento de um segundo pico a partir da temperatura de recozimento de 500° C, como mostram as figuras 6.3 e 6.4. Também observamos que há um aumento da fração de volume cristalizado com o aumento da temperatura de tratamento térmico. A partir dos ajustes deduzimos que provavelmente os dois picos estão associados a fase α do Ferro. Porém, observamos uma variação do parâmetro de rede com o tratamento térmico que pode estar associado à agregação de silício na fase α -Fe ou a uma deformação uniforme causada por uma tensão no plano dos filme, que pode ser gerada devido à diferença de expansão térmica entre o filme e o substrato.

Parâmetros estruturais como o tamanho de grão, a microdeformação e as fases presente na amostra foram obtidos a partir dos ajustes observados nas figuras 6.2, 6.3 e 6.4. A evolução desses parâmetros com o tratamento térmico é mostrada e discutida na próxima seção em termos das propriedades estruturais esperadas para filmes finos com composição de $\text{Fe}_{73.5}\text{Nb}_3\text{Cu}_1\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$.

6.1.2 Parâmetros estruturais em função do tratamento

A série de difratogramas das amostras de 100 nm, 200 nm e 500 nm exibem uma evolução da largura do pico de difração, da posição dos pico e o surgimento de um segundo pico de difração com o tratamento térmico. Estes efeitos estão associados à evolução do tamanho de grão (ξ), da microdeformação (ϵ), do parâmetro de rede (a) e a formação de uma segunda fase com o tratamento térmico.

O tamanho de grão, a microdeformação e o aparato instrumental contribuem para o alargamento experimental (B_{Ex}) do pico de difração, mas podemos separar essas contribuições através do ajuste de um único pico de difração, conforme a referência [77] já

discutida na seção 5.2.1. Para obter o alargamento estrutural (B_{Es}) devido ao tamanho de grão e à microdeformação, foi realizado uma medida do alargamento instrumental (B_I) através do ajuste do pico de difração de uma amostra padrão de LaB_6 , conforme mostra a figura 6.5. Assim, o alargamento medido (B_{Ex}) foi corrigido conforme as equações 5.4 do capítulo 5 e, a partir das equações 5.5, foi obtido o tamanho de grão e a microdeformação para todas as amostras.

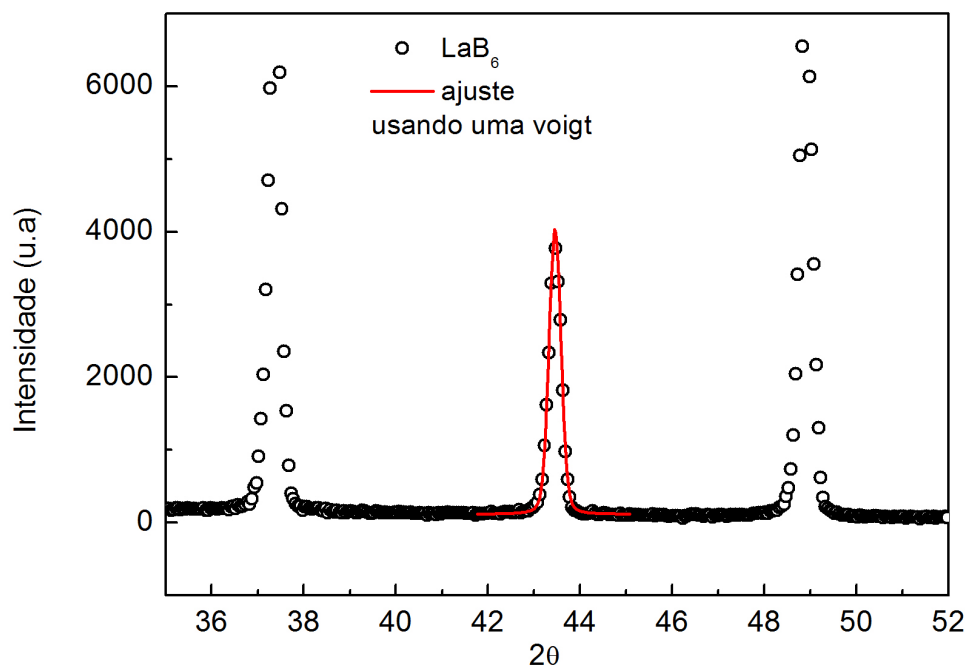


Figura 6.5: Padrão de difração obtido por incidência rasante de uma amostra de LaB_6 , onde foi ajustado o pico de difração mais próximo de $2\theta = 44.61^\circ$ para se obter a contribuição instrumental da largura de linha. O ajuste foi realizado nesse ângulo porque o alargamento instrumental tende a variar com ângulo e dessa forma é mais preciso obter o alargamento num ângulo próximo da medida experimental.

As mudanças dos parâmetros estruturais com a temperatura de tratamento térmico (T_A) são expostas nas figuras 6.6, 6.7 e 6.8, para as amostras de 100 nm, 200 nm e 500 nm. Os parâmetros estruturais associados à segunda fase, que possui grãos maiores, estão representados em vermelho. No caso das amostras de 100 nm, ver figura 6.6, observamos que a amostra como depositada apresenta um tamanho de grão de $\xi = 5$ nm e com o tratamento térmico o tamanho de grão decresce para $\xi = 2.8$ nm a $T_A = 350^\circ\text{C}$. Enquanto que a partir de $T_A = 450^\circ\text{C}$ observamos o surgimento de uma segunda fase, relacionada a um pico mais estreito, com tamanho de grão de $\xi = 8$ nm, enquanto a fase com o pico mais largo possui $\xi = 3$ nm. Para $T_A = 540^\circ\text{C}$ observamos um aumento do tamanho de

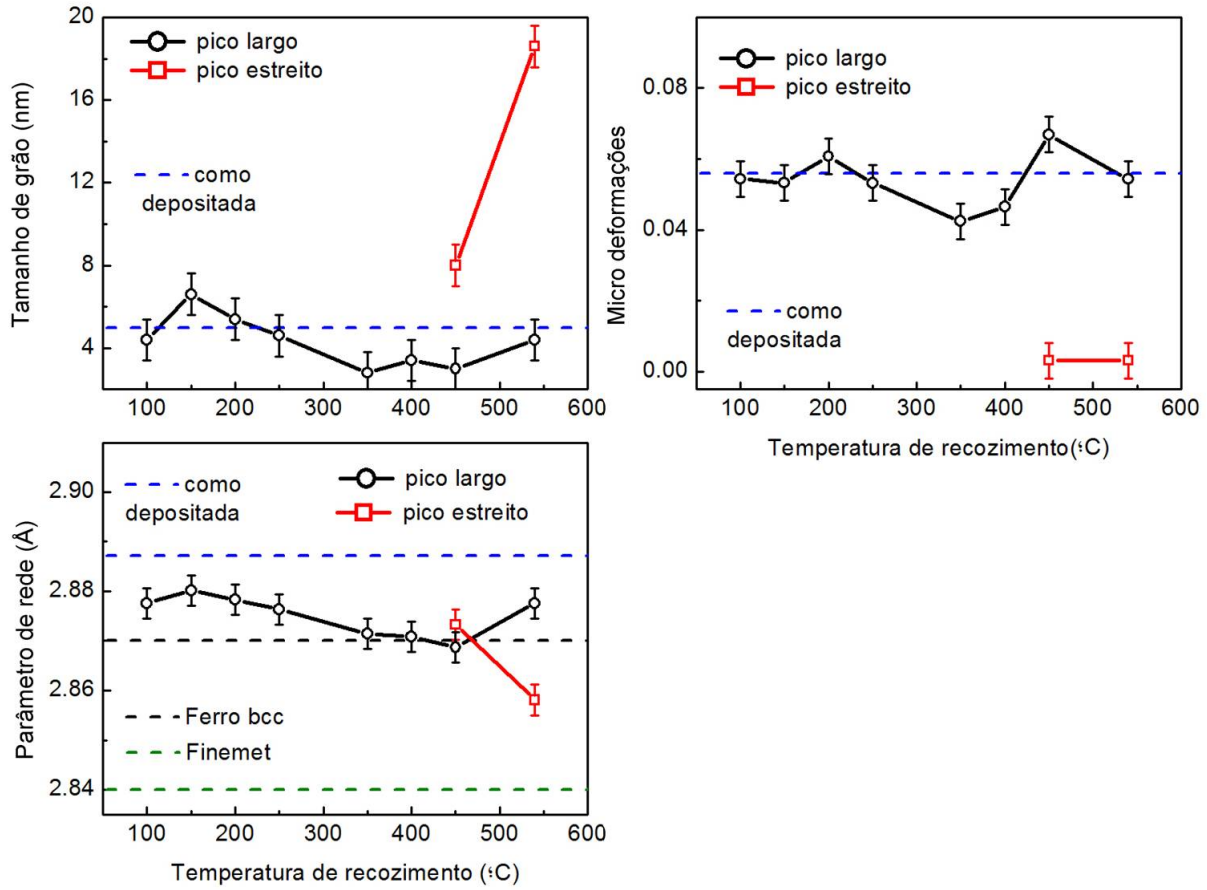


Figura 6.6: Propriedades estruturais obtidas a partir do padrão de difração de raios-x das amostras de 100nm em função da temperatura de recozimento

grão de ambas as fases, onde a fase mais cristalina possui $\xi = 18.6$ nm e a fase mais amorfa possui $\xi = 4.4$ nm, aproximadamente igual a amostra como depositada. O decréscimo do tamanho de grão em $T_A = 350$ °C está relacionado com o início da nucleação de pequenos grãos, que diminuem o tamanho de grão médio [80] e o aumento do tamanho de grão e o surgimento da segunda fase indica o início do processo de cristalização.

A amostra como depositada com espessura de 100 nm apresenta uma microdeformação de $\epsilon = 5.6 \times 10^{-2}$, ver figura 6.6, que decresce para $\epsilon = 4.2 \times 10^{-2}$ a $T_A = 350$ °C. E com o aumento da temperatura de tratamento para $T_A = 450$ °C observamos que a segunda fase, com $\xi = 8$ nm, surge com uma microdeformação de $\epsilon = 3.1 \times 10^{-3}$ enquanto que a fase com pequenos grãos de $\xi = 3$ nm possui uma microdeformação de $\epsilon = 6.7 \times 10^{-2}$, que é maior do que a observada na amostra como depositada. Para $T_A = 540$ °C observamos que a fase mais cristalina, com $\xi = 18.6$ nm, possui uma microdeformação de $\epsilon = 3.1 \times 10^{-3}$, igual a observada a $T_A = 450$ °C, enquanto que a fase mais amorfa, com $\xi = 3$ nm, passa

a ter uma microdeformação de $\epsilon = 5.4 \times 10^{-2}$ aproximadamente igual a amostra como depositada.

Considerando o comportamento da microdeformação com o recozimento das amostras de 100 nm, ver figura 6.6, temos que a redução da microdeformação a $T_A = 350^\circ\text{C}$ pode ser associada a uma menor influência do stress não uniforme causado pela diferença de expansão térmica entre o substrato e o filme, tal efeito está relacionado com o estado do filme. De forma que para temperaturas próximas a $T_A = 350^\circ\text{C}$ filmes com a composição de $\text{Fe}_{73.5}\text{Nb}_3\text{Cu}_1\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ podem alcançar um estado de líquido super-resfriado que permite que o filme acompanhe a expansão do substrato, conforme [23]. O início da cristalização de uma segunda fase, com $\xi = 8\text{ nm}$, a $T_A = 450^\circ\text{C}$ induz um aumento na microdeformação da fase com pequenos grãos, $\xi = 3\text{ nm}$, tal efeito pode ser associado a formação de vacância e/ou contornos de grãos na fase inicial de cristalização. Contudo, para $T_A = 540^\circ\text{C}$ observa-se que o aumento do grão, para $\xi = 18.6\text{ nm}$, da fase mais cristalina induz uma redução da microdeformação da fase com pequenos grãos, $\xi = 4.4\text{ nm}$, tal efeito se deve a redução das vacâncias e/ou contornos de grão com o aumento do grão [43, 44, 81].

As amostras como depositadas de 100 nm tem um parâmetro de rede $a = 2.89\text{ \AA}$, que é maior do que o parâmetro de rede esperado para um filme a base de Ferro bcc (a fase $\alpha\text{-Fe}$ tem $a = 2.87\text{ \AA}$). Tal efeito está relacionado com uma deformação uniforme residual causado pelo processo de recobrimento. Observamos que o parâmetro de rede decresce para $a = 2.87\text{ \AA}$ com o tratamento térmico até $T_A = 400^\circ\text{C}$, ver figura 6.6, de forma que observamos que essa redução está relacionada com a redução do nível de stress no filme, o qual está associado a uma deformação extensiva pois tende a aumentar o parâmetro de rede da amostra.

Considerando o comportamento do parâmetro de rede das amostras de 100 nm, ver figura 6.6, observamos que o início da cristalização a $T_A = 450^\circ\text{C}$ gera duas fases com parâmetro de rede aproximadamente igual a $a = 2.87\text{ \AA}$. Enquanto que com o aumento da temperatura de tratamento para $T_A = 540^\circ\text{C}$ observa-se um decréscimo do parâmetro de rede da fase mais cristalina para $a = 2.86\text{ \AA}$, provavelmente devido a agregação de silício na fase $\alpha\text{-Fe}$, e na fase mais amorfa observamos um aumento do parâmetro de rede

para $a = 2.88 \text{ \AA}$, devido a uma deformação uniforme causada pelo crescimento do grão da fase mais cristalina. Em resumo observamos uma separação dos parâmetro de rede entre as fases, o que é esperado para filme do tipo Finemet, a partir de $T_A = 540^\circ\text{C}$ para filme de 100 nm. Contudo, não obtivemos um filme de Finemet que deve ser formado por uma fase amorfa a base de $\alpha\text{-Fe}$ (com $a = 2.87 \text{ \AA}$) e uma fase cristalina de $\alpha\text{-Fe}_{0.85}\text{Si}_{0.15}$ (com $a \approx 2.84 \text{ \AA}$).

Os parâmetros estruturais das amostras com espessura de 200 nm é mostrado na figura 6.7. Observamos que a amostra como depositada apresenta um tamanho de grão de $\xi = 3 \text{ nm}$ e com o tratamento térmico a fase menos cristalina (pico mais largo) permanece aproximadamente com mesmo tamanho de grão. A partir de $T_A = 500^\circ\text{C}$ observamos o surgimento de uma segunda fase mais cristalina com tamanho de grão de $\xi = 13.7 \text{ nm}$. Para $T_A = 540^\circ\text{C}$ observamos um aumento do tamanho de grão dessa fase para $\xi = 20.3 \text{ nm}$ e um decréscimo para $\xi = 15.3 \text{ nm}$ a $T_A = 570^\circ\text{C}$. O decréscimo do tamanho de grão em $T_A = 570^\circ\text{C}$ parece estar relacionado com o aumento do nível de stress observados na microdeformação e na variação do parâmetro de rede.

A amostra como depositada com espessura de 200 nm apresenta uma microdeformação de $\epsilon = 5.0 \times 10^{-2}$, ver figura 6.7, enquanto que para $T_A = 450^\circ\text{C}$ observamos um decréscimo para $\epsilon = 4.0 \times 10^{-2}$. Com o aumento da temperatura de tratamento para $T_A = 500^\circ\text{C}$ observamos que a segunda fase, com $\xi = 13.7 \text{ nm}$, surge com uma microdeformação de $\epsilon = 4 \times 10^{-3}$, enquanto que a fase mais amorfa possui uma microdeformação de $\epsilon = 7.6 \times 10^{-2}$, que é maior do que a observada na amostra como depositada. Para $T_A = 540^\circ\text{C}$ observamos que a fase mais cristalina possui uma microdeformação de $\epsilon = 4 \times 10^{-3}$, igual a observada a $T_A = 500^\circ\text{C}$, enquanto que a fase mais amorfa tem uma microdeformação de $\epsilon = 5.7 \times 10^{-2}$. Com aumento da temperatura para $T_A = 570^\circ\text{C}$ observa-se um aumento da microdeformação da fase mais amorfa para $\epsilon = 8.1 \times 10^{-2}$.

O comportamento da microdeformação das amostras de 200 nm, ver figura 6.7, está relacionada com o crescimento de grãos. Com o início da cristalização a $T_A = 500^\circ\text{C}$ observa-se um aumento da microdeformação na fase mais amorfa, causado pela formação de vacâncias e/ou defeito, e o aumento do grão da fase mais cristalina, a $T_A = 540^\circ\text{C}$,

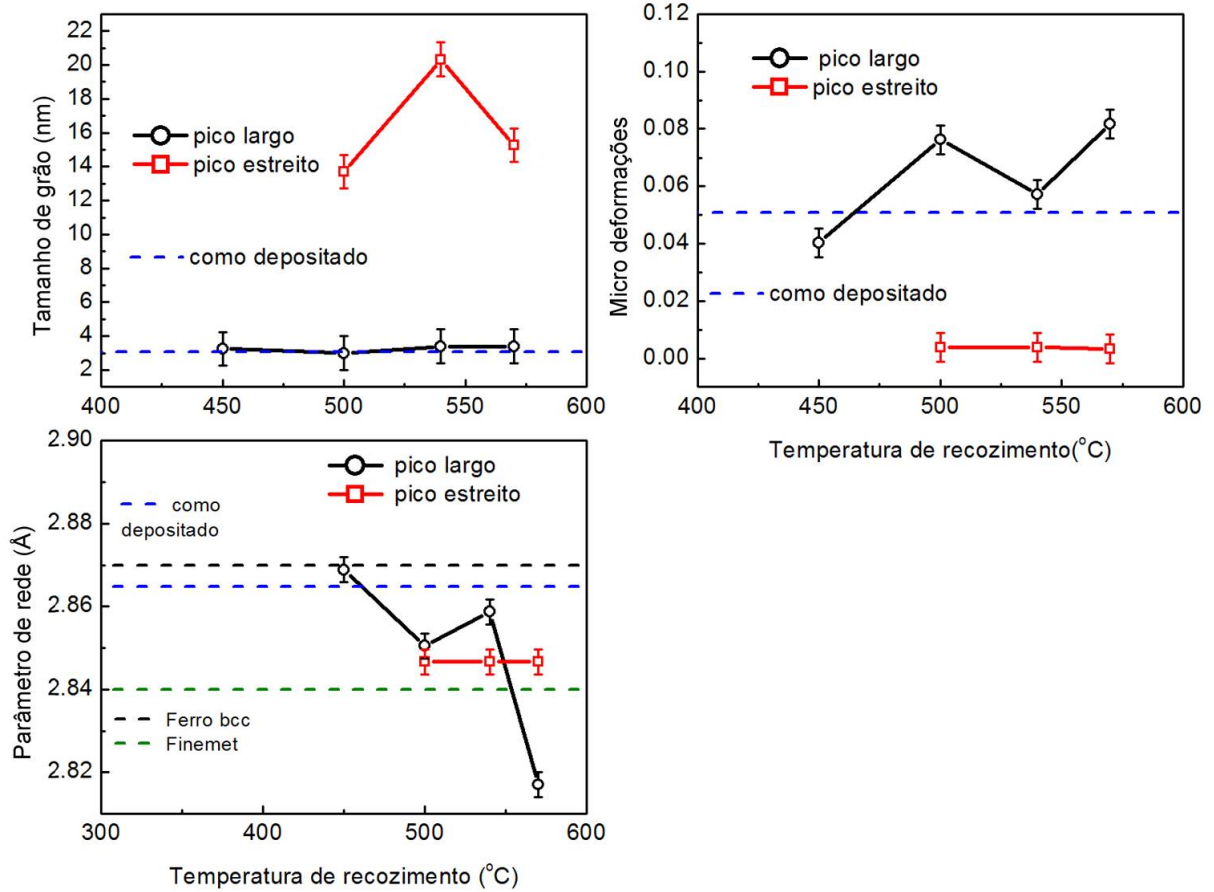


Figura 6.7: Propriedades estruturais obtidas a partir do padrão de difração de raios-x das amostras de 200nm em função da temperatura de recozimento

tende a diminuir a microdeformação observada na fase mais amorfa. Tal efeito pode ser explicado pela esperada redução do volume de vacâncias ou defeitos na fase amorfa com crescimento de grãos, [43, 44, 81]. Para $T_A = 570^\circ\text{C}$ observa-se uma redução do tamanho de grão provavelmente devido ao stress compressivo. O aumento de stress compressivo com a temperatura de tratamento é causado pelo aumento da diferença de expansão térmica entre o substrato e o filme com o aumento da diferença de temperatura entre as temperaturas de tratamento e ambiente. O caráter compressivo do stress é evidenciado pela correlação entre o comportamento do parâmetro de rede e a microdeformação com a temperatura de tratamento térmico.

As amostras como depositadas de 200 nm tem um parâmetro de rede $a = 2.86 \text{ \AA}$, que é menor do que o parâmetro de rede esperado para um filme a base de Ferro bcc (tal fase $\alpha\text{-Fe}$ tem $a = 2.87 \text{ \AA}$), tal efeito está relacionado com uma deformação uniforme compressiva residual causada pelo processo de recobrimento. Observamos que o parâmetro de rede da

fase mais amorfa decresce para $a = 2.85 \text{ \AA}$ com o tratamento térmico a $T_A = 500^\circ\text{C}$, ver figura 6.7, e aumenta para $a = 2.86 \text{ \AA}$ a $T_A = 540^\circ\text{C}$ e volta a decrescer para $a = 2.81 \text{ \AA}$ com o tratamento a $T_A = 570^\circ\text{C}$. Considerando o comportamento da microdeformação e do parâmetro de rede do filme de 200 nm, observamos que eles estão correlacionados, de forma que o parâmetro de rede tende a reduzir com o aumento da microdeformação, assim pode-se concluir que um stress uniforme compressivo está atuando sobre os filmes com espessura de 200 nm. Para essa espessura não se observa uma clara separação das fases entre uma fase mais amorfa de $\alpha\text{-Fe}$ (com $a = 2.87 \text{ \AA}$) e uma fase cristalina de $\alpha\text{-Fe}_{0.85}\text{Si}_{0.15}$ (com $a \approx 2.84 \text{ \AA}$), isso acontece provavelmente devido a evolução de stress compressivo com tratamento térmico. Porém, a redução do parâmetro de rede, a $T_A = 570^\circ\text{C}$, da fase mais amorfa pode estar relacionada também com agregação de silício na fase $\alpha\text{-Fe}$.

Os parâmetros estruturais das amostras com espessura de 500 nm é mostrado na figura 6.8. Observamos que a amostra como depositada apresenta um tamanho de grão de $\xi = 1.6 \text{ nm}$ e com o tratamento térmico temos que a fase menos cristalina (pico mais largo) permanece aproximadamente com mesmo tamanho de grão até a temperatura de $T_A = 540^\circ\text{C}$. A partir de $T_A = 500^\circ\text{C}$ observamos o surgimento de uma segunda fase mais cristalina com tamanho de grão de $\xi = 15 \text{ nm}$. Para $T_A = 540^\circ\text{C}$ observamos um aumento do tamanho de grão dessa fase para $\xi = 18.6 \text{ nm}$. E a partir de $T_A = 570^\circ\text{C}$ observamos um aumento do tamanho de grão de ambas as fases, de forma que a fase mais cristalina tem um aumento para $\xi = 30.2 \text{ nm}$ e a fase menos cristalina aumenta para $\xi = 15.2 \text{ nm}$. Dentro do nosso erro ($\pm 1 \text{ nm}$) podemos considerar que amostra como depositada é um material amorfo e a partir de $T_A = 500^\circ\text{C}$ obtemos um material com uma fase amorfa e uma fase com grãos nanométricos, enquanto que a partir de $T_A = 570^\circ\text{C}$ observamos a cristalização da fase amorfa.

A amostra como depositada com espessura de 500 nm apresenta uma microdeformação de $\epsilon = 2.4 \times 10^{-2}$, ver figura 6.8, enquanto que para $T_A = 450^\circ\text{C}$ observamos um aumento para $\epsilon = 7.0 \times 10^{-2}$. E com o aumento da temperatura de tratamento para $T_A = 500^\circ\text{C}$ observamos que a segunda fase, com $\xi = 15 \text{ nm}$, surge com uma microdeformação de $\epsilon = 2 \times 10^{-3}$ enquanto que a fase mais amorfa possui uma microdeformação de $\epsilon = 9 \times 10^{-2}$, que

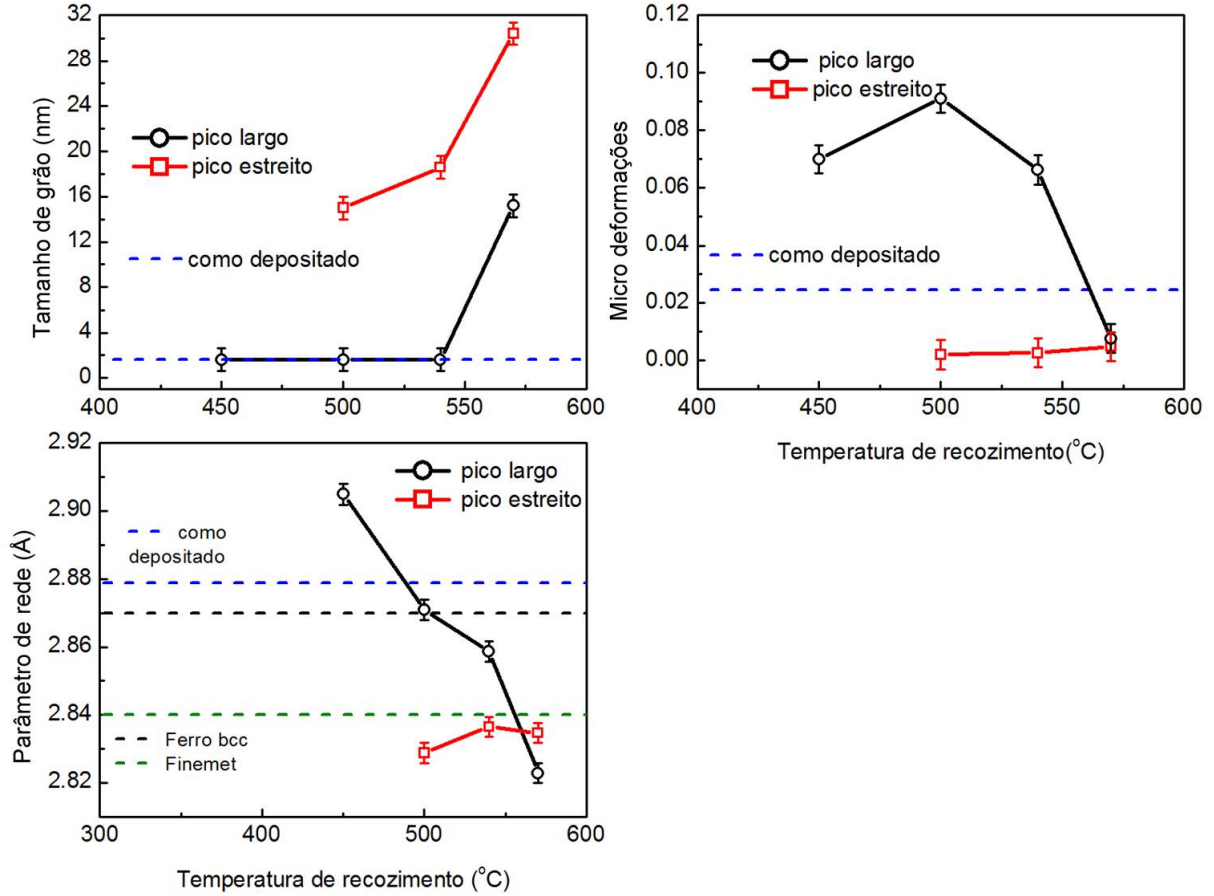


Figura 6.8: Propriedades estruturais obtidas a partir do padrão de difração de raios-x das amostras de 500nm em função da temperatura de recozimento

é maior do que a observada na amostra como depositada. Para $T_A = 540$ °C observamos que a fase mais cristalina possui uma microdeformação de $\epsilon = 2.6 \times 10^{-3}$, enquanto que a fase mais amorfa tem uma microdeformação de $\epsilon = 6.6 \times 10^{-2}$, e com aumento da temperatura para $T_A = 570$ °C observa-se uma redução da microdeformação da fase mais amorfa para $\epsilon = 7.6 \times 10^{-3}$.

O comportamento da microdeformação das amostras de 500 nm, ver figura 6.8, está relacionada com o crescimento de grãos de nanométricos. Observa-se que o aumento do grão da fase cristalina tende a diminuir a microdeformação na fase amorfa. Este efeito pode ser explicado pela esperada redução do volume de vacâncias ou defeitos na fase amorfa com crescimento de grãos, [43, 44, 81]. Por sua vez, o tamanho de grão parece ser determinado somente pela temperatura de tratamento térmico.

As amostras como depositadas de 500 nm tem um parâmetro de rede $a = 2.88$ Å, que é maior do que o parâmetro de rede esperado para um filme a base de Ferro bcc (a fase α -Fe

tem $a = 2.87 \text{ \AA}$). Este efeito está relacionado com uma deformação uniforme extensiva residual causada pelo processo de recobrimento. Observamos que o parâmetro de rede da fase mais amorfa aumenta para $a = 2.9 \text{ \AA}$ com o tratamento térmico a $T_A = 450^\circ\text{C}$, ver figura 6.8, e diminui para $a = 2.87 \text{ \AA}$ a $T_A = 500^\circ\text{C}$ e continua decrescendo até $a = 2.82 \text{ \AA}$ com o tratamento a $T_A = 570^\circ\text{C}$.

Considerando o comportamento do parâmetro de rede da fase cristalina das amostras de 500 nm, ver figura 6.8, observamos que a $T_A = 500^\circ\text{C}$ temos um parâmetro de rede de $a = 2.83 \text{ \AA}$, que está relacionado a uma fase de $\alpha\text{-Fe}_{1-x}\text{Si}_x$ (com $x > 0.15$). Com o aumento de temperatura de tratamento para $T_A = 540^\circ\text{C}$ obtemos uma amostra com $a = 2.84 \text{ \AA}$, compatível com a fase de $\alpha\text{-Fe}_{0.85}\text{Si}_{0.15}$. A $T_A = 570^\circ\text{C}$ observamos uma redução para $a = 2.83 \text{ \AA}$. Tal comportamento evidencia uma troca de silício entre as fases até o tratamento a $T_A = 540^\circ\text{C}$, enquanto que para o tratamento térmico a $T_A = 570^\circ\text{C}$ observa-se a cristalização da fase amorfa. De forma que só a temperaturas de 500°C e 540°C obtemos amostras mais próximas de filmes de Finemet.

6.2 Caracterização estática da magnetização

A caracterização estática da magnetização foi realizada por análise de curvas de histerese obtidas com aplicação de campo no plano das amostras como depositadas e recozidas sob diferentes temperaturas. Na subseção 6.2.1 mostramos as curvas de histerese obtidas em função da temperatura de tratamento térmico para diferentes espessuras dos filmes. Para as amostras sem tratamento e com baixas temperaturas de recozimento observamos curvas características de uma anisotropia uniaxial para o filme de 100 nm e com o aumento da espessura observa-se a indução de uma anisotropia para fora do plano, que está relacionada com um stress uniforme residual devido ao processo de deposição. Observa-se que o aumento da temperatura de tratamento térmico induz uma redução do campo de coercividade e de anisotropia devido ao alívio de tensões ou da condição do processo de cristalização, enquanto que a variação da magnetização de saturação está associada a mudanças nas fases estruturais das amostras.

As curvas de histerese foram normalizadas e ajustadas no ramo entre a saturação e a remanência, como mostrado na figura 6.9, para se obter a distribuição de anisotropia

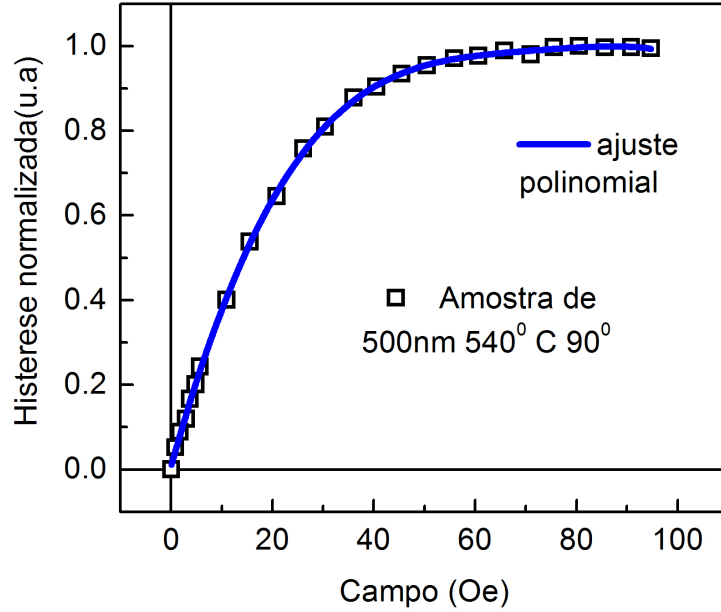


Figura 6.9: Ramo entre a saturação e a remanência da curva de histerese normalizada do filme de 500 nm recozido a 540 °C e o ajuste polinomial (em azul). A curva foi medida no eixo duro e a partir da segunda derivada calcula-se a distribuição da anisotropia; o máximo ocorre no campo de anisotropia.

($P(H)$) e os campos de anisotropia, conforme descrito na seção 5.3 do capítulo 5. O campo coercivo e a magnetização de saturação são obtidos diretamente da curva de histerese. A magnetização de saturação pode variar de acordo com as fases e as frações de volume cristalino e amorfo que compõem a amostra, enquanto que os campos de anisotropia de coercividade devem variar com a competição entre a anisotropia magnetocristalina e magnetoelástica. Na subseção 6.2.2 é mostrado o efeito do tratamento térmico no campos de coercividade (H_C), de anisotropia (H_A) e na magnetização de saturação (M_S) para cada espessura de filme.

6.2.1 Curvas de histerese

A evolução das curvas de histerese com a temperatura do tratamento térmico (T_A) para as amostras de 100 nm, 200 nm e 500 nm é mostrado, respectivamente, nas figuras 6.10, 6.11 e 6.12, onde também é mostrado a distribuição do campo de anisotropia ($P(H) = -Hd^2m/dH^2$). As curvas de histerese foram obtidas com o campo magnético externo aplicado no plano da amostra ao longo do eixo fácil (definido como 0°) e duro (definido como 90°), que foram formados devido a aplicação de campo magnético durante a deposição dos filmes. No entanto, com o aumento da espessura do filme, observa-se que

ele passa a ser isotrópico no plano com uma anisotropia para fora do plano.

As curvas de histerese das amostras de 100 nm são mostradas na figura 6.10, para amostras como depositada e tratadas nas faixa de temperatura 100° C a 540° C, obtidas com campo magnético aplicado no plano da amostra. A curva de magnetização a 0° da amostra como depositada mostra uma coercividade menor do que esperado para uma amostra com anisotropia uniaxial. Tal efeito pode estar associado à formação de paredes de domínio que diminuem o campo necessário para inversão da magnetização. Com o tratamento térmico podemos observar a redução do efeito de paredes de domínio e podemos considerar que todas as amostras de 100 nm possuem uma anisotropia uniaxial com pequena contribuição de domínios. Podemos também observar uma pequena variação na distribuição de anisotropia($P(H)$) associada à variação do nível de stress, evidenciado pela microdeformação das amostras.

Na faixa de temperatura de tratamento de 100° C a 400° C podemos observar que as curvas de histerese das amostras de 100 nm sofrem uma pequena variação na forma e na coercividade, ver figura 6.10. Tal variação com a temperatura de tratamento térmico está relacionada com a evolução da microdeformação com o tratamento térmico, a qual se deve principalmente a diferença de expansão térmica entre o substrato e o filme. E, como já foi mencionado antes, temos que o alívio e a produção de tensão depende do estado termodinâmico do filme, o qual pode se encontrar em um estado de líquido super resfriado em torno da temperatura de tratamento de 350° C [23]. E assim a deformação devido a diferença de expansão térmica se torna menos significativa porque o filme acompanha a deformação do substrato de vidro.

As amostras de 100 nm tratadas nas temperaturas de recozimento de 450° C a 540° C sofrem efeitos de tensões uniformes que surgem devido ao início da cristalização de uma segunda fase e da diferença de expansão térmica entre o substrato e o filme. O tamanho de grão da segunda fase se torna mais relevante para determinar a coercividade e a anisotropia, pois o crescimento do grão tende a reduzir a microdeformação porém gera uma tensão extensiva. Assim, na faixa de temperatura de 450° C a 540° C, temos que a coercividade e a anisotropia é determinada pelo tamanho de grão, as tensões geradas

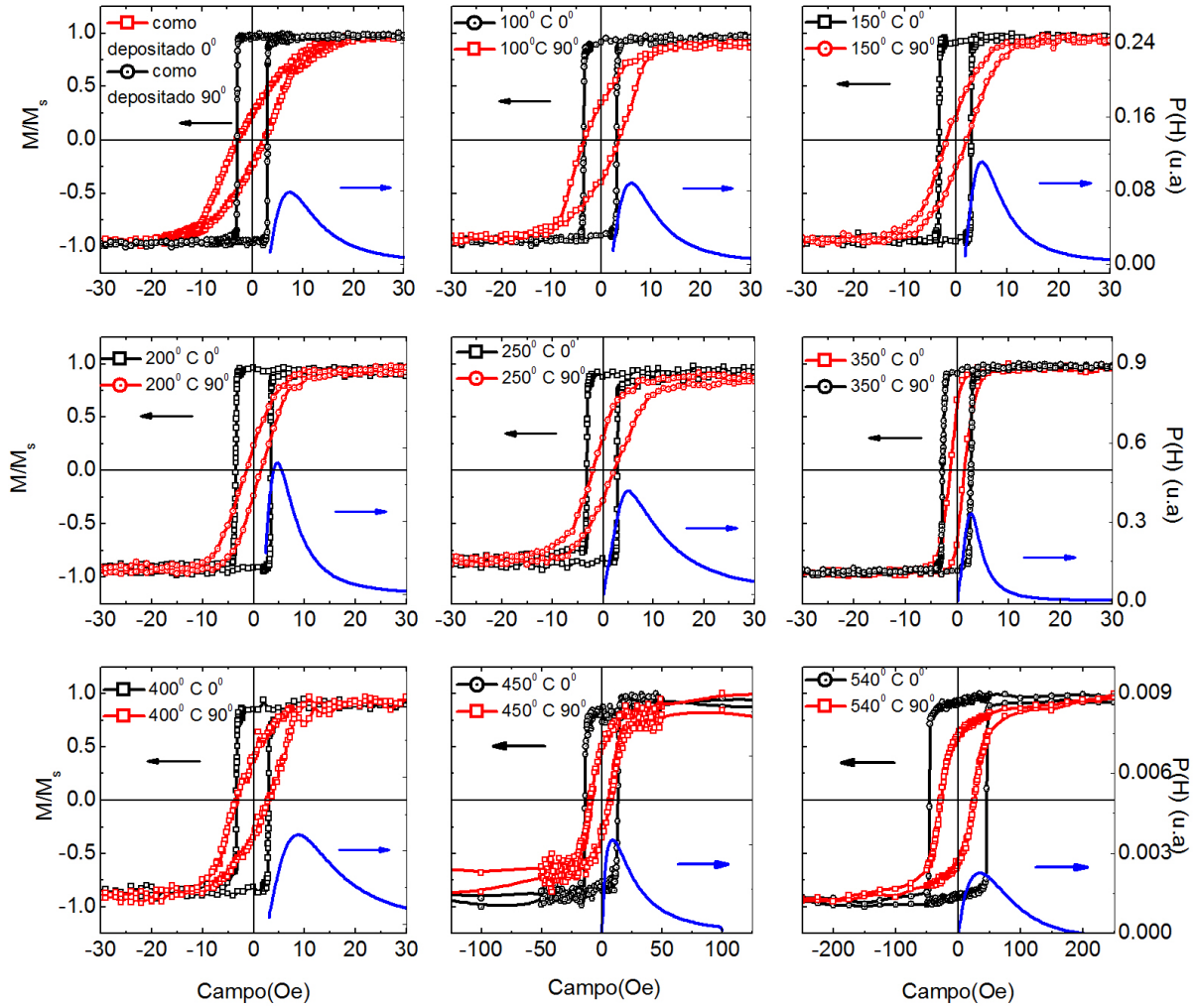


Figura 6.10: Curvas de histerese normalizada dos filmes de com espessura de 100 nm recozidos a diferentes temperaturas. As curvas são medidas com o campo magnético externo sendo aplicado no plano do filme nas direções do eixo fácil (linha preta) e duro (linha vermelha). A partir da segunda derivada da curva de histerese calcula-se a distribuição da anisotropia (curva azul), onde o máximo ocorre no campo de anisotropia.

pela acomodação de material durante o crescimento do grão e pela diferença de expansão térmica entre o substrato e o filme.

As curvas de histerese das amostras de 200 nm são mostradas na figura 6.11, onde podemos observar as curvas de histerese das amostras como depositada e tratadas nas faixa de temperatura 450°C a 570°C, as quais foram obtidas com campo magnético aplicado no plano da amostra. Também podemos observar um considerável aumento da distribuição de anisotropia ($P(H)$) e da coercividade em relação as amostras de 100 nm. A curvas de magnetização da amostra como depositada mostram não haver anisotropia no plano. Porém podemos observar uma componente de anisotropia para fora do plano na

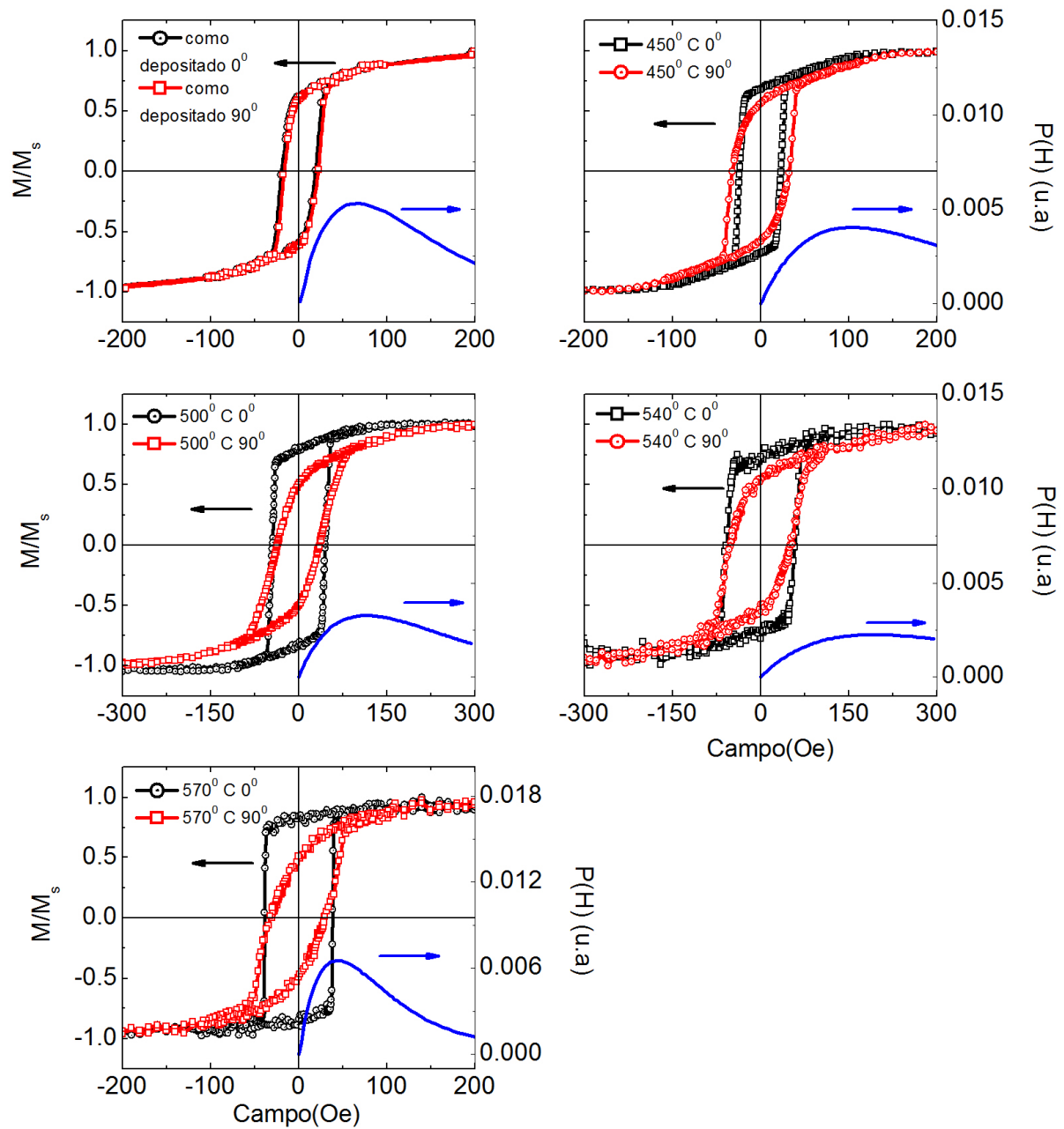


Figura 6.11: Curvas de histerese normalizada dos filmes de com espessura de 200 nm recozidos a diferentes temperaturas. As curvas são medidas com o campo magnético externo sendo aplicado no plano do filme nas direções do eixo fácil (linha preta) e duro (linha vermelha). A partir da segunda derivada da curva de histerese calcula-se a distribuição da anisotropia (curva azul), onde o máximo ocorre no campo de anisotropia.

amostra, a qual gera uma inclinação linear na histerese entre a saturação e a remanência que deixa a curva de histerese menos quadrada com a redução da remanência.

Na faixa de temperatura de tratamento de 450°C a 570°C podemos observar que as curvas de histerese das amostras de 200 nm sofrem um aumento da anisotropia no plano da amostra e na coercividade, ver figura 6.11. A variação da anisotropia no plano

com o tratamento térmico pode está relacionado com um ordenamento dos domínios causado pela forma da amostra durante o tratamento, como também uma orientação cristalográfica dos grãos que pode ser gerada devido a tensão compressiva. A evolução da coercividade e da anisotropia com a temperatura de tratamento está correlacionado com o tamanho de grão que por sua vez é determinado pelo nível de stress compressivo na amostra. Para $T_A = 570^\circ\text{C}$ observa-se uma redução da distribuição de anisotropia que pode ser causada pela redução da anisotropia para fora do plano devido ao reforço da anisotropia no plano da amostra. Como já foi dito, a tensão compressiva pode induzir uma orientação cristalográfica que por sua vez pode induzir o reforço da anisotropia no plano da amostra.

As curvas de histerese das amostras de 500 nm são mostradas na figura 6.12, onde podemos observar as curvas de histerese das amostras como depositada e tratadas nas faixa de temperatura 450°C a 570°C , as quais foram obtidas com campo magnético aplicado no plano da amostra. Também podemos observar um considerável redução da distribuição de anisotropia ($P(H)$) e da coercividade em relação as amostras como depositada. Tal efeito se deve ao início da cristalização de uma fase de $\alpha\text{-Fe}_{1-x}\text{Si}_x$ com grãos da ordem de nanômetro imerso em uma fase amorfa de $\alpha\text{-Fe}$. A curvas de magnetização da amostra como depositada mostram não haver anisotropia no plano, porém com uma componente de anisotropia para fora do plano na amostra.

Na faixa de temperatura de tratamento de 450°C a 570°C podemos observar que as curvas de histerese das amostras de 500 nm sofrem um aumento da anisotropia no plano da amostra porém com uma redução da coercividade, ver figura 6.12. A redução da coercividade com a temperatura de tratamento térmico está relacionada com o início da cristalização de uma fase nanocristalina imersa em uma matriz amorfa, de forma que a coercividade é determinada pelo tamanho de grão da fase de $\alpha\text{-Fe}_{1-x}\text{Si}_x$. De forma que, para os filmes de 500 nm, observamos que a coercividade é somente determinada pelo tamanho de grão enquanto que a distribuição da anisotropia é determinada tanto pela tensão compressiva quanto pelo tamanho de grão.

Considerando as curvas de histerese a 0° das amostras de 500 nm podemos observar

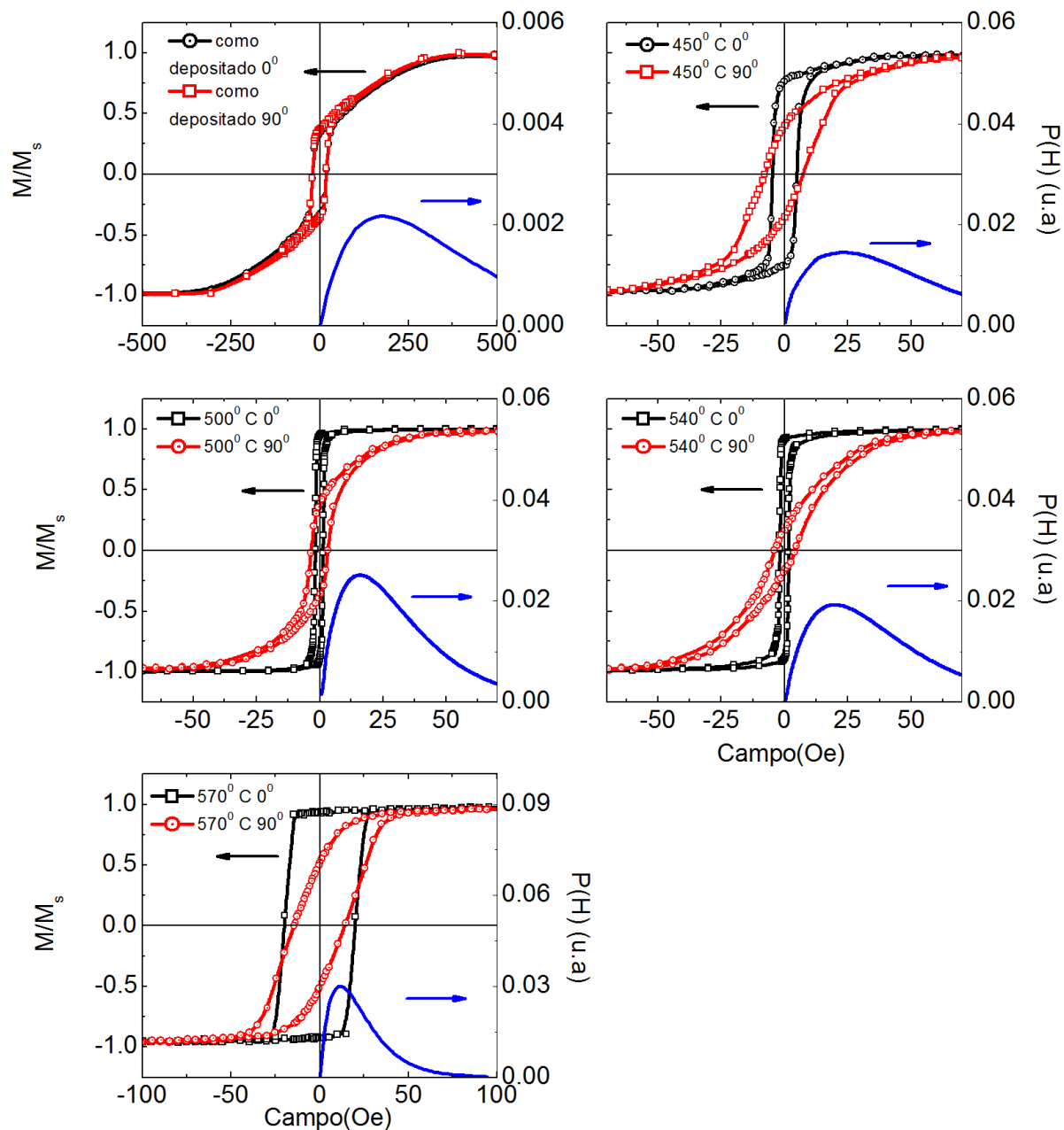


Figura 6.12: Curvas de histerese normalizada dos filmes de com espessura de 500 nm recozidos a diferentes temperaturas. As curvas são medidas com o campo magnético externo sendo aplicado no plano do filme nas direções do eixo fácil (linha preta) e duro (linha vermelha). A partir da segunda derivada da curva de histerese calcula-se a distribuição da anisotropia (curva azul), onde o máximo ocorre no campo de anisotropia.

que, na faixa de 450°C a 540°C , possuem coercividades menores do que esperado para amostras com anisotropia uniaxial, tal efeito pode ser atribuído a formação de domínios do tipo stripe que possuem parte da magnetização para fora do plano e diminuem o campo necessário para inversão da magnetização no plano. Enquanto que para $T_A = 570^{\circ}\text{C}$ observa-se que a cristalização da fase amorfa induz uma redução da distribuição de anisotropia que pode ser causada pela redução da anisotropia para fora do plano com acréscimo de anisotropia no plano. Tal anisotropia no plano pode ter sido originada por uma orientação cristalográfica no plano da amostra, a qual pode ser causada pelo stress compressivo durante o tratamento térmico.

As coercividades e as magnetizações de saturação das amostras foram obtidas diretamente das curvas de histerese observada nas figuras 6.10, 6.11 e 6.12, enquanto que os campos de anisotropia das amostras foram obtidos a partir das distribuições de anisotropia mostradas nessas figuras. Na seguinte seção será discutido com maior detalhes a evolução da coercividade, do campo de anisotropia e da magnetização de saturação com o tratamento térmico.

6.2.2 Coercividade, campo de anisotropia e magnetização de saturação em função do recozimento

A coercividade, o campo de anisotropia e a magnetização de saturação (Ms) em função da temperatura de tratamento térmico das amostras de 100 nm, 200 nm e 500 nm são mostradas, respectivamente, nas figuras 6.13, 6.14 e 6.15.

Os parâmetros magnéticos das amostras com espessura de 100 nm é mostrado na figura 6.13, os quais foram obtidos a partir da curva de histerese e da distribuição da anisotropia. Onde podemos observar que a amostra como depositada apresenta uma coercividade de $H_c = 3\text{ Oe}$ e um campo de anisotropia de $H_A = 19.5\text{ Oe}$, enquanto que com o tratamento térmico a coercividade decresce para $H_c = 2.8\text{ Oe}$ e o campo de anisotropia decresce para $H_A = 7.5\text{ Oe}$ a $T_A = 350^{\circ}\text{C}$. E com o início da cristalização de uma segunda fase a $T_A = 450^{\circ}\text{C}$ observa-se um aumento da coercividade para $H_c = 13.6\text{ Oe}$ e do campo de anisotropia para $H_A = 29.25\text{ Oe}$. Devido ao crescimento do grão dessa segunda fase na temperatura $T_A = 540^{\circ}\text{C}$ observa-se um considerável aumento da coercividade para $H_c =$

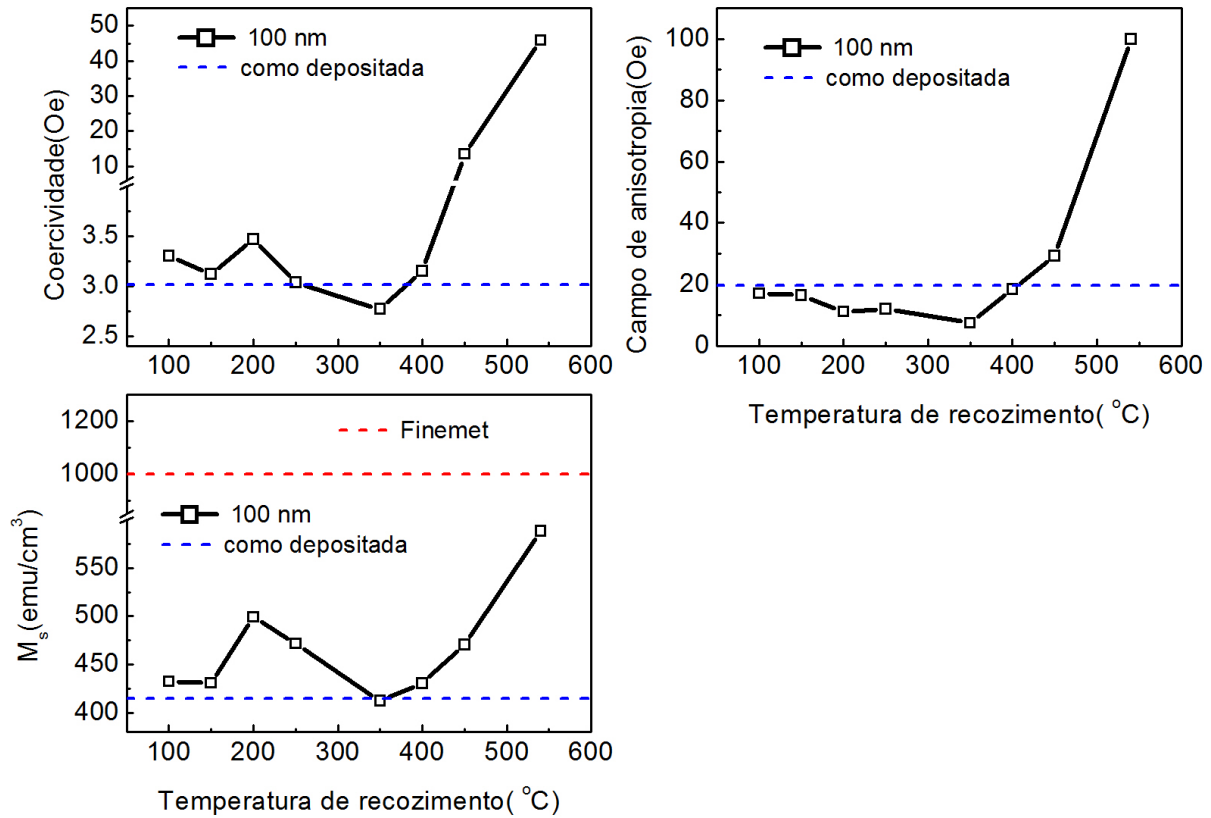


Figura 6.13: Propriedades magnéticas obtidas a partir da curva de histerese das amostras de 100 nm em função da temperatura de recozimento

45.9 Oe e do campo de anisotropia para $H_A = 100$ Oe. O decréscimo da coercividade e do campo de anisotropia a $T_A = 350^\circ\text{C}$ está relacionado com alívio de tensões evidenciada pela redução da microdeformação nessa temperatura de tratamento. Enquanto que com o aumento da temperatura de tratamento para $T_A = 450^\circ\text{C}$ observamos um aumento da coercividade e da anisotropia que se deve ao crescimento do tamanho de grão e a deformação compressiva causada pela diferença de expansão entre o substrato e o filme.

A amostra como depositada com espessura de 100 nm apresenta uma magnetização de saturação de $M_s = 415 \text{ emu/cm}^3$, ver figura 6.13, que aumenta para $M_s = 499 \text{ emu/cm}^3$ a $T_A = 200^\circ\text{C}$. E com o aumento da temperatura de tratamento para $T_A = 350^\circ\text{C}$ observamos um decaimento da magnetização de saturação para $M_s = 412 \text{ emu/cm}^3$ aproximadamente igual amostra como depositada. Enquanto que com a cristalização da segunda fase observamos o aumento da magnetização de saturação para $M_s = 588 \text{ emu/cm}^3$ a $T_A = 540^\circ\text{C}$, porém ainda inferior a magnetização de saturação esperada para um filme de Finemet. O aumento da magnetização de saturação do filme tratado a $T_A = 200^\circ\text{C}$ in-

dica um aumento da fração de volume cristalizado, enquanto que a nucleação de pequenos grãos a $T_A = 350^\circ\text{C}$ tende a não variar a magnetização de saturação em relação a amostra como depositada. Com início da cristalização a partir de $T_A = 450^\circ\text{C}$ observamos um aumento da magnetização de saturação com o tamanho de grão da fase mais cristalinas, tal efeito se deve ao aumento do volume cristalizado com o aumento do grão.

Os parâmetros magnéticos das amostras com espessura de 200 nm é mostrado na figura 6.14, os quais foram obtidos a partir da curva de histerese e da distribuição da anisotropia. A partir dessas curvas encontramos que a amostra como depositada apresenta uma coercividade de $H_c = 18.4\text{ Oe}$ e um campo de anisotropia de $H_A = 67.3\text{ Oe}$, enquanto que com o tratamento térmico a coercividade e anisotropia aumentam, respectivamente, para $H_c = 23.6\text{ Oe}$ e para $H_A = 104\text{ Oe}$ a $T_A = 450^\circ\text{C}$. O início da cristalização de uma segunda fase a $T_A = 500^\circ\text{C}$ observa-se um aumento da coercividade para $H_c = 45.1\text{ Oe}$ e do campo de anisotropia para $H_A = 115\text{ Oe}$. Devido ao crescimento do grão dessa segunda fase na temperatura $T_A = 540^\circ\text{C}$ observa-se um considerável aumento da coercividade para $H_c = 58.6\text{ Oe}$ e do campo de anisotropia para $H_A = 197\text{ Oe}$. Para $T_A = 570^\circ\text{C}$ observa-se uma nova redução da coercividade e do campo de anisotropia, respectivamente, para $H_c = 38.5\text{ Oe}$ e para $H_A = 45\text{ Oe}$. O aumento da coercividade e do campo de anisotropia a $T_A = 450^\circ\text{C}$ está relacionado com o acréscimo de tensões uniformes causada pela deformação compressiva gerada pela diferença de expansão térmica entre o substrato e o filme. Enquanto que com o início da cristalização de uma segunda fase, a partir de $T_A = 500^\circ\text{C}$, temos que a coercividade e o campo de anisotropia são determinados pelo tamanho de grão dessa fase, que por sua vez é controlado pelo nível de stress compressivo.

A amostra como depositada com espessura de 200 nm apresenta uma magnetização de saturação de $M_s = 469.4\text{ emu/cm}^3$, ver figura 6.14, que reduz para $M_s = 348\text{ emu/cm}^3$ a $T_A = 450^\circ\text{C}$. E com o início da cristalização de uma segunda fase a $T_A = 500^\circ\text{C}$ observamos um aumento da magnetização de saturação para $M_s = 543\text{ emu/cm}^3$, porém consideravelmente menor que a magnetização de saturação de uma amostra de Finemet. Enquanto que com o aumento da temperatura de tratamento de $T_A = 540^\circ\text{C}$ até $T_A = 570^\circ\text{C}$ observamos, respectivamente, uma magnetização de saturação de $M_s =$

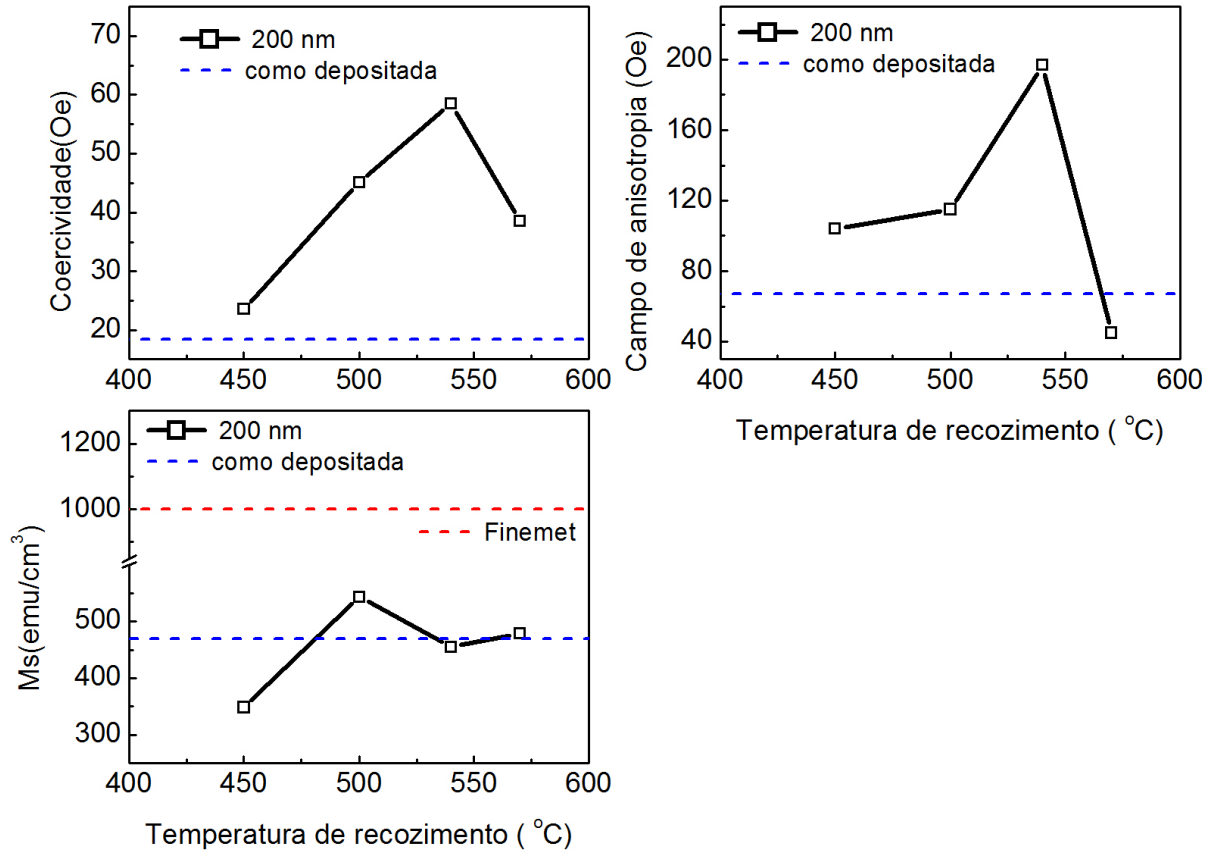


Figura 6.14: Propriedades magnéticas obtidas a partir da curva de histerese das amostras de 200 nm em função da temperatura de recozimento

455 emu/cm³ e $M_s = 479$ emu/cm³, que são aproximadamente iguais a magnetização de saturação da amostra como depositada. O aumento da magnetização de saturação do filme tratado a $T_A = 500$ °C indica um aumento da fração de volume cristalizado, enquanto que com o aumento da temperatura de tratamento de $T_A = 540$ °C até $T_A = 570$ °C a magnetização de saturação não varia devido provavelmente a formação de fases de boretos de Ferro com uma redução da fração de volume cristalizado a base de α -Fe_{1-x}Si_x, tais fases não foram identificadas pelo parâmetro de rede devido a tensão compressiva presente nessas amostras.

Os parâmetro magnéticos das amostras com espessura de 500 nm é mostrado na figura 6.15, os quais foram obtidos a partir da curva de histerese e da distribuição da anisotropia. A partir dessa curvas encontramos que a amostra como depositada apresenta uma coercividade de $H_c = 19.15$ Oe e um campo de anisotropia de $H_A = 172.5$ Oe, enquanto que com o tratamento térmico a coercividade e anisotropia diminuem, respectivamente,

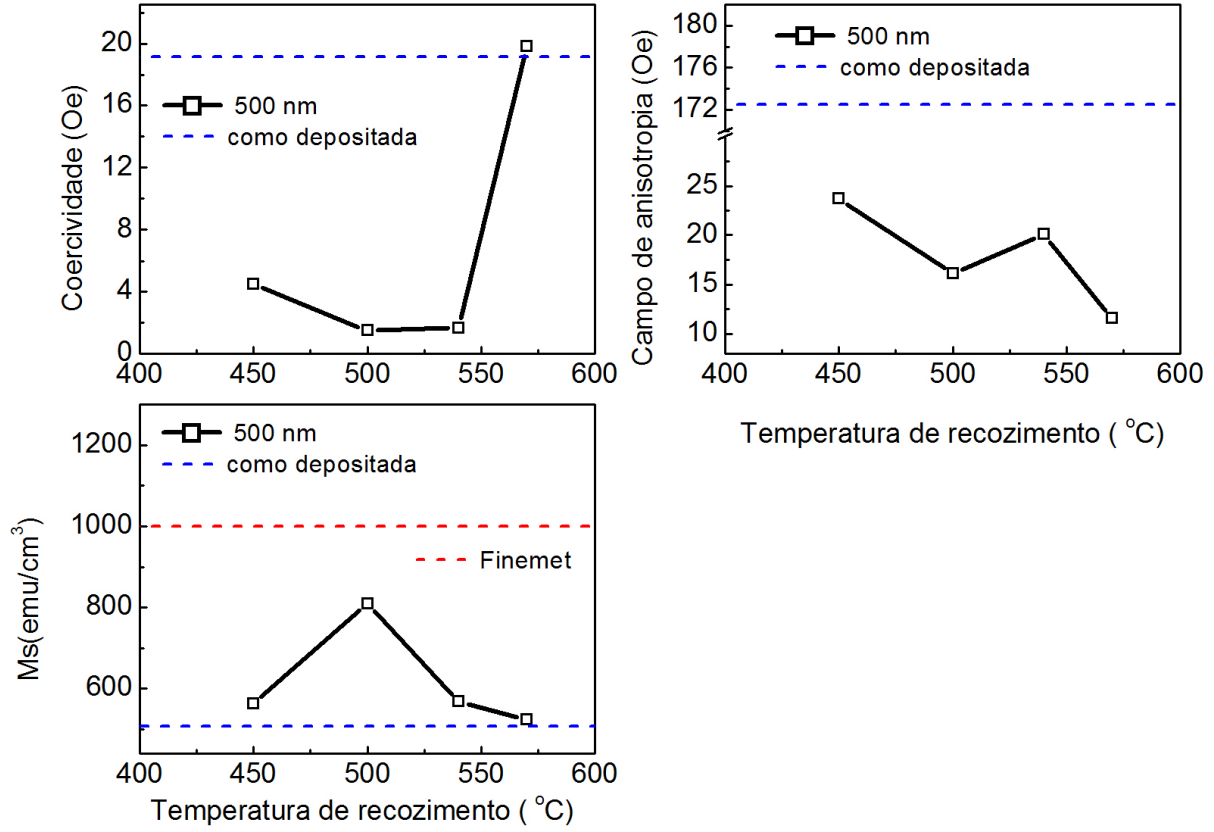


Figura 6.15: Propriedades magnéticas obtidas a partir da curva de histerese das amostras de 500 nm em função da temperatura de recozimento

para $H_c = 4.5$ Oe e para $H_A = 23.7$ Oe a $T_A = 450^\circ\text{C}$. O início da cristalização de uma segunda fase a $T_A = 500^\circ\text{C}$ observa-se um redução da coercividade para $H_c = 1.5$ Oe e do campo de anisotropia para $H_A = 16.1$ Oe. Devido ao crescimento do grão dessa segunda fase na temperatura $T_A = 540^\circ\text{C}$ observa-se um aumento da coercividade para $H_c = 1.7$ Oe e do campo de anisotropia para $H_A = 20.1$ Oe. Para $T_A = 570^\circ\text{C}$ observa-se uma aumento da coercividade para $H_c = 19.8$ Oe, enquanto que o campo de anisotropia reduz para $H_A = 11.6$ Oe. A redução da coercividade e do campo de anisotropia a $T_A = 450^\circ\text{C}$ está relacionado com o aumento da nucleação de pequenos grãos, tal nucleação gera uma tensão extensível [43, 44] que reduz o efeito da tensão compressível gerada durante o processo de deposição e a diferença de expansão térmica. Enquanto que com o início da cristalização de uma segunda fase, a partir de $T_A = 500^\circ\text{C}$, temos que a coercividade é determinado pelo tamanho de grão dessa fase, porém o campo de anisotropia é determinado pela competição entre o tamanho de grão e a microdeformação na fase amorfa.

A amostra como depositada com espessura de 500 nm apresenta uma magnetização de saturação de $M_s = 507 \text{ emu/cm}^3$, ver figura 6.15, que aumenta para $M_s = 564 \text{ emu/cm}^3$ a $T_A = 450^\circ\text{C}$. E com o início da cristalização de uma segunda fase a $T_A = 500^\circ\text{C}$ observamos um aumento da magnetização de saturação para $M_s = 808 \text{ emu/cm}^3$, a qual chega próxima a magnetização de saturação de uma amostra de Finemet. Enquanto que com o aumento da temperatura de tratamento de $T_A = 540^\circ\text{C}$ observamos uma redução da magnetização de saturação para $M_s = 568 \text{ emu/cm}^3$, a qual reduz novamente para $M_s = 524 \text{ emu/cm}^3$, que é aproximadamente igual a magnetização de saturação da amostra como depositada. O aumento da magnetização de saturação do filme tratado a $T_A = 500^\circ\text{C}$ é devido a formação de uma alta fração de volume cristalizado da fase de $\alpha\text{-Fe}_{1-x}\text{Si}_x$, enquanto que com o aumento da temperatura de tratamento de $T_A = 540^\circ\text{C}$ até $T_A = 570^\circ\text{C}$ a magnetização de saturação reduz devido a redução da fração de volume cristalizado a base de $\alpha\text{-Fe}_{1-x}\text{Si}_x$ com a formação de fases de boretos de Ferro devido ao início da cristalização da fase amorfa que pode ocorrer nessa temperatura de tratamento [4].

Na seção seguinte será apresentado os resultados da caracterização da dinâmica da magnetização, onde será mostrado os resultados obtido por medidas de VNA-FMR das amostras como depositada e com tratamento térmico. De forma que será investigado o efeito do tratamento térmico e da espessura na relação dispersão dos modos de oscilação, nos processos de relaxação e no alargamento da largura de linha de FMR.

6.3 Caracterização da dinâmica da magnetização

A caracterização da dinâmica da magnetização foi realizada por análise de medidas de VNA-FMR, as quais foram obtidas com aplicação de campo magnético no plano das amostras com e sem tratamento. Na subseção 6.3.1 é mostrado os mapas de cor obtidos em função da temperatura de tratamento térmico e da espessura dos filmes. Para as amostras com espessura de 100 nm observamos dois ramos associados ao modo precessão uniforme para magnetização saturada na direção negativa e positiva do campo magnético aplicado, figura 6.16. Para as amostras de 200 nm e 500 nm observa-se complexos modos de oscilação da magnetização para baixos campos magnéticos aplicados. Tais modos

de oscilação estão associados à não homogeneidade da magnetização na faixa de campo magnético onde a amostra não está saturada. Contudo, nesta tese somente foi estudado a dinâmica da magnetização das amostras em seu estado saturado.

Na subseção 6.3.2 é mostrado o efeito da temperatura de tratamento térmico e da espessura dos filmes na relação de dispersão e na largura de linha em campo ($\Delta H(f)$), que foram extraídas a partir do ajuste do espectro de absorção de FMR (os mapas de cor). Para as amostras com espessura de 100 nm observamos uma relação de dispersão determinada pela relação de Kittel e larguras de linha ($\Delta H(f)$) formada pela largura de Gilbert (ΔH_G), pela largura de linha de dois mágnons (ΔH_{TMS}) e o alargamento de linha devido a não homogeneidade do campo efetivo (ΔH_{INO}). Enquanto que, para as amostras de 200 nm e 500 nm observa-se complexas relações dispersão na região não saturada, as quais são geradas devido à não uniformidade da magnetização. Na região saturada observamos relações de dispersão que satisfazem a relação de Kittel. Analisando as larguras de linha de FMR para as amostras de 200 nm e 500 nm observamos que o aumento da espessura tende a reforçar as contribuições devido ao processo de espalhamento dois mágnons (ΔH_{TMS}) e devido a não homogeneidade do campo efetivo (ΔH_{INO}).

6.3.1 Espectros de absorção de FMR obtidos por VNA-FMR

A evolução dos espectros de absorção de FMR com a temperatura de tratamento térmico para as amostras de 100 nm, 200 nm e 500 nm é mostrado, respectivamente, nas figuras 6.16, 6.17 e 6.18. Esses espectros de absorção representam a absorção de FMR normalizada (P/P_{max}) em função do campo e da frequência de excitação, de forma que a escala de cor de azul para vermelho representa a variação do mínimo para o máximo de absorção de FMR. As medidas do espectro de absorção foram iniciadas com a magnetização sendo saturada por um campo negativo de $H = -800$ Oe, seguido de uma varredura quase estática do campo magnético para $H = 800$ Oe.

Os espectros de absorção de FMR das amostras de 100 nm são mostrados na figura 6.16 em função da temperatura de tratamento. Nesses espectros podemos observar dois ramos que aparecem na faixa de campos magnéticos positivos e negativos em que as amostras estão saturadas e na faixa da inversão da magnetização podemos observar uma

abertura entre os ramos, ver figura 6.16. Tal extinção da absorção de FMR durante a inversão da magnetização se deve ao aumento do volume de magnetização paralela ao campo de excitação durante o processo de inversão.

Nas amostras de 100 nm como depositada e tratadas na faixa de temperatura de 100° C a 400° C podemos observar pequenas variações da largura da linha dos ramos dos espectros de absorção (ver figura 6.16), tais variações se devem principalmente a evolução da microdeformação com o tratamento. Com o início da cristalização a 450° C podemos observar um considerável aumento da largura de linha. Tal efeito, como veremos, está relacionado ao aumento da contribuição da largura de linha associada ao espalhamento dos magnons (ΔH_{TMS}), devido a formação de uma segunda fase com grãos maiores, e ao aumento da contribuição da largura de linha (ΔH_{INO}) associada à não homogeneidade do campo efetivo, causado pelo aumento da deformação não uniforme da fase mais amorfa com o início da cristalização da fase mais cristalina.

Os espectros de absorção de FMR das amostras de 200 nm são mostrados na figura 6.17, onde observa-se os espectros das amostras como depositada e tratadas a diferentes temperaturas. Nesses espectros podemos observar dois ramos que aparecem na faixa de campos magnéticos positivos e negativos em que as amostras estão saturadas, enquanto que para as amostras como depositada e tratada a $T_A = 450^\circ \text{C}$ podemos observar múltiplas linhas na faixa de campos em que as amostras não estão saturadas. Essa complexa resposta da dinâmica da magnetização na região não saturada é esperada para essas amostras como depositada e tratada a $T_A = 450^\circ \text{C}$, que têm uma considerável dispersão de anisotropia e uma componente de anisotropia para fora do plano. Tal dispersão da anisotropia e anisotropia para fora do plano é gerada por um stress local, que induz camadas do filme com diferentes anisotropias. Essas camadas com diferentes anisotropias têm modos independentes de oscilação da magnetização que geram as múltiplas linhas de absorção de FMR no estado não saturado [38]. Contudo, com o aumento da temperatura de tratamento para $T_A = 570^\circ \text{C}$, observamos uma extinção dos complexos modos de oscilação na região não saturada. Isto se deve à redução da anisotropia para fora do plano e da dispersão da anisotropia com o aumento da anisotropia no plano da amostra.

Nas amostras de 200 nm como depositada e tratada na temperatura de 450° C podemos observar pequenas variações da largura da linha dos ramos dos espectros de absorção (ver figura 6.17), tais variações se devem principalmente ao aumento da dispersão da anisotropia com o tratamento. Com o aumento da temperatura de tratamento para até 570° C podemos observar um considerável aumento da largura de linha, tal efeito, como veremos, está relacionado ao aumento da contribuição da largura de linha (ΔH_{INO}) associada à não homogeneidade do campo efetivo. Contudo, com o aumento da espessura para 200 nm, observamos que a largura de linha devido ao espalhamento dois magnons (ΔH_{TMS}) se comporta conforme descrito pela teoria de Schlomann [70], que foi elaborada para amostras *Bulk* com uma distribuição aleatória da anisotropia magnetocristalina gerada pela distribuição aleatória de grãos. Assim, o aumento das contribuição (ΔH_{INO}) com o tratamento térmico ocorre devido ao aumento da deformação não homogênea devido ao crescimento de grãos sob um stress não uniforme ao longo da amostra.

Os espectros de absorção de FMR das amostras de 500 nm são mostrados na figura 6.18, onde observa-se os espectros das amostras como depositada e tratadas a diferentes temperaturas. Nesses espectros podemos observar dois ramos que aparecem na faixa de campos magnéticos positivo e negativo em que as amostras estão saturadas, enquanto que para a amostra como depositada podemos observar múltiplas linhas na faixa de campo em que as amostras não estão saturada. Em relação a amostra como depositada de 200 nm podemos observar uma aumento dos números da linhas de absorção na região que amostra se encontra não saturada. O aumento desses modos de oscilação da magnetização na região não saturada é esperada devido ao aumento da distribuição da anisotropia e da componente da anisotropia para fora do plano com o aumento da espessura. De forma que com o aumento da espessura temos um aumento das camadas com diferente anisotropia que oscilam independentemente e conseqüentemente gera-se mais linhas de absorção de FMR no estado não saturado. Contudo, com o tratamento térmico observamos uma extinção dos complexos modos de oscilação no estado não saturado, tal efeito se deve a redução da distribuição da anisotropia e da anisotropia para fora do plano com o aumento da anisotropia no plano da amostra.

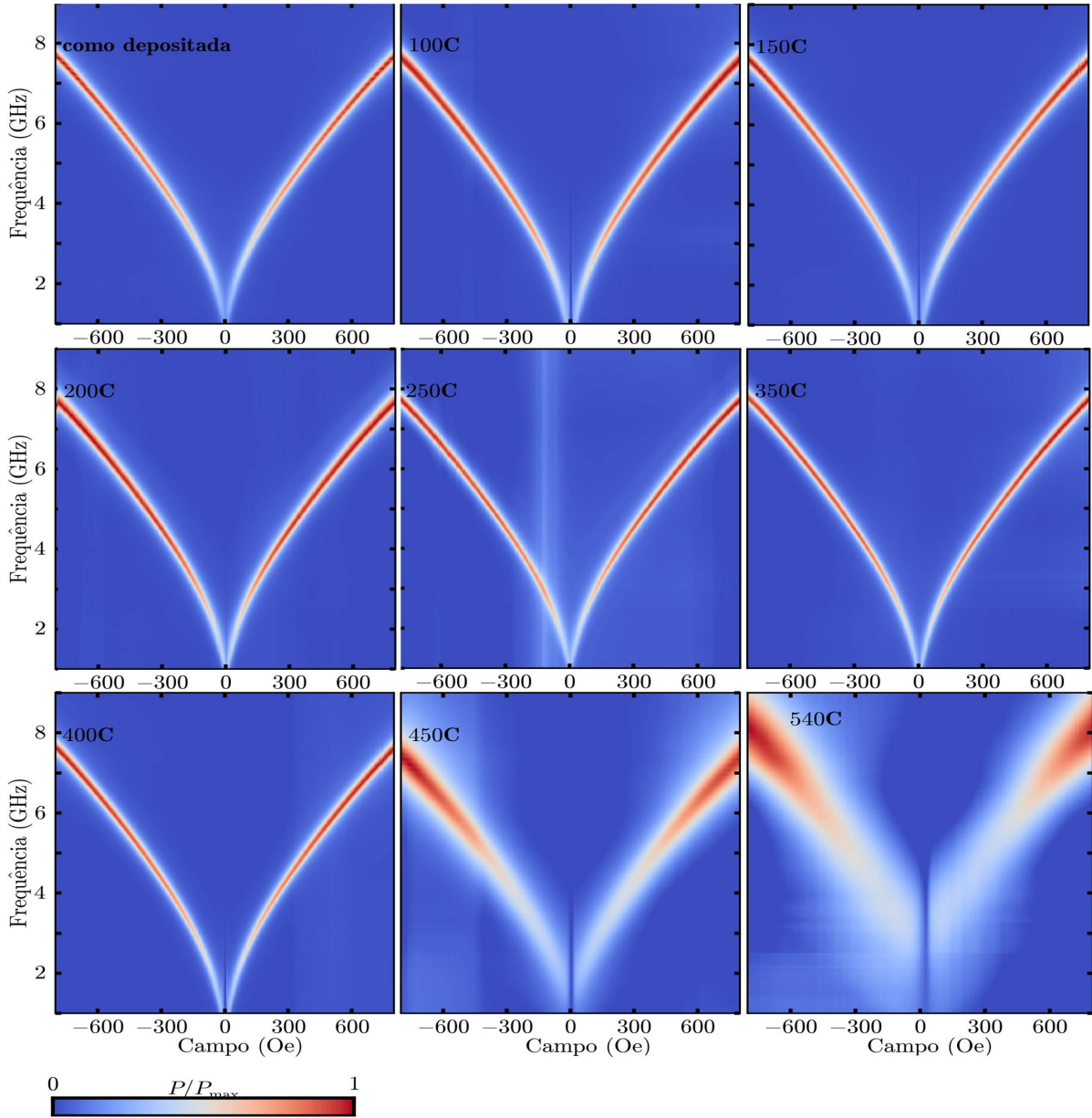


Figura 6.16: dinâmica da magnetização amostra com espessura de 100nm

Nas amostras de 500 nm observamos consideráveis variações da largura da linha dos ramos dos espectros de absorção (ver figura 6.18), tais variações se devem principalmente a evolução da dispersão da anisotropia e da anisotropia com o tratamento térmico. No caso da amostra de 500 nm veremos que a largura de linha é determinada somente pelas contribuições devido a não homogeneidade do campo efetivo (ΔH_{INO}) e a contribuição devido ao espalhamento dois magnons (ΔH_{INO}). E para as espessuras de 200 nm e 500 nm veremos que a largura de linha devido ao espalhamento dois magnons (ΔH_{TMS}) se comporta conforme descrito pela teoria de Schlomann [70] formulada para amostras

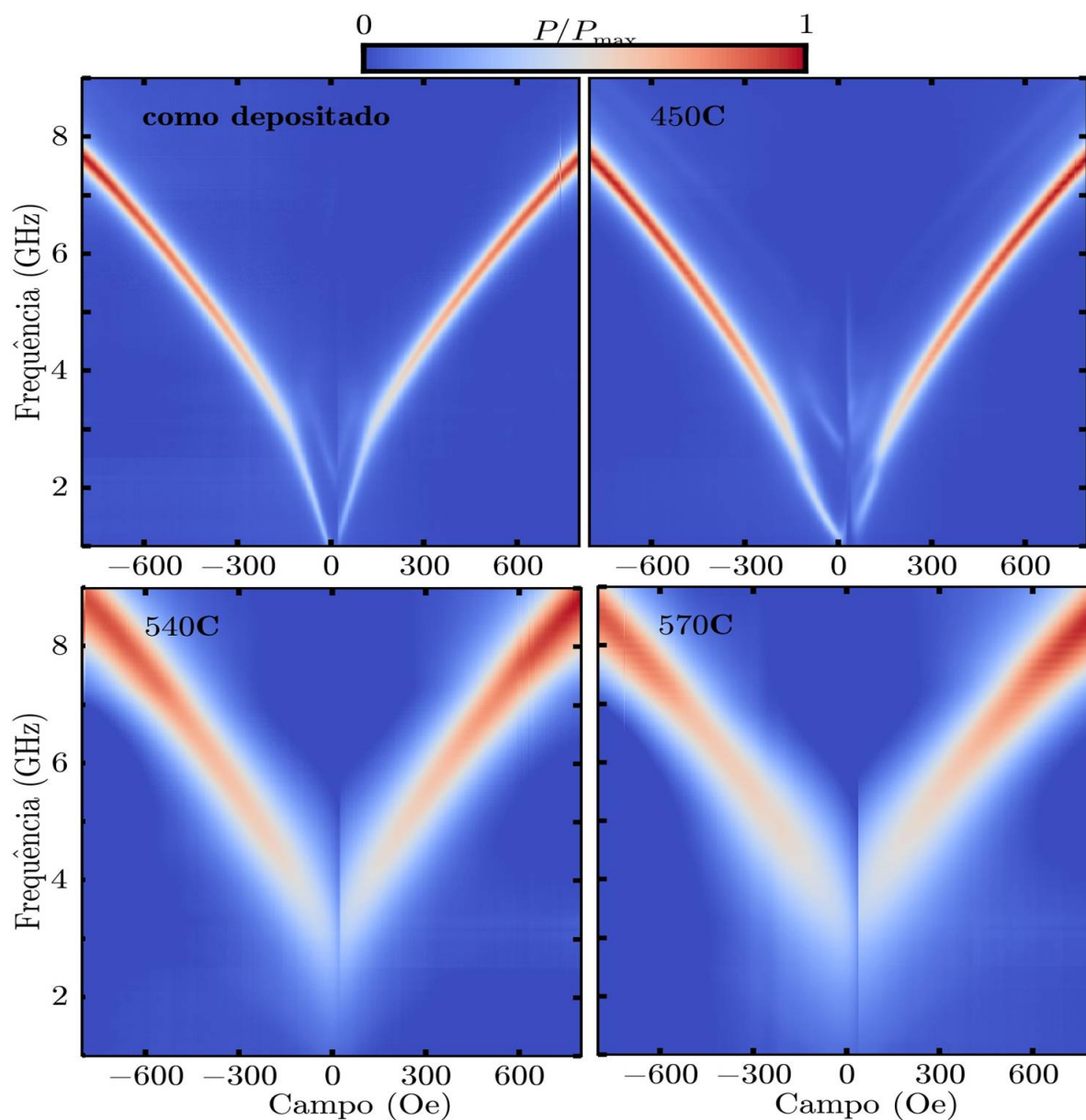


Figura 6.17: dinâmica da magnetização amostra com espessura de 200nm

Bulk com uma distribuição aleatória da anisotropia magnetocristalina. Assim, a variação da contribuição (ΔH_{INO}) e da contribuição (ΔH_{TMS}) com o tratamento térmico ocorre devido a evolução da deformação não homogênea e ao crescimento de grãos sob stress não uniforme com o tratamento térmico. Na seção seguinte iremos descrever com mais detalhes os processos de relaxação e alargamento da largura de linha, os quais são analisados a partir do comportamento da largura de linha de FMR e das relações de dispersão.

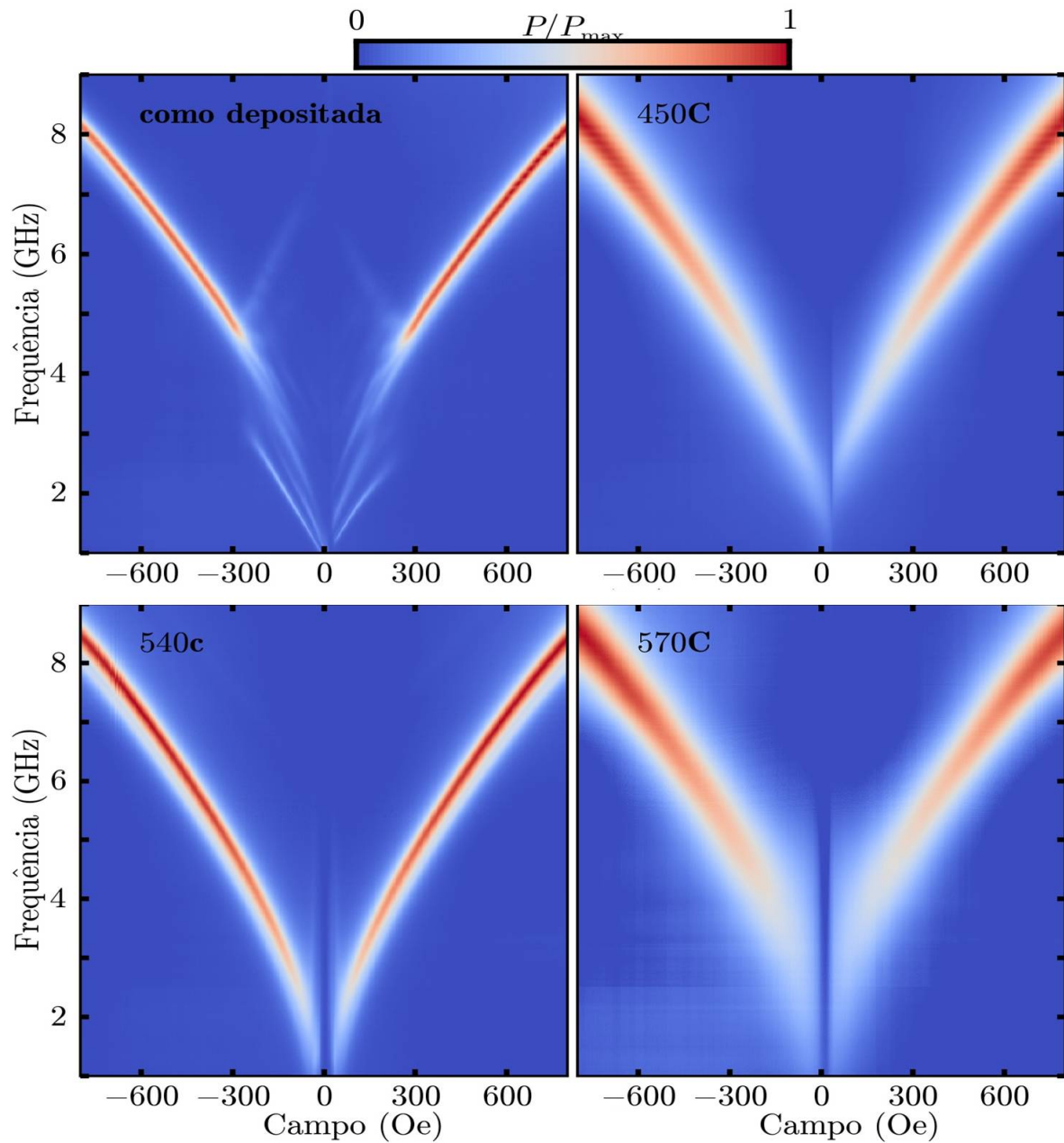


Figura 6.18: dinâmica da magnetização amostra com espessura de 500nm

6.3.2 Caracterização dos Processos de Relaxação e alargamento da largura de linha de FMR

As largura de linha de FMR e as relações de dispersão de todas as amostras foram obtidas pelos ajustes dos perfis de absorção de FMR, os quais são extraídos dos espectro de absorção de FMR, conforme exemplo da Figura 6.19. De forma que a relação de dispersão é determinada pela relação entre as coleções de frequências de excitação e os

centro do picos de absorção de FMR ajustados nessas frequências e com esses ajustes também se determina a largura de linha de FMR em função da frequência de excitação $\Delta H_{EXP}(f)$.

No caso das amostras estudadas nessa tese temos que a largura de linha devido a não homogeneidade do campo efetivo (ΔH_{INO}) é sempre comparável às outras contribuições a largura de linha (ΔH_G e ΔH_{TMS}) ou mesmo a principal contribuição a largura de linha de FMR experimental (ΔH_{EXP}). De forma que foi necessário que os ajustes dos picos de absorção de FMR (conforme exemplo visto na figura 6.19) fossem realizados com uma função Voigt [82], a qual é uma convolução da função lorentziana com a função gaussiana. Seguindo essa abordagem temos que a largura de linha devido a contribuição lorentziana $\Delta H_{Lorentz}$ determina as contribuições associadas ao processo de espalhamento dois magnons ΔH_{TMS} e ao amortecimento de Gilbert ΔH_G da seguinte forma

$$\Delta H_L = \Delta H_{TMS} + \Delta H_G, \quad (6.1)$$

enquanto que a largura de linha devido a contribuição gaussiana ΔH_{Gauss} é igual a contribuição associada a não homogeneidade do campo efetivo da $\Delta H_{Gauss} = \Delta H_{INO}$ e assim a largura de linha de FMR total ΔH_{TOT} é dada da seguinte forma [82]

$$\Delta H_{TOT} = \frac{(\Delta H_{INO})^2 + 0.909\Delta H_{INO}\Delta H_{Lorentz} + 0.462(\Delta H_{Lorentz})^2}{\Delta H_{INO} + 0.462\Delta H_{Lorentz}}. \quad (6.2)$$

No caso das amostras de 100 nm podemos observar os resultados dos ajustes dos perfis de absorção de FMR nas figuras 6.20 e 6.21, onde observamos, respectivamente, a evolução das relações de dispersão e da largura de linha de FMR com o tratamento térmico. As relações de dispersão na figura 6.20 foram bem ajustadas, na faixa de 2.5 GHz a 6.0 GHz, com a seguinte relação de Kittel

$$f_r = \frac{|\gamma|}{2\pi} \sqrt{(H_{FMR}(H_{FMR} + 4\pi M_s))}, \quad (6.3)$$

de forma que nesses ajustes foi utilizado $|\gamma|/2\pi = 2.8\text{MHz/Oe}$ e obtido a indução de

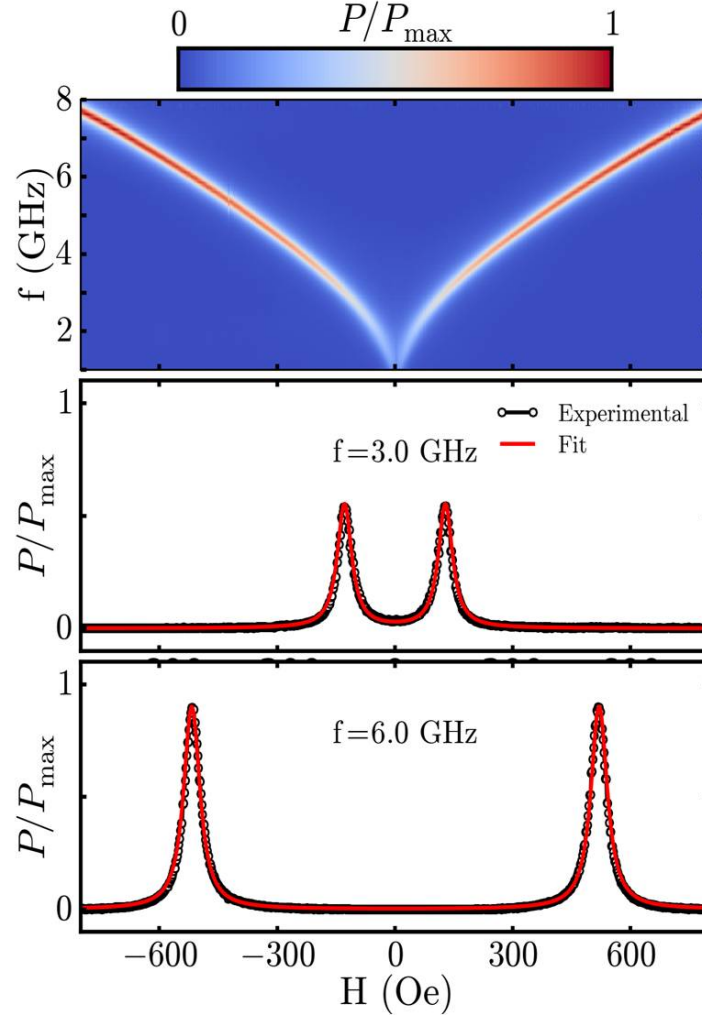


Figura 6.19: Espectro de absorção de FMR da amostra de 100 nm com o perfil de absorção de FMR para as frequências de 3 GHz e 6 GHz e seus respectivos ajustes

saturação $4\pi M_s$. A evolução das largura de linha de FMR com o tratamento térmico é mostrado na figura 6.21, onde podemos observar para cada amostra a largura de linha de FMR experimental (ΔH_{EXP}), a largura de linha de FMR calculada (ΔH_{TOT}) e suas contribuições (ΔH_G , ΔH_{INO} e ΔH_{TMS}) em função da frequência de excitação. De forma que as larguras experimentais ΔH_{EXP} foram obtidas pelos ajustes com a função voigt, conforme exemplo da figura 6.19, e a largura de linha calculada ΔH_{TOT} é o resultado da relação 6.2 entre as contribuições ΔH_G , ΔH_{INO} e ΔH_{TMS} descritas no capítulo 4, onde a contribuição ΔH_{TMS} é a função desenvolvida por Pavol et al [52] para filmes finos policristalinos dada da seguinte forma

$$\Delta H_{TMS} = \frac{|\gamma| H_A^2 \xi^2}{P_A(\omega)} \int \Lambda_{0k} C_k(\xi) \delta(\omega - \omega_k) d^2 k, \quad (6.4)$$

Tabela 6.1: Parâmetros usados no cálculo de ΔH_{TMS} para as amostras de 100 nm.

T_A (°C)	A ($\times 10^{-6}$ erg/cm)	$4\pi M_s$ (kG)	H_A (Oe)
As prepared	0.29	8.35	29
100	0.34	7.71	46
150	0.35	7.91	33
200	0.34	8.64	38
250	0.27	8.58	33
350	0.35	8.79	54
400	0.34	8.48	48
450	0.75	13.48	154
Max. error	-	± 0.05	-

a qual foi resolvida numericamente conforme descrito no capítulo 4.

Os ajustes da larguras de linhas de FMR em função da frequência de excitação das amostras de 100 nm observadas na figura 6.21 (ΔH_{TOT}) é o resultado da equação 6.2 combinada com a largura de linha TMS dada pela equação 6.4, a largura de linha independente da frequência devido a não homogeneidade do campo efetivo ΔH_{INO} e a largura de linha determinada pelo processo de relaxação de Gilbert ΔH_G que tem a seguinte forma

$$\Delta H_G = \frac{4\pi\alpha f}{|\gamma|}, \quad (6.5)$$

de forma que a largura de linha ΔH_{TMS} (Equação 6.4) foi calculada usando o tamanho de grão ξ obtido pelas análises de raios x e a indução de saturação $4\pi M_s$ foi obtida pelos ajustes das relações de dispersão mostrados na figura 6.20 que foram realizados com a relação de Kittel (equação 6.3), enquanto que a constante de troca A e H_A foram escolhidos para reproduzir as características observadas na largura de linha de FMR experimental ΔH_{EXP} . Esses parâmetros estão resumidos nas tabelas 6.1 e 6.2.

As larguras de linha de FMR das amostras de 100 nm sem tratamento e tratadas na faixa de temperaturas 100° C a 400° C, ver figura 6.21, mostram que a contribuição de Gilbert ΔH_G é maior que a contribuição dois mágnons ΔH_{TMS} na faixa de frequência estudada. E a constante de amortecimento de Gilbert alcança um mínimo de $\alpha = (3.2 \pm 0.3) \times 10^{-3}$ depois de um tratamento térmico a $T_A = 250^\circ\text{C}$, tal efeito pode está relacionado com uma homogeneização da distribuição de grãos que pode ter ocorrido

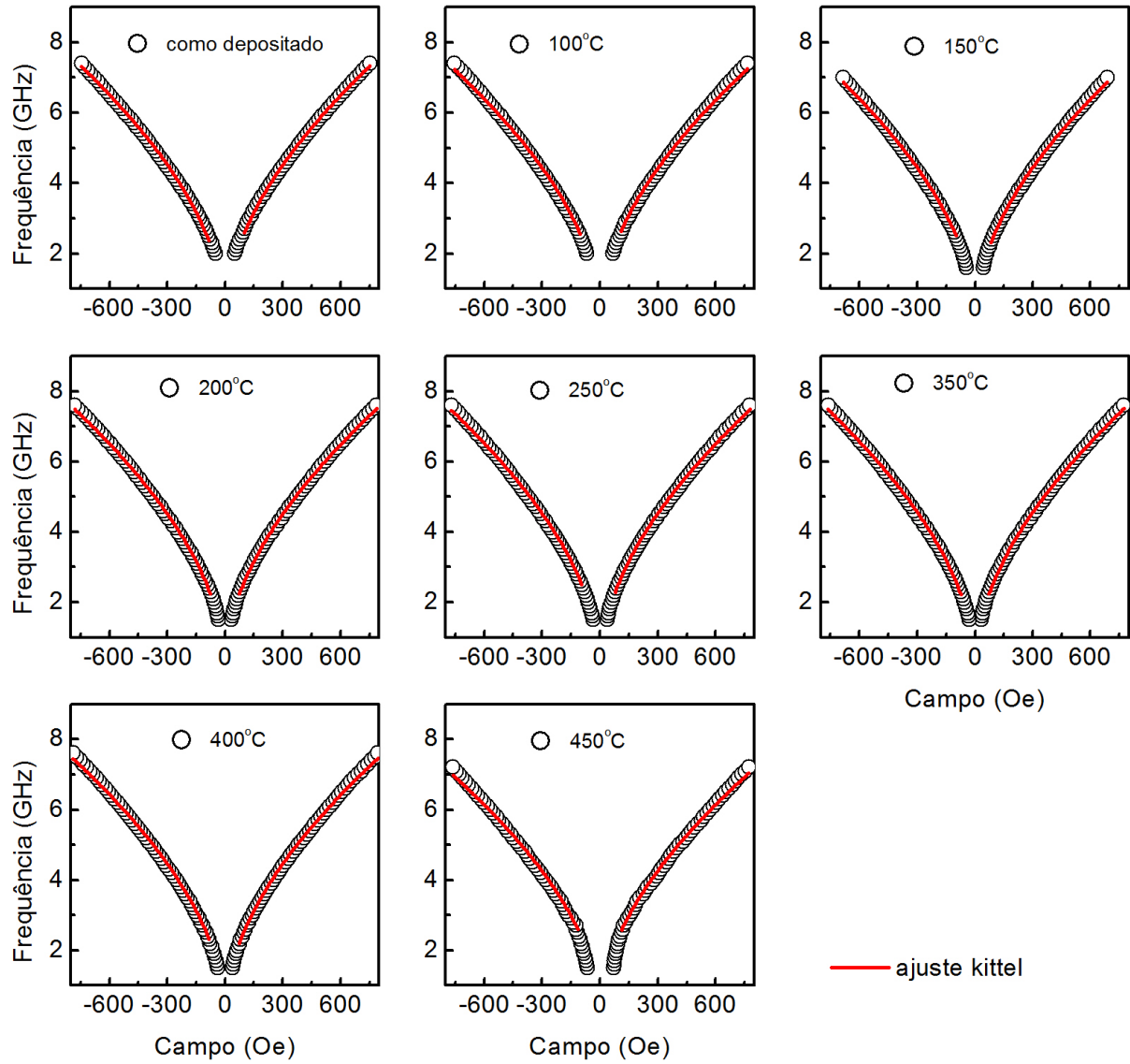


Figura 6.20: Relação de dispersão das amostra com espessura de 100nm com ajustes realizado com a relação de Kittel

Tabela 6.2: Parâmetros físicos estruturais e associados a largura de linha de FMR para as amostras de 100 nm

T_A (°C)	ξ (nm)	microdeformação $\times 10^{-2}$	ΔH_{INO} (Oe)	α $\times 10^{-3}$
sem tratamento	5.0	5.6	38.6	3.5
100	4.4	5.4	34.9	5.7
150	6.6	5.3	33.1	3.7
200	5.4	6.0	32.6	5.0
250	4.6	5.3	33.2	3.2
350	2.8	4.2	28.4	4.5
400	3.4	4.6	28.5	6.1
450	8.0	6.7	59.6	6.5
Max. error	± 1	± 0.5	± 1.5	± 0.3

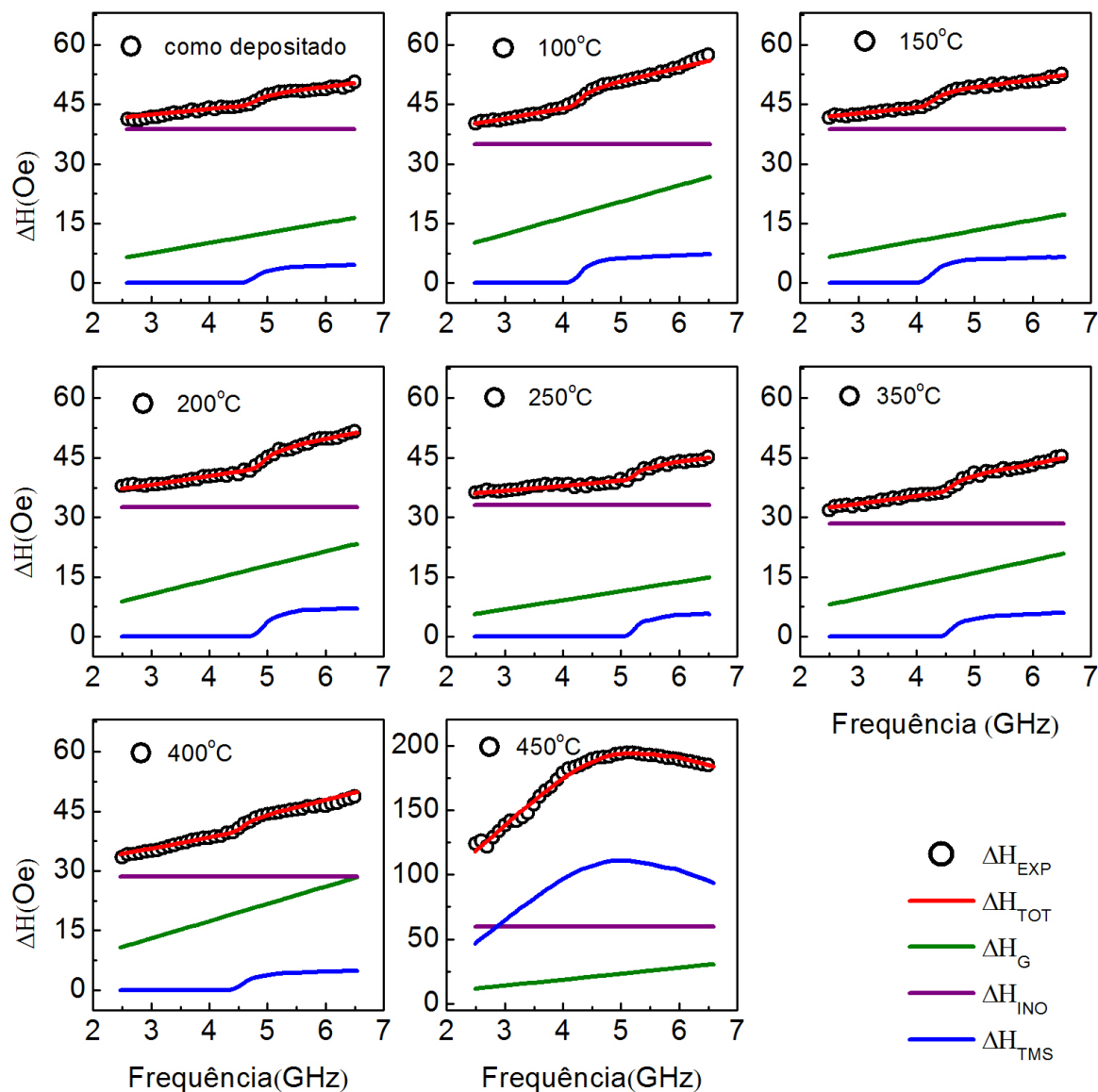


Figura 6.21: Largura de linha de FMR das amostra com espessura de 100nm com o ajuste e as suas contribuições

nessa temperatura de tratamento devido ao alívio de stress. Tal homogeneização reduz a desordem estrutural que consequentemente reduz a influencia do processo de amortecimento de Gilbert, como foi observado na referência [83]. Na figura 6.21 podemos observar que a contribuição ΔH_{INO} é dominante na faixa de 100°C a 400°C, enquanto que com o aumento do tamanho de grão, com o tratamento a 450°C, temos que a contribuição associada ao espalhamento dois mágnons ΔH_{TMS} passa a ser a dominante.

A figura 6.22 mostra a microdeformação e a contribuição da largura de linha devido a não homogeneidade do campo efetivo ΔH_{INO} para os filmes de 100 nm sem tratamento e tratados na faixa de 100°C a 450°C. De forma que com o tratamento térmico a 350°C

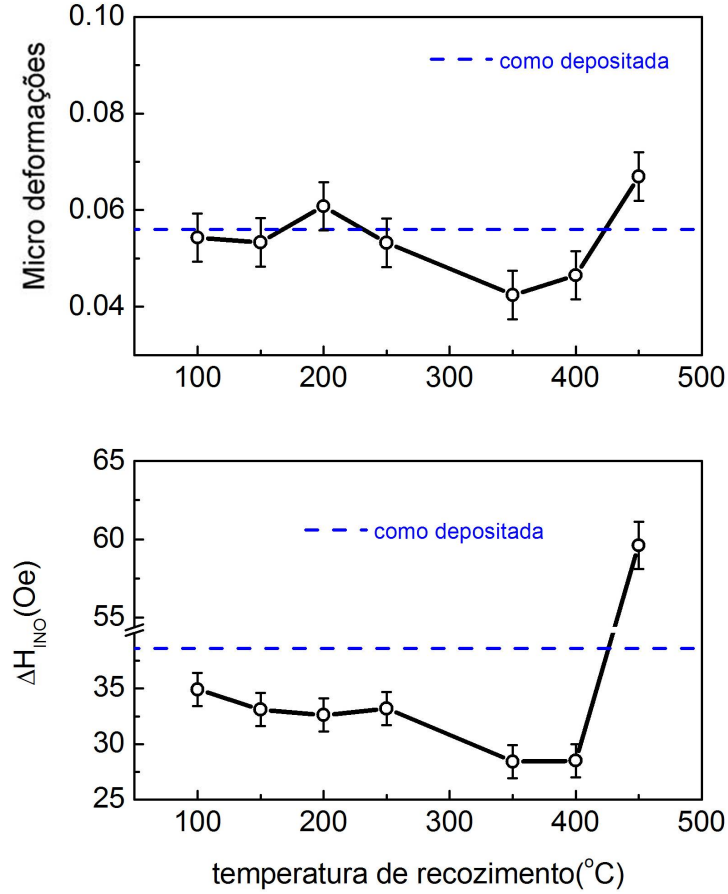


Figura 6.22: Microdeformação e a largura de linha de FMR ΔH_{INO} das amostra com espessura de 100 nm

temos que a largura de linha devido a não homogeneidade ΔH_{INO} decresce para 28 Oe e nessa mesma temperatura de tratamento também observamos que a microdeformação alcança o seu mínimo. E além disso observamos na figura 6.22 uma direta correlação entre ΔH_{INO} e a microdeformação. Tal fato também reflete na coercividade e no campo de anisotropia, os quais alcança um mínimo na temperatura de tratamento 350 °C. Assim, o alívio do stress residual não uniforme não só melhora nesses filmes as suas propriedades magnética estáticas como também reduz a largura de linha de FMR devido a não homogeneidade do campo efetivo. Divulgamos esse resultado na revista *Journal Applied Physics* [84].

As figuras 6.23 e 6.24 mostram os resultados dos ajustes dos perfis de absorção de FMR das amostras de 200 nm , onde podemos observamos, respectivamente, a evolução das relações de dispersão e da largura de linha de FMR com o tratamento térmico. A evolução das largura de linha de FMR com o tratamento térmico é mostrado na figura

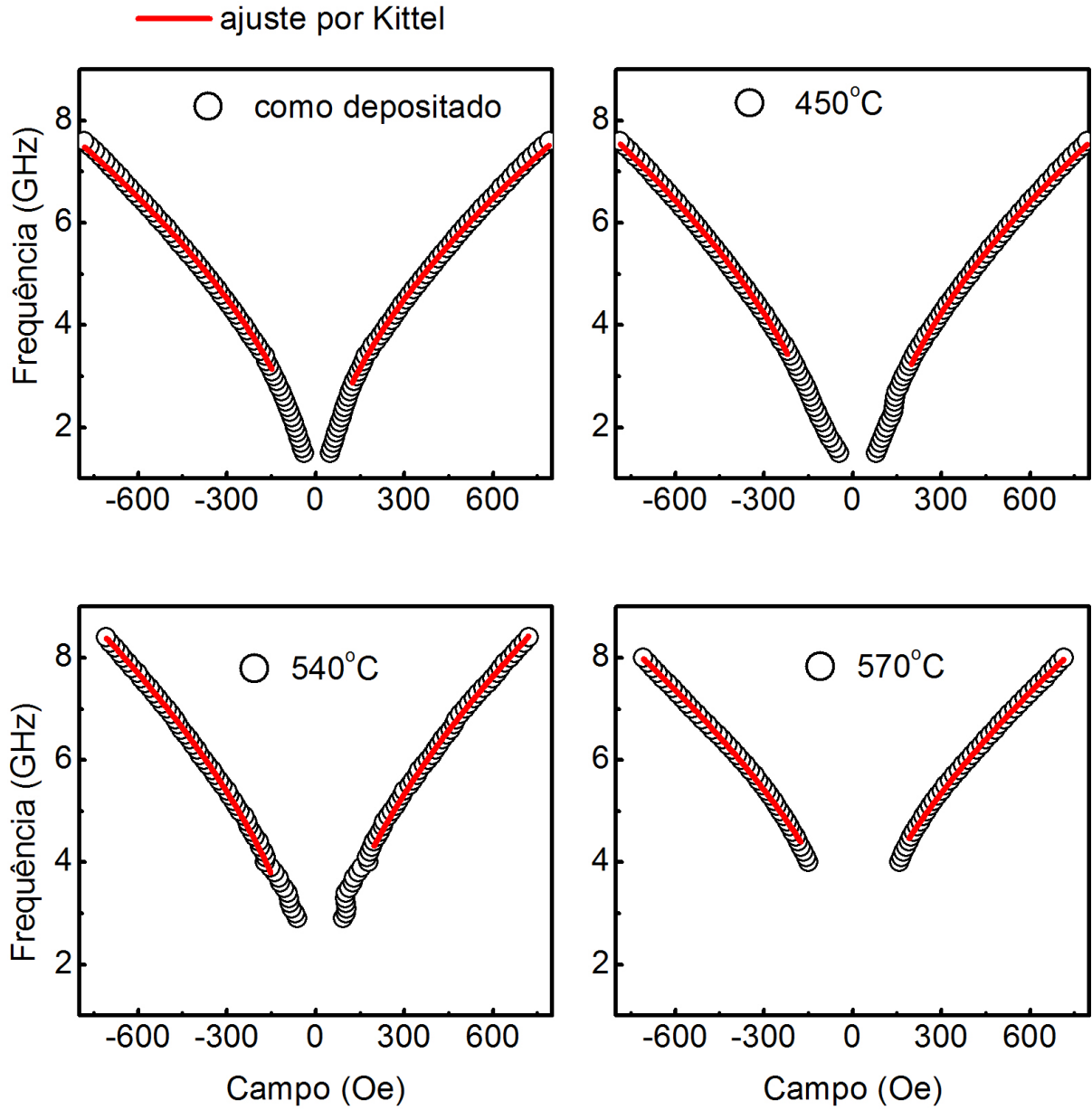


Figura 6.23: Relação de dispersão das amostra com espessura de 100nm

6.24, onde podemos observar para cada amostra a largura de linha de FMR experimental (ΔH_{EXP}), a largura de linha de FMR calculada (ΔH_{TOT}) e suas contribuições (ΔH_G , ΔH_{INO} e ΔH_{TMS}) em função da frequência de excitação. De forma que a largura de linha calculada ΔH_{TOT} é a soma de suas contribuições ΔH_G , ΔH_{INO} e ΔH_{TMS} descritas no capítulo 4, onde a contribuição ΔH_{TMS} é a função desenvolvida por Schlomann [70] para amostras *Bulk* em que a fonte do espalhamento dos magnons é a dispersão da

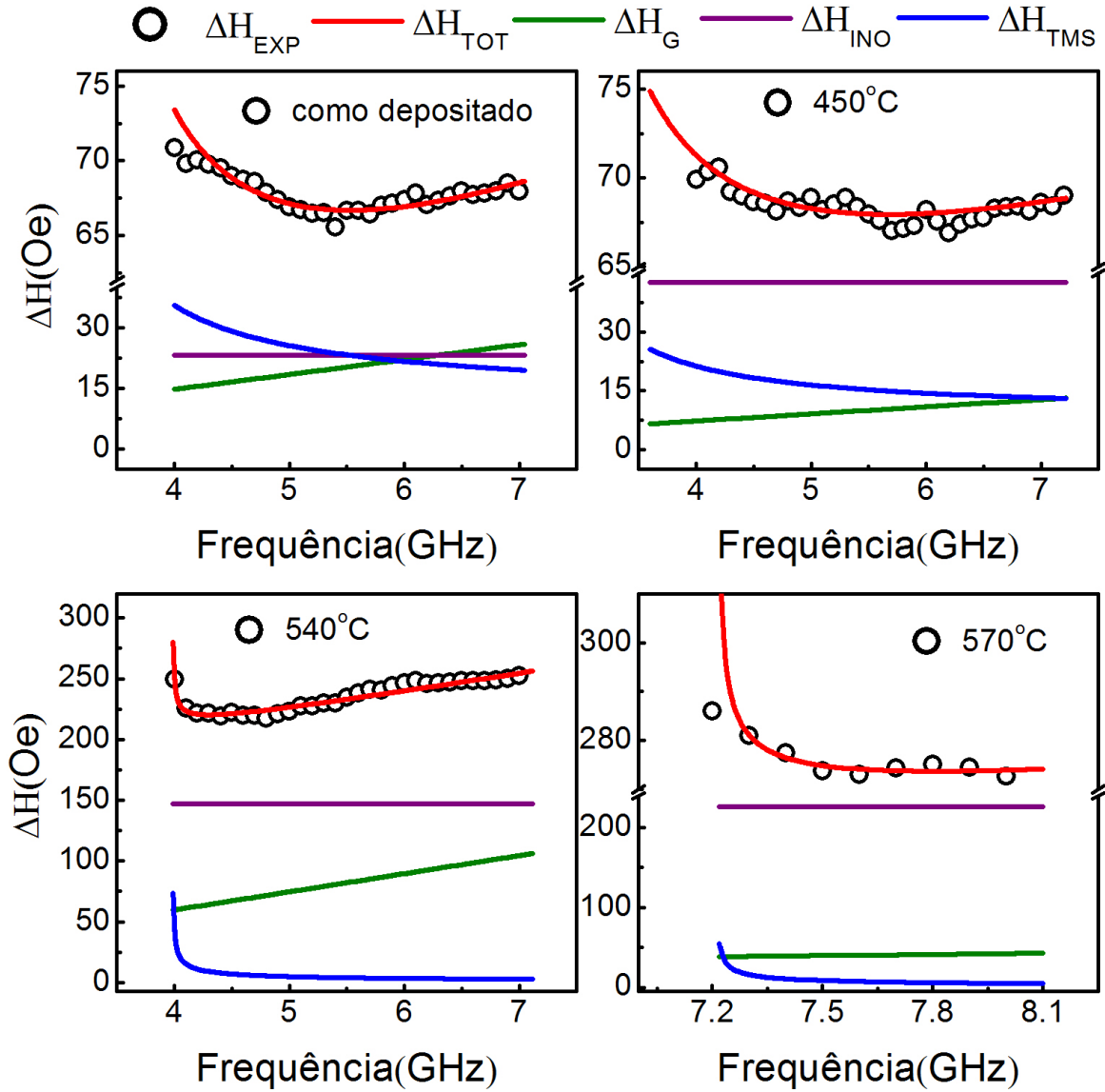


Figura 6.24: Largura de linha de FMR obtida a partir do ajuste do espectro de absorção de FMR da amostra de 200 nm e suas contribuições

anisotropia, tal função tem a seguinte forma

$$\Delta H_{TMS} = \frac{8\pi\sqrt{3}}{21} \frac{H_A^2}{4\pi M_s} \frac{\left(\frac{\omega}{\omega_M}\right)^2 - \frac{\omega}{3\omega_M} + \frac{19}{360}}{\sqrt{\left(\frac{\omega}{\omega_M} - \frac{1}{3}\right)^3 \left(\frac{\omega}{\omega_M} - \frac{2}{3}\right)}}, \quad (6.6)$$

com $\omega_M = |\gamma|4\pi M_s$.

Os ajustes da larguras de linhas de FMR em função da frequência de excitação das amostras de 200 nm observadas na figura 6.24 (ΔH_{TOT}) é o resultado da combinação da largura de linha de TMS da equação 6.6 com a largura de linha de Gilbert ΔH_G

Tabela 6.3: Parâmetros estruturais e associados a largura de linha de FMR para as amostras de 200 nm

T_A (°C)	$4\pi M_s$ (kG)	microdeformação $\times 10^{-2}$	ΔH_{INO} (Oe)	α $\times 10^{-3}$
sem tratamento	8.30	5.0	23.2	0.8
450	9.10	4.0	42.7	0.4
540	11.83	5.7	147.2	3.3
570	9.50	8.1	226.1	1.2
Max. error	± 0.05	± 0.5	± 1.5	± 0.3

da equação 6.5 e a largura de linha independente da frequência ΔH_{INO} . As relações de dispersão na figura 6.23 foram bem ajustadas, na faixa de 4.0 GHz a 7.0 GHz, com a relação de Kittel da equação 6.3, de forma que nesses ajustes foi utilizado $|\gamma|/2\pi = 2.8\text{MHz/Oe}$ e obtido a indução de saturação $4\pi M_s$. De forma que os parâmetros obtidos pelos ajustes e os parâmetros estruturais são listados na tabela 6.3.

A largura de linha de FMR experimental ΔH_{EXP} da amostra de 200 nm sem tratamento, observada na figura 6.24, é descrita pelas contribuições ΔH_{INO} , ΔH_{TMS} e ΔH_G , que têm a mesma ordem de grandeza dentro da faixa de frequência estudada. No entanto, com o tratamento térmico, observamos que a largura de linha devido a não homogeneidade do campo efetivo ΔH_{INO} torna-se a principal contribuição. E a constante de amortecimento de Gilbert alcança um mínimo de $\alpha = (0.4 \pm 0.3) \times 10^{-3}$ depois de um tratamento térmico a $T_A = 450^\circ\text{C}$, tal efeito pode está relacionado com uma homogeneização da distribuição de grãos que ocorre antes do início da cristalização da segunda fase [80]. Na tabela 6.3 observamos que com o tratamento térmico a microdeformação da fase amorfa determina a largura de linha de FMR devido a não homogeneidade, de forma que com o aumento da temperatura do tratamento para $T_A = 570^\circ\text{C}$ a microdeformação aumenta para $\epsilon = 8.1 \times 10^{-3}$ e a largura de linha devido a não homogeneidade ΔH_{INO} aumenta para 226 Oe. E assim observamos que também para essa espessura de 200 nm o stress residual não uniforme determina o nível de alargamento da largura de linha de FMR devido a não homogeneidade ΔH_{INO} .

No caso das amostras de 500 nm podemos observar os resultados dos ajustes dos perfis de absorção de FMR nas figuras 6.25 e 6.26, onde é mostrado, respectivamente, a evolução das relações de dispersão e da largura de linha de FMR com o tratamento térmico. A

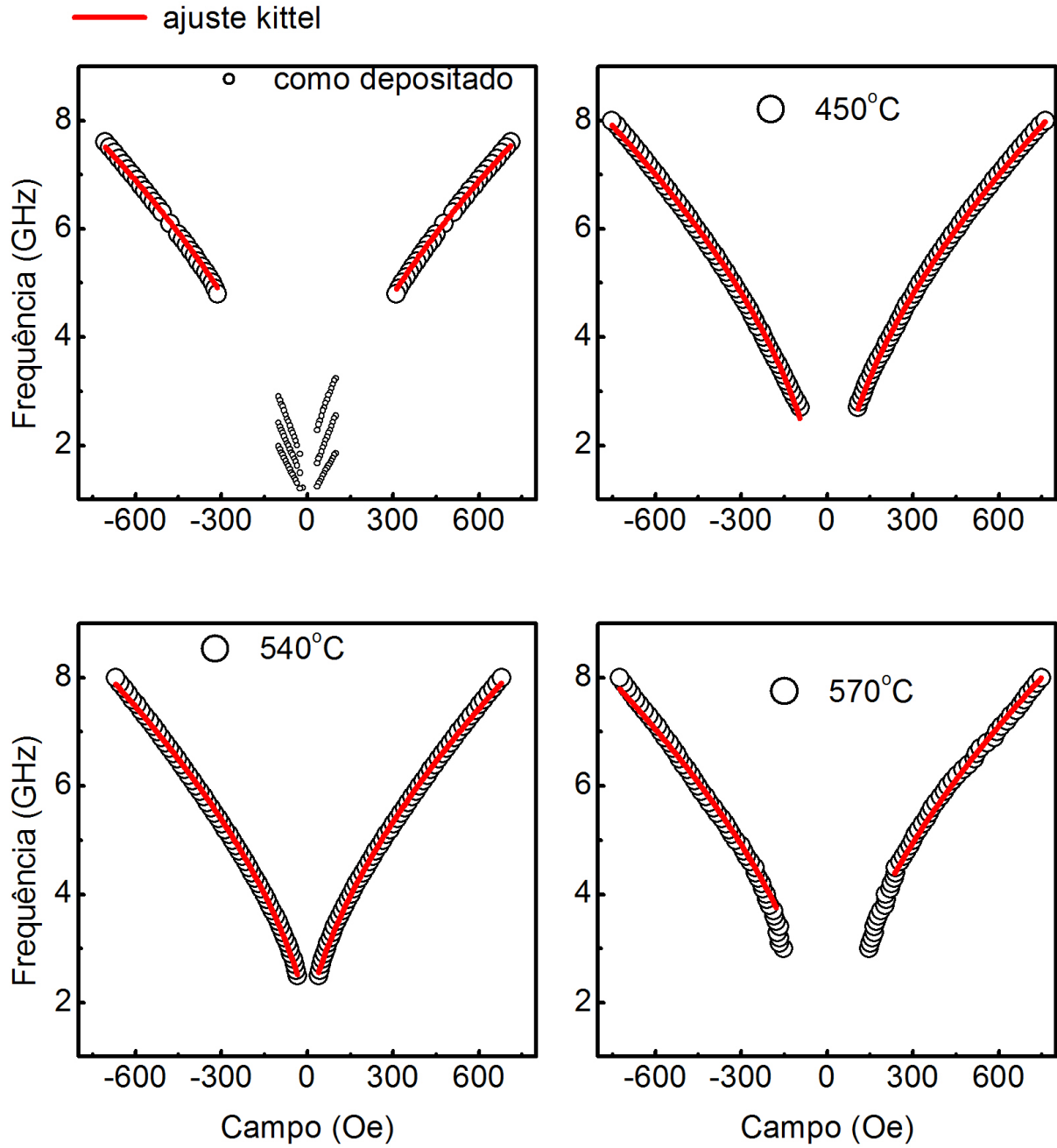


Figura 6.25: Relação de dispersão das amostra com espessura de 100nm

evolução das largura de linha de FMR com o tratamento térmico é mostrado na figura 6.26, onde podemos observar para cada amostra a largura de linha de FMR experimental (ΔH_{EXP}), a largura de linha de FMR calculada (ΔH_{TOT}) e suas contribuições (ΔH_{INO} e ΔH_{TMS}) em função da frequência de excitação. De forma que a largura de linha calculada ΔH_{TOT} é a soma de suas contribuições ΔH_{INO} e ΔH_{TMS} descritas no capítulo 4, onde a contribuição ΔH_{TMS} é determinada pela equação 6.6.

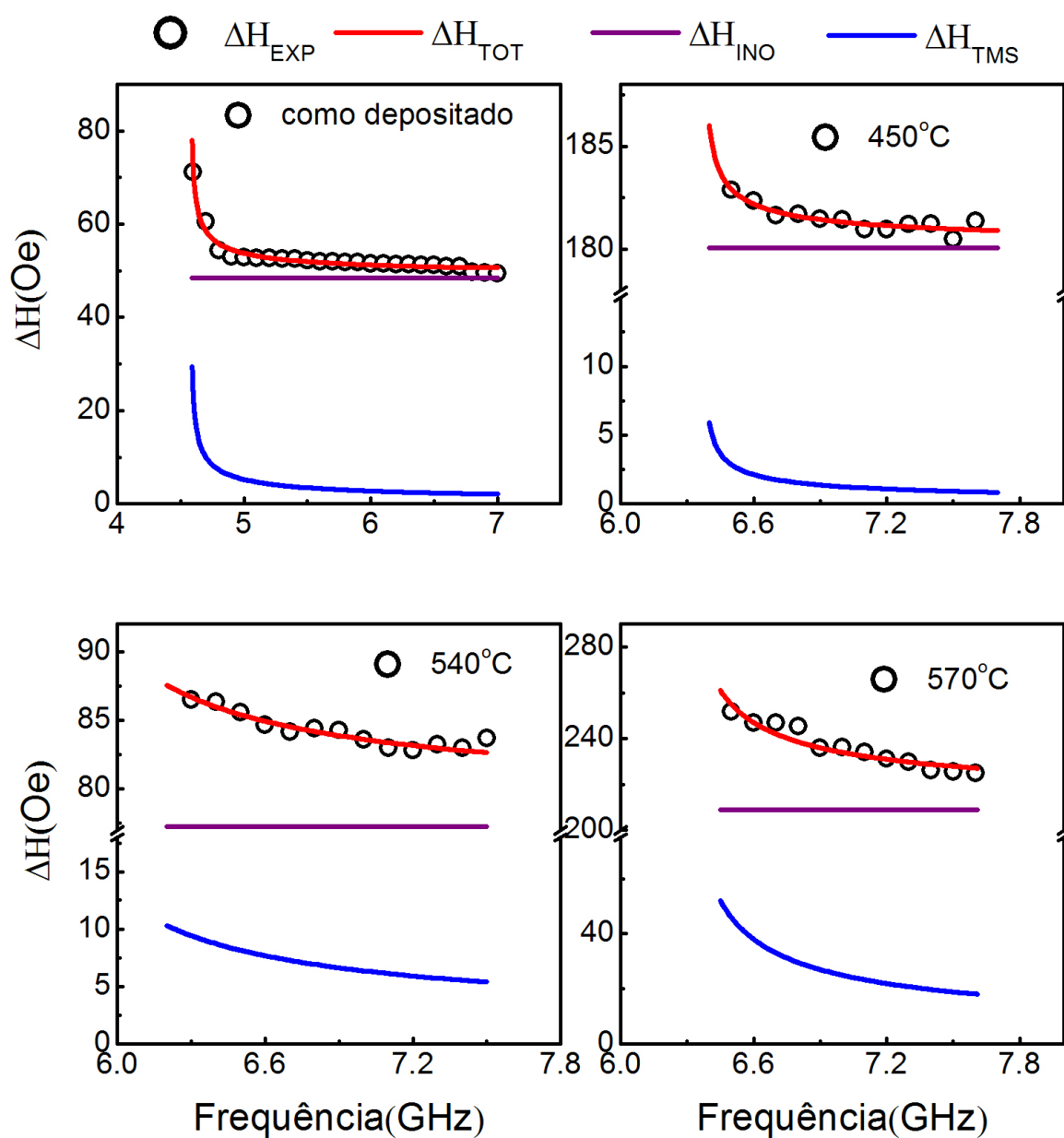


Figura 6.26: Largura de linha de FMR obtida a partir do ajuste do espectro de absorção de FMR da amostra de 500 nm e suas contribuições

Tabela 6.4: Parâmetros físicos estruturais e associados a largura de linha de FMR para as amostras de 500 nm

T_A (°C)	$4\pi M_s$ (kG)	microdeformação $\times 10^{-2}$	ΔH_{INO} (Oe)
sem tratamento	9.40	2.4	48.5
450	10.27	7.0	180.1
540	10.40	6.6	77.3
570	9.98	7.6	209.1
Max. error	± 0.05	± 0.5	± 1.5

Os ajustes da larguras de linhas de FMR em função da frequência de excitação das amostras de 500 nm observadas na figura 6.26 (ΔH_{TOT}) é o resultado da combinação da largura de linha de TMS da equação 6.6 com a largura de linha independente da frequência ΔH_{INO} , de forma que não observamos a contribuição de Gilbert para essa espessura de filme. As relações de dispersão na figura 6.25 foram bem ajustadas, na faixa de 4.5 GHz a 7.0 GHz, com a relação de Kittel da equação 6.3, de forma que nesses ajustes foi utilizado $|\gamma|/2\pi = 2.8\text{MHz/Oe}$ e obtido a indução de saturação $4\pi M_s$. Os parâmetros obtidos pelos ajustes e os parâmetros estruturais relacionados são listados na tabela 6.4.

A largura de linha de FMR experimental ΔH_{EXP} da amostra de 500 nm sem tratamento, observada na figura 6.26, é descrita pelas contribuições ΔH_{INO} e ΔH_{TMS} , onde observamos que a largura de linha devido a não homogeneidade do campo efetivo ΔH_{INO} é a principal contribuição dentro da faixa de frequência estudada. E o mecanismo de relaxação de Gilbert não contribui para o alargamento da largura de linha de FMR experimental ΔH_{EXP} , tal efeito pode estar relacionada com o aumento da contribuição dois mágnons de amostras tipo *Bulk* que ocorre para esses filmes mais espessos de 500 nm. Na tabela 6.4 observamos que com o tratamento térmico a microdeformação da fase amorfa determina a largura de linha de FMR devido a não homogeneidade, de forma que com o tratamento térmico a $T_A = 450^\circ\text{C}$ a microdeformação aumenta para $\epsilon = 7.0 \times 10^{-3}$ e a largura de linha devido a não homogeneidade ΔH_{INO} também aumenta para 180.1 Oe, enquanto que para tratamento térmico a $T_A = 540^\circ\text{C}$ a microdeformação diminui para $\epsilon = 6.6 \times 10^{-3}$ e a largura de linha ΔH_{INO} também diminui para 77.3 Oe. E para $T_A = 570^\circ\text{C}$ a microdeformação novamente aumenta para $\epsilon = 7.6 \times 10^{-3}$ e a largura de linha ΔH_{INO} também aumenta para 209.1 Oe. E assim observamos que também para essa espessura de 500 nm o stress residual não uniforme e o alargamento da largura de linha de FMR devido a não homogeneidade ΔH_{INO} estão correlacionados. O capítulo seguinte será expostos as conclusões dessa tese e as propostas de futuros trabalhos.

Capítulo 7

Conclusões e Perspectivas

O presente trabalho se concentrou na caracterização estrutural e magnética de filmes finos do tipo Finemet a partir da cristalização parcial de filmes com composição $\text{Fe}_{73.5}\text{Nb}_3\text{Cu}_1\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$. Os filmes foram produzidos por *RF Magnetron Spputtering* com espessuras de 100 nm, 200 nm e 500 nm e foram submetidos a tratamento térmico em forno convencional sob alto vácuo por 1 hora. As propriedades estruturais foram investigadas por Difração de Raios-X na geometria de incidência rasante (GIXRD), enquanto que as propriedades magnéticas foram determinadas por medidas de curvas de histerese e de absorção de FMR em banda larga. As curvas de histerese foram obtidas a partir de um magnetômetro de Amostra Vibrante (VSM) e as medidas de absorção de FMR foram obtidas por experimento de absorção de FMR em banda larga com um analisador de rede vetorial.

As amostras de 100 nm mostraram que a microdeformação (ϵ) e o tamanho de grão (ξ) alcançam um mínimo de $\epsilon = 4.2 \times 10^{-2}$ e $\xi = 2.8$ nm para tratamento térmico a temperatura de $T_A = 350^\circ\text{C}$. Observamos que o início da cristalização de uma segunda fase ocorre a $T_A = 450^\circ\text{C}$ a qual tem $\xi = 8$ nm e $\epsilon = 3.1 \times 10^{-3}$, enquanto que observa-se um aumento da microdeformação da fase mais amorfa para $\epsilon = 6.7 \times 10^{-2}$. O decréscimo da microdeformação a $T_A = 350^\circ\text{C}$ está associada ao alívio do stress causado pela diferença de expansão térmica entre o substrato e o filme. O decréscimo da microdeformação da fase amorfa para a $T_A = 540^\circ\text{C}$ está associado ao alívio de stress que o crescimento de grão proporciona ao competir com o stress compressivo gerado pela diferença de expansão

térmica.

A amostra de 200 nm sem tratamento mostrou uma microdeformação de $\epsilon = 5.0 \times 10^{-2}$ e tamanho de grão de $\xi = 3.0$ nm. Somente a partir de $T_A = 500^\circ\text{C}$ observamos o surgimento de uma segunda fase mais cristalinas com tamanho de grão de $\xi = 13.7$ nm e microdeformação de $\epsilon = 4.0 \times 10^{-3}$, que deforma a fase mais amorfa com uma microdeformação de $\epsilon = 7.6 \times 10^{-2}$. Com o aumento do tamanho de grão da fase mais cristalina para $\xi = 20.3$ nm, a $T_A = 540^\circ\text{C}$, observa-se uma redução da microdeformação da fase mais amorfa para $\epsilon = 5.7 \times 10^{-2}$. Tal efeito deve-se à redução de defeito e/ou contornos de grão na fase amorfa com o crescimento do grão. Para $T_A = 570^\circ\text{C}$ observa-se que o tamanho de grão volta reduzir para $\xi = 15.3$ nm, e isto está relacionado com a supressão de crescimento de grão gerado por deformação compressiva causada pela diferença de expansão térmica entre o substrato e o filme. Considerando o parâmetro de rede observamos que a $T_A = 570^\circ\text{C}$ há uma separação entre uma fase mais amorfa de boretos de Ferro ou $\alpha\text{-Fe}_{1-x}\text{Si}_x$ com alta concentração de silício e uma fase mais cristalina $\alpha\text{-Fe}_{1-x}\text{Si}_x$ com baixa quantidade de silício.

A amostra de 500 nm sem tratamento mostrou uma microdeformação de $\epsilon = 2.4 \times 10^{-2}$ e tamanho de grão de $\xi = 1.6$ nm. Somente a partir de $T_A = 500^\circ\text{C}$ observamos o surgimento de uma segunda fase mais cristalinas com tamanho de grão de $\xi = 15.0$ nm e microdeformação de $\epsilon = 2.0 \times 10^{-3}$, que altera a fase mais amorfa com uma microdeformação de $\epsilon = 9.0 \times 10^{-2}$. Com o aumento do tamanho de grão da fase mais cristalina para $\xi = 18.6$ nm, a $T_A = 540^\circ\text{C}$, observa-se uma redução da microdeformação da fase mais amorfa para $\epsilon = 6.6 \times 10^{-2}$. Tal efeito deve-se à redução de defeito e/ou contornos de grão na fase amorfa com o crescimento do grão. Para $T_A = 570^\circ\text{C}$ observa-se que há um aumento do tamanho de grão em ambas as fases.

Considerando a amostra de 500 nm, observamos que o processo de cristalização é determinado somente pela temperatura de tratamento. Isso ocorre devido a espessura do filme, pois, o maior volume de grãos cristalizando induz um aumento da deformação extensiva causada pelo crescimento do grão, e essa deformação extensiva compensa o efeito da deformação compressiva causada pela diferença de expansão térmica entre o

substrato e o filme. Considerando o parâmetro de rede, observamos que a $T_A = 500^\circ\text{C}$ e a $T_A = 540^\circ\text{C}$ há uma separação entre uma fase mais amorfa de $\alpha\text{-Fe}$ e uma fase mais cristalina $\alpha\text{-Fe}_{1-x}\text{Si}_x$, o que nos levou a concluir que para essas temperaturas de tratamento obtivemos filmes nanocristalinos do tipo Finemet.

Considerando as amostras de 100 nm observamos que é alcançado um mínimo de $H_C = 2.8\text{ Oe}$ e $H_A = 7.5\text{ Oe}$ para tratamento a $T_A = 350^\circ\text{C}$. Com o início da cristalização de uma segunda fase a $T_A = 450^\circ\text{C}$ observa-se um aumento da coercividade para $H_C = 13.6\text{ Oe}$ e do campo de anisotropia para $H_A = 29.25\text{ Oe}$. O mínimo da coercividade e da anisotropia a $T_A = 350^\circ\text{C}$ se deve ao alívio do stress não uniforme causado pela diferença de expansão térmica entre o substrato e o filme. Com o aumento da temperatura de tratamento para $T_A = 450^\circ\text{C}$ e $T_A = 540^\circ\text{C}$ observamos um aumento da coercividade e da anisotropia, que se deve ao crescimento do tamanho de grão e à deformação compressiva causada pela diferença de expansão entre o substrato e o filme.

Nos filmes com espessura de 200 nm observamos que a amostra sem tratamento mostrou um $H_C = 18.4\text{ Oe}$ e $H_A = 67.3\text{ Oe}$. Observamos um aumento da coercividade e da anisotropia para $H_C = 23.6\text{ Oe}$ e $H_A = 104\text{ Oe}$ a $T_A = 450^\circ\text{C}$. Com o início da cristalização de uma segunda fase a $T_A = 500^\circ\text{C}$ observa-se um aumento da coercividade para $H_C = 45.1\text{ Oe}$ e do campo de anisotropia para $H_A = 115\text{ Oe}$, os quais voltam a aumentar para $H_C = 58.6\text{ Oe}$ e $H_A = 197\text{ Oe}$ a $T_A = 540^\circ\text{C}$. Para $T_A = 570^\circ\text{C}$ observa-se uma redução da coercividade e da anisotropia para $H_C = 38.5\text{ Oe}$ e $H_A = 45\text{ Oe}$. Um aumento de H_C e H_A a $T_A = 450^\circ\text{C}$ se deve ao stress causado pela diferença de expansão térmica entre o substrato e o filme. Com a cristalização, a coercividade e a anisotropia é determinada pelo tamanho de grão o qual, por sua vez, é controlado pelo nível de stress compressivo.

Nos filmes com espessura de 500 nm observamos que a amostra sem tratamento mostrou uma $H_C = 19.2\text{ Oe}$ e $H_A = 172.5\text{ Oe}$. Observamos uma redução da coercividade e da anisotropia para $H_C = 4.5\text{ Oe}$ e $H_A = 23.7\text{ Oe}$ a $T_A = 450^\circ\text{C}$. Com o início da cristalização de uma segunda fase a $T_A = 500^\circ\text{C}$ observa-se uma redução da coercividade para $H_C = 1.5\text{ Oe}$ e do campo de anisotropia para $H_A = 16.1\text{ Oe}$, os quais voltam a

aumentar para $H_C = 1.7$ Oe e $H_A = 20.1$ Oe a $T_A = 540^\circ\text{C}$. Em $T_A = 570^\circ\text{C}$ observa-se um aumento da coercividade para $H_C = 17.8$ Oe, enquanto que a anisotropia diminui para $H_A = 11.6$ Oe. A redução da coercividade e do campo de anisotropia na faixa de temperatura de $T_A = 450^\circ\text{C}$ a $T_A = 540^\circ\text{C}$ se deve à nucleação e ao crescimento de grãos que alivia o stress causado pela deformação compressiva gerada pela diferença de expansão térmica entre o substrato e o processo de deposição.

Observamos que os mecanismos de relaxação estão relacionados com o tratamento térmico e a espessura dos filmes. A amostra de 100 nm sem tratamento térmico tem os mecanismo de relaxação de Gilbert e espalhamento dois magnons da mesma ordem, enquanto que aumentando a espessura para 200 nm e 500 nm observamos que a contribuição dois mágnons passa a ser predominante em relação a contribuição de Gilbert. Além disso, observamos que para as amostras de 200 nm e 500 nm o comportamento da largura de linha de FMR é determinada por mecanismo de dois mágnons típico de amostras *Bulk*. No caso das amostras de 100 nm, observamos que, na faixa de $T_A = 100^\circ\text{C}$ a $T_A = 400^\circ\text{C}$, a largura de linha de FMR é dominada pelo aumento da largura de linha devido a não homogeneidade do campo efetivo, que é reduzido para $\Delta H_{INO} = 28$ Oe com o alívio de stress não uniforme a $T_A = 350^\circ\text{C}$. Com a cristalização de uma segunda fase a $T_A = 450^\circ\text{C}$ observa-se que a contribuição dois mágnons é predominante. No caso das amostras de 200 nm e 500 nm, observamos que com o aumento da temperatura de tratamento a largura de linha de FMR é dominada pelo alargamento de linha devido a não homogeneidade do campo efetivo, que está relacionada com o nível de stress não uniforme.

Nessa tese investigamos a relação entre o stress residual não uniforme e a largura de linha de FMR. Nós mostramos que o amortecimento de Gilbert tende a ser menos influente com o aumento da espessura nas amostras estudadas, enquanto que a largura de linha devido a não homogeneidade passa a ser predominante com o aumento da espessura do filme. Essa contribuição está relacionada com o stress residual não uniforme que pode ser reduzido com o tratamento térmico apropriado. Assim, o controle do nível de stress não uniforme é uma forma de controlar a largura de linha de FMR em filmes do tipo

Finemet.

7.1 Perspectivas

A investigação dos mecanismos de relaxação e do aumento da largura de linha de FMR mostraram interessantes efeitos com a espessura e o tratamento térmico. Observamos que, para as amostras de 100 nm, a largura de linha devido ao mecanismo de espalhamento dois mágnons ΔH_{TMS} é determinada pela expressão deduzida por Pavol et al [52] para filmes finos. Com aumento da espessura, para 200 nm e 500 nm, observamos uma alteração do comportamento da largura de linha ΔH_{TMS} em função da frequência. De forma que a largura de linha ΔH_{TMS} passa a ser determinada pela expressão proposta por Schlomann [70] que foi obtida para uma amostra *Bulk*. Observamos uma transição de comportamento de filme fino para amostra *Bulk* que precisa ser melhor investigada e uma das nossas perspectivas é investigar sistematicamente o efeito da espessura no comportamento da largura de linha ΔH_{TMS} . Tal investigação será realizada com o depósito de filmes em uma ampla faixa de espessura com a mesma composição estudada nessa tese.

Nossa investigação explorou o efeito do tratamento térmico nos mecanismos de relaxação e o aumento da largura de linha de FMR. Em especial, notamos que a largura de linha ΔH_{INO} foi uma das principais fontes de aumento da largura de linha de FMR. Essa largura de linha ΔH_{INO} , que é independente da frequência de excitação, está relacionada com o nível de stress não uniforme nas amostras, que pode ser reduzido por tratamento térmico. Observamos que o alívio de stress reduziu a largura de linha ΔH_{INO} . O alívio de stress em filmes pode ser realizado por outras rotas, como por exemplo a laminação do filme em multicamadas [49]. Esta rota tem se mostrado interessante para o processo de cristalização de filmes nanocristalinos macios [24]. Assim, pretendemos investigar o efeito da laminação do filme sob o processo de cristalização, o stress e os mecanismos de relaxação e aumento da largura de linha de FMR. Para essa investigação iremos depositar filmes em multicamadas separadas por diferentes metais.

Nessa tese observamos que o stress desenvolve um papel fundamental no processo de cristalização dos filmes induzido pelo tratamento térmico, e que para obter filmes magnético macios é preciso reduzir o nível de stress. O stress é gerado pelo processo

de recobrimento, pela diferença de expansão térmica entre o substrato e o filme e pelo processo de crescimento de grãos. No caso do stress gerado durante a deposição de filmes por *RF Magnetron Sputtering* podemos reduzir o stress pela laminação do filme e pelo ajuste das condições de deposição. No caso do stress gerado pelo tratamento térmico podemos, por exemplo, reduzir o seu efeito com o ajuste da competição entre stress compressivo gerado pela expansão térmica e o stress extensivo gerado pelo crescimento de grão. Assim, o processo de deposição determina o nível de stress das amostras.

O processo de produção dos filmes é extremamente relevante para obter filmes nanocristalinos macios. Pretendemos investigar o efeito das condições de produção dos filmes na estrutura granular, nas propriedades magnéticas quase estática, nos mecanismos de relaxação e no alargamento da largura de linha de FMR. Iremos estudar novas rotas de produção dos filmes estudados nessa tese, com o objetivo de reduzir o efeito do stress gerado. Por exemplo, pretendemos obter filme nanocristalino do tipos Finemet através do processo de deposição, variar os parâmetros de deposição e os parâmetros de tratamento térmico adotados no presente trabalho. Com o intuito de obter filmes nanocristalinos macios com larguras de linhas de FMR mais finas.

A otimização das propriedades magnéticas dos filmes do tipo Finemet é alcançada com uma estrutura granular muito específica, como já discutimos no capítulo 2. Para se obter uma rota de produção desses filmes temos que realizar uma criteriosa caracterização estrutural, pois, dessa forma, podemos determinar parâmetros adequados para a produção desses filmes. Por exemplo, a caracterização estrutural pode ser refinada para se obter, de forma rigorosa, fatores estruturais, tais como textura, fases, distribuição e tamanho dos grãos. Nessa tese observamos que esses parâmetros são importantes para analisar o efeito de uma rota de produção na estrutura granular de filmes do tipo Finemet. Assim, pretendemos analisar esses parâmetros por um estudo de microscopia eletrônica em conjunto com a análise de raios x.

Iremos determinar a textura com a análise do mapeamento do padrão de difração de raios x (em função do ângulo da amostra em relação a fonte) em conjunto com a análise dos padrões de difração de elétrons retroespalhados (EBSD) em um microscópio eletrônico de

varredura (MEV) ou de transmissão (MET). Por difração de raios x podemos determinar a macrotextura, enquanto que por EBSD iremos determinar a microtextura. Pretendemos determinar as fases presente nos filmes por refinamentos do padrão de difração de raios x (DRX) em conjunto com uma análise local dos padrões de difração de elétrons em uma microscopia eletrônico de transmissão. Por MET iremos determinar as fases numa faixa nanométrica, enquanto que por DRX podemos determinar as fases na amostra como um todo. A distribuição e o tamanho de grão serão analisado por imagens *cross-section* e *Plan-View* obtidas por microscopia eletrônica de transmissão em conjunto com as análises do alargamento dos picos de difração de raios x. Assim iremos realizar a preparação dos filmes e determinar o procedimento adequado para obter filmes do tipo Finemet.

Referências Bibliográficas

- [1] Giorgio Bertotti. *Hysteresis in Magnetism*. Academic Press, San Diego, 1998. [xi](#), [5](#), [6](#), [13](#), [14](#), [17](#)
- [2] Michael E McHenry, Matthew A Willard, and David E Laughlin. Amorphous and nanocrystalline materials for applications as soft magnets. *Progress in Materials Science*, 44:291 – 433, 1999. [xi](#), [2](#), [3](#), [6](#), [7](#), [9](#)
- [3] K Hono, D.H Ping, M Ohnuma, and H Onodera. Cu clustering and si partitioning in the early crystallization stage of an fe73.5si13.5b9nb3cu1 amorphous alloy. *Acta Materialia*, 47:997 – 1006, 1999. [xi](#), [8](#), [9](#)
- [4] G. Herzer. Nanocrystalline soft magnetic materials. *Physica Scripta*, T49A:307, 1993. [xi](#), [8](#), [10](#), [11](#), [13](#), [14](#), [87](#)
- [5] S. Flohrer and G. Herzer. Random and uniform anisotropy in soft magnetic nanocrystalline alloys (invited). *J. Magn. Magn. Mater.*, 322:1511–1514, 2010. [xi](#), [12](#)
- [6] K. Ounadjela U. Ebels, L. D. Buda and P. E. Wigen. *Spin Dynamics in Confined Magnetic Structures I*. Springer, 2002. [xi](#), [21](#), [26](#)
- [7] A. M. P. Silva. *Instrumentação Para Produção e Caracterização de Filmes Finos Nanoestruturados*. Programa de Pós-graduação em Física, Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas - RJ. [xi](#), [49](#)
- [8] R. Dutra. *Dinâmica da Magnetização em multicamadas magnéticas e micronano-objetos magnéticos: efeitos da interação dipolar e do exchange bias*. Programa de Pós-graduação em Física, Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas - RJ. [xiii](#), [57](#)

- [9] D. E. Gonzalez-Chavez. *Propriedades magnéticas de filmes finos: um estudo por ressonância ferromagnética de banda larga*. Programa de Pós-graduação em Física, Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas - RJ. [xii](#), [59](#)
- [10] Yunpeng Chen, Xin Fan, Yang Zhou, Yunsong Xie, Jun Wu, Tao Wang, Siu Tat Chui, and John Q. Xiao. Designing and tuning magnetic resonance with exchange interaction. *Advanced Materials*, 27:1351–1355, 2015. [1](#)
- [11] H. W. Chang, L. C. Chuang, C. W. Shih, W. C. Chang, and D. S. Xue. Optimization of high frequency characteristics in co-ta thin films. *Journal of Applied Physics*, 115:17A312, 2014. [1](#)
- [12] Jing Qiu, Yumei Wen, Ping Li, Jin Yang, and Wenli Li. Performance of fecob based thin-film microwave noise suppressor applied to the electromagnetic interference design in the ghz frequency range. *Journal of Applied Physics*, 115:17A304, 2014. [1](#)
- [13] T. Devolder, P.-H. Ducrot, J.-P. Adam, I. Barisic, N. Vernier, Joo-Von Kim, B. Ockert, and D. Ravelosona. Damping of co_xfe_(80-x)b₂₀ ultrathin films with perpendicular magnetic anisotropy. *Applied Physics Letters*, 102:022407, 2013. [1](#)
- [14] C. Scheck, L. Cheng, and W. E. Bailey. Low damping in epitaxial sputtered iron films. *Applied Physics Letters*, 88:252510, 2006. [1](#)
- [15] Yaping Zhang, Xin Fan, Weigang Wang, Xiaoming Kou, Rong Cao, Xing Chen, Chaoying Ni, Liqing Pan, and John Q. Xiao. Study and tailoring spin dynamic properties of co_xfe_b during rapid thermal annealing. *Applied Physics Letters*, 98:042506, 2011. [1](#)
- [16] Feng Xu, N. N. Phuoc, Xiaoyu Zhang, Yungui Ma, Xin Chen, and C. K. Ong. Tuning of the magnetization dynamics in as-sputtered fecosin thin films by various sputtering gas pressures. *Journal of Applied Physics*, 104:093903, 2008. [1](#)
- [17] Gennadii A. Melkov Alexander G. Gurevich. *Magnetization Oscillations and Waves*. CRC Press, 1996. [1](#), [18](#), [21](#), [22](#), [25](#), [27](#), [28](#), [31](#), [32](#), [34](#), [35](#)

- [18] Yaroslav Tserkovnyak, Arne Brataas, and Gerrit E. W. Bauer. Enhanced gilbert damping in thin ferromagnetic films. *Phys. Rev. Lett.*, 88:117601, 2002. [1](#)
- [19] T.L. Gilbert. A phenomenological theory of damping in ferromagnetic materials. *Magnetics, IEEE Transactions on*, 40:3443–3449, 2004. [1](#), [32](#)
- [20] D. E. Gonzalez-Chavez, R. Dutra, W. O. Rosa, T. L. Marcondes, A. Mello, and R. L. Sommer. Interlayer coupling in spin valves studied by broadband ferromagnetic resonance. *Phys. Rev. B*, 88:104431, 2013. [2](#), [58](#)
- [21] A. Conca, J. Greser, T. Sebastian, S. Klingler, B. Obry, B. Leven, and B. Hillebrands. Low spin-wave damping in amorphous co40fe40b20 thin films. *J. Appl. Phys.*, 113:213909, 2013. [2](#)
- [22] Tao Liu, Houchen Chang, Vincent Vlaminc, Yiyang Sun, Michael Kabatek, Axel Hoffmann, Longjiang Deng, and Mingzhong Wu. Ferromagnetic resonance of sputtered yttrium iron garnet nanometer films. *J. Appl. Phys.*, 115:17A501, 2014. [2](#)
- [23] Johan Moulin, Frédéric Mazaleyrat, Alexandra Mendez, and Elisabeth Dufour-Gergam. Internal stress influence on the coercivity of fecunbsib thin films. *J. Magn. Magn. Mater.*, 322(9-12):1275 – 1278, 2010. [2](#), [70](#), [77](#)
- [24] Kiwamu Tanahashi, Atsushi Kikukawa, Yoshio Takahashi, and Yuzuru Hosoe. Laminated nanocrystalline soft underlayers for perpendicular recording. *J. Appl. Phys.*, 93:6766–6768, 2003. [2](#), [111](#)
- [25] S. Kumar and D. E. Laughlin. Hitperm soft-magnetic underlayers for perpendicular thin film media. *Journal of Applied Physics*, 93:8158–8160, 2003. [2](#)
- [26] L. H. Chen, T. J. Klemmer, K. A. Ellis, R. B. van Dover, and S. Jin. Soft magnetic properties of fecob thin films for ultra-high-frequency applications. *Journal of Applied Physics*, 87:5858–5860, 2000. [2](#)
- [27] Jing Qiu. Effects of radio-frequency noise suppression on the microstrip line using feconib soft magnetic thin films. *J. Appl. Phys.*, 113:043922, 2013. [2](#)

- [28] Yu-Ming Kuo and Jenq-Gong Duh. Application of nanocrystalline ferromagnetic films to power inductors. *J. Magn. Magn. Mater.*, 324:1084 – 1087, 2012. [2](#)
- [29] J Moulin, I Shahosseini, F Alves, and F Mazaleyrat. Ultrasoft finemet thin films for magneto-impedance microsensors. *Journal of Micromechanics and Microengineering*, 21:074010, 2011. [2](#), [3](#)
- [30] A. Talaat, V. Zhukova, M. Ipatov, J. M. Blanco, L. Gonzalez-Legarreta, B. Hernandez, J. J. del Val, J. Gonzalez, and A. Zhukov. Optimization of the giant magnetoimpedance effect of finemet-type microwires through the nanocrystallization. *Journal of Applied Physics*, 115:17A313, 2014. [2](#)
- [31] Sangita S. Kalarickal, Pavol Krivosik, Jaydip Das, Kyoung Suk Kim, and Carl E. Patton. Microwave damping in polycrystalline Fe-Ti-N films: Physical mechanisms and correlations with composition and structure. *Phys. Rev. B*, 77:054427, 2008. [2](#), [4](#), [42](#), [43](#)
- [32] M. J. Hurben and C. E. Patton. Theory of two magnon scattering microwave relaxation and ferromagnetic resonance linewidth in magnetic thin films. *Journal of Applied Physics*, 83:4344–4365, 1998. [2](#)
- [33] R.K. Dumas and J. Akerman. Spintronics: Channelling spin waves. *Nat. Nanotech.*, 9:503, 2014. [2](#)
- [34] C. Luo, Z. Feng, Y. Fu, W. Zhang, P. K. J. Wong, Z. X. Kou, Y. Zhai, H. F. Ding, M. Farle, J. Du, and H. R. Zhai. Enhancement of magnetization damping coefficient of permalloy thin films with dilute Nd dopants. *Phys. Rev. B*, 89:184412, 2014. [2](#)
- [35] Lei Lu, Jared Young, Mingzhong Wu, Christoph Mathieu, Matthew Hadley, Pavol Krivosik, and Nan Mo. Tuning of magnetization relaxation in ferromagnetic thin films through seed layers. *Appl. Phys. Lett.*, 100:022403, 2012. [2](#)
- [36] A. Conca, E. Th. Papaioannou, S. Klingler, J. Greser, T. Sebastian, B. Leven, J. Lösch, and B. Hillebrands. Annealing influence on the Gilbert damping parameter

and the exchange constant of cofeb thin films. *Appl. Phys. Lett.*, 104:182407, 2014.

[2](#)

- [37] G. Herzer. Grain size dependence of coercivity and permeability in nanocrystalline ferromagnets. *Magnetics, IEEE Transactions on*, 26:1397–1402, 1990. [3](#)
- [38] A. D. C. Viegas, M. A. Corrêa, L. Santi, R. B. da Silva, F. Bohn, M. Carara, and R. L. Sommer. Thickness dependence of the high-frequency magnetic permeability in amorphous $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ thin films. *Journal of Applied Physics*, 101:033908, 2007. [3](#), [89](#)
- [39] Y. Yoshizawa, S. Oguma, and K. Yamauchi. New fe based soft magnetic alloys composed of ultrafine grain structure. *J. Appl. Phys.*, 64:6044–6046, 1988. [3](#), [7](#), [8](#)
- [40] S. G. Mayr and K. Samwer. Model for intrinsic stress formation in amorphous thin films. *Phys. Rev. Lett.*, 87:036105, 2001. [3](#), [15](#)
- [41] Abhinav Bhandari, Brian W. Sheldon, and Sean J. Hearne. Competition between tensile and compressive stress creation during constrained thin film island coalescence. *Journal of Applied Physics*, 101:033528, 2007. [3](#), [15](#)
- [42] Ranjeeta Gupta, Ajay Gupta, W. Leitenberger, and R. Rüffer. Mechanism of stress relaxation in nanocrystalline fe-n thin films. *Phys. Rev. B*, 85:075401, 2012. [3](#), [15](#)
- [43] Carl V. Thompson and Roland Carel. Stress and grain growth in thin films. *J. Mech. Phys. Solids*, 44(5):657 – 673, 1996. [3](#), [15](#), [70](#), [72](#), [74](#), [86](#)
- [44] Y Estrin, G Gottstein, E Rabkin, and L.S Shvindlerman. Grain growth in thin metallic films. *Acta Materialia*, 49:673 – 681, 2001. [3](#), [15](#), [70](#), [72](#), [74](#), [86](#)
- [45] A. Neuweiler and H. Kronmüller. Magnetization processes in amorphous and nanocrystalline $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ thin films. *J. Magn. Magn. Mater.*, 177-181, Part 2(0):1269 – 1270, 1998. [3](#)

- [46] Federica Celegato, Marco Coisson, Paola Tiberto, Franco Vinai, and Marcello Baricco. Effect of crystallisation on the magnetic properties of fecunbbsi amorphous thin films produced by sputtering. *physica status solidi (c)*, 8:3070–3073, 2011. [3](#)
- [47] R. L. Sommer and C. L. Chien. Longitudinal and transverse magnetoimpedance in amorphous $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ films. *Applied Physics Letters*, 67:3346–3348, 1995. [3](#)
- [48] Shu-qin Xiao, Yi-hua Liu, Shi-shen Yan, You-yong Dai, Lin Zhang, and Liang-mo Mei. Giant magnetoimpedance and domain structure in fecunbsib films and sandwiched films. *Phys. Rev. B*, 61:5734–5739, 2000. [3](#)
- [49] M.A. Corrêa, A.D.C. Viegas, R.B. da Silva, A.M.H. de Andrade, and R.L. Sommer. Gmi in fecunbsib-cu multilayers. *Physica B: Condensed Matter*, 384:162 – 164, 2006. [3](#), [111](#)
- [50] M. A. Corrêa, A. D. C. Viegas, R. B. da Silva, A. M. H. de Andrade, and R. L. Sommer. Magnetoimpedance of single and multilayered fecunbsib films in frequencies up to 1.8ghz. *Journal of Applied Physics*, 101:043905, 2007. [3](#)
- [51] R.D. McMichael and P. Krivosik. Classical model of extrinsic ferromagnetic resonance linewidth in ultrathin films. *IEEE Trans. Magn.*, 40:2–11, 2004. [4](#), [40](#), [44](#), [45](#)
- [52] Pavol Krivosik, Nan Mo, Sangita Kalarickal, and Carl E. Patton. Hamiltonian formalism for two magnon scattering microwave relaxation: Theory and applications. *J. Appl. Phys.*, 101:083901, 2007. [4](#), [40](#), [42](#), [95](#), [111](#)
- [53] Sangita S. Kalarickal, Nan Mo, Pavol Krivosik, and Carl E. Patton. Ferromagnetic resonance linewidth mechanisms in polycrystalline ferrites role of grain to grain and grain boundary two magnon scattering processes. *Phys. Rev. B*, 79:094427, 2009. [4](#), [42](#)
- [54] Ernst Schlomann. Inhomogeneous broadening of ferromagnetic resonance lines. *Phys. Rev.*, 182:632–645, 1969. [4](#), [42](#)

- [55] K. J. Harte. Theory of magnetization ripple in ferromagnetic films. *Journal of Applied Physics*, 39:1503–1524, 1968. [4](#), [30](#), [31](#), [42](#)
- [56] G Hampel, A Pundt, and J Hesse. Crystallization of $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ structure and kinetics examined by x-ray diffraction and mossbauer effect spectroscopy. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 4:3195, 1992. [8](#)
- [57] K. Hono, A. Inoue, and T. Sakurai. Atom probe analysis of $\text{Fe}_{73.5}\text{Si}_{13.5}\text{B}_9\text{Nb}_3\text{Cu}_1$ nanocrystalline soft magnetic material. *Applied Physics Letters*, 58:2180–2182, 1991. [8](#)
- [58] T Egami. Magnetic amorphous alloys: physics and technological applications. *Reports on Progress in Physics*, 47(12):1601, 1984. [8](#)
- [59] S. V. Vonsovskii. *Ferromagnetic Resonance*. Pergamon Press, 1966. [24](#)
- [60] R. W. Damon and J. R. Eshbach. Magnetostatic modes of a ferromagnetic slab. *Journal of Applied Physics*, 31:S104–S105, 1960. [27](#)
- [61] B A Kalinikos and A N Slavin. Theory of dipole-exchange spin wave spectrum for ferromagnetic films with mixed exchange boundary conditions. *Journal of Physics C: Solid State Physics*, 19:7013, 1986. [30](#)
- [62] Sangita S. Kalarickal, Pavol Krivosik, Mingzhong Wu, Carl E. Patton, Michael L. Schneider, Pavel Kabos, T. J. Silva, and John P. Nibarger. Ferromagnetic resonance linewidth in metallic thin films comparison of measurement methods. *Journal of Applied Physics*, 99:093909, 2006. [38](#), [42](#)
- [63] B. Heinrich, R. Urban, and G. Woltersdorf. Magnetic relaxation in metallic films: Single and multilayer structures. *Journal of Applied Physics*, 91:7523–7525, 2002. [38](#), [42](#)
- [64] K. Gilmore, Y. U. Idzerda, and M. D. Stiles. Identification of the dominant precession-damping mechanism in Fe, Co, and Ni by first-principles calculations. *Phys. Rev. Lett.*, 99:027204, 2007. [38](#)

- [65] B. Heinrich. *Spin Relaxation in Magnetic Metallic Layers and Multilayer*. Springer, 2003. [38](#)
- [66] Bret Heinrich, R. Urban, and G. Woltersdorf. Magnetic relaxations in metallic multilayers. *Magnetics, IEEE Transactions on*, 38:2496–2501, 2002. [38](#)
- [67] V. Kamberský. On ferromagnetic resonance damping in metals. *Czechoslovak Journal of Physics B*, 26:1366–1383, 1976. [39](#)
- [68] R. C. LeCraw, E. G. Spencer, and C. S. Porter. Ferromagnetic resonance line width in yttrium iron garnet single crystals. *Phys. Rev.*, 110:1311–1313, 1958. [39](#)
- [69] M. Sparks, R. Loudon, and C. Kittel. Ferromagnetic relaxation. i. theory of the relaxation of the uniform precession and the degenerate spectrum in insulators at low temperatures. *Phys. Rev.*, 122:791–803, 1961. [40](#)
- [70] E. Schlomann. Spin-wave analysis of ferromagnetic resonance in polycrystalline ferrites. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 6:242 – 256, 1958. [40](#), [41](#), [42](#), [90](#), [91](#), [100](#), [111](#)
- [71] Rodrigo Arias and D. L. Mills. Extrinsic contributions to the ferromagnetic resonance response of ultrathin films. *Phys. Rev. B*, 60:7395–7409, 1999. [40](#)
- [72] Kh. Zakeri, J. Lindner, I. Barsukov, R. Meckenstock, M. Farle, U. von Hörsten, H. Wende, W. Keune, J. Rocker, S. S. Kalarickal, K. Lenz, W. Kuch, K. Baberschke, and Z. Frait. Spin dynamics in ferromagnets: Gilbert damping and two-magnon scattering. *Phys. Rev. B*, 76:104416, 2007. [42](#)
- [73] K. Lenz, H. Wende, W. Kuch, K. Baberschke, K. Nagy, and A. Jánossy. Two-magnon scattering and viscous gilbert damping in ultrathin ferromagnets. *Phys. Rev. B*, 73:144424, 2006. [42](#)
- [74] J. Lindner, K. Lenz, E. Kosubek, K. Baberschke, D. Spoddig, R. Meckenstock, J. Pelzl, Z. Frait, and D. L. Mills. Non-gilbert-type damping of the magnetic rela-

- xation in ultrathin ferromagnets: Importance of magnon-magnon scattering. *Phys. Rev. B*, 68:060102, 2003. [42](#)
- [75] B. Heinrich, J. F. Cochran, and R. Hasegawa. Fmr linebroadening in metals due to two magnon scattering. *Journal of Applied Physics*, 57:3690–3692, 1985. [42](#)
- [76] B. D Cullity. *Elements of X-ray Diffraction*. Addison-Wesley, Massachusetts, 1956. [51](#), [52](#), [53](#)
- [77] Th. H. de Keijser, J. I. Langford, E. J. Mittemeijer, and A. B. P. Vogels. Use of the voigt function in a single-line method for the analysis of x-ray diffraction line broadening. *Journal of Applied Crystallography*, 15:308–314, 1982. [51](#), [54](#), [67](#)
- [78] Simon Foner. Versatile and sensitive vibrating sample magnetometer. *Review of Scientific Instruments*, 30(7):548–557, 1959. [56](#)
- [79] G. Bottoni, D. Gandolfo, and A. Cecchetti. Distribution of anisotropy field in recording media deduced from the hysteresis curve. *J. Appl. Phys.*, 81:3794–3796, 1997. [56](#)
- [80] Helmut Hermann, Norbert Mattern, Stefan Roth, and Patric Uebele. Simulation of crystallization processes in amorphous iron-based alloys. *Phys. Rev. B*, 56:13888–13897, 1997. [69](#), [102](#)
- [81] J.D. Giallonardo, G. Avramovic Cingara, G. Palumbo, and U. Erb. Microstrain and growth fault structures in electrodeposited nanocrystalline ni and nife alloys. *Journal of Materials Science*, 48:6689–6699, 2013. [70](#), [72](#), [74](#)
- [82] A M Stoneham. Linewidths with gaussian and lorentzian broadening. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 5:670, 1972. [94](#)
- [83] S. Mankovsky, D. Kodderitzsch, G. Woltersdorf, and H. Ebert. First-principles calculation of the gilbert damping parameter via the linear response formalism with application to magnetic transition metals and alloys. *Phys. Rev. B*, 87:014430, 2013. [98](#)

- [84] M. J. P. Alves, D. E. Gonzalez-Chavez, F. Bohn, and R. L. Sommer. Annealing effects on the microwave linewidth broadening of ferromagnetic films. *Journal of Applied Physics*, 117:123913, 2015. [99](#)