

Universidade Federal do Rio Grande do Sul

Instituto de Física

INTERAÇÕES MAGNÉTICAS E MAGNETORESISTÊNCIA EM



Lucio Strazzabosco Dorneles

Dissertação realizada sob a orientação do  
Dr. João Edgar Schmidt, apresentada ao  
Instituto de Física da UFRGS em  
preenchimento parcial dos requisitos para  
obtenção do título de Mestre em Física.

Porto Alegre

1997

---

\* Trabalho parcialmente financiado por: CNPq, FINEP, CAPES, FAPERGS, PADCT.

Aos meus pais e à Laura.

## Agradecimentos

A você leitor, a você leitora, agradeço a oportunidade de escrever esta página e assim lembrar dos amigos. Alguns aqui, outros distantes, mas todos perto.

Agradeço a todos os profissionais do Instituto de Física que me ajudaram no decorrer deste trabalho.

Em especial:

- ao A. Morrone (o Ângelo), ao A.D.C. Viegas (o Zero, que de relação com número só tem o nome), ao J. Geshev (o Julian), ao L.G. Pereira (o Gugu), ao L.F. Schelp (enquanto esteve aqui) e ao Prof. J.E. Schmidt pela ajuda no dia-a-dia do laboratório;
- ao A. Silveira (o Aires), ao G. Mello (o Giovane) e a todos os outros bolsistas de IC que, quando precisa, pegam no pesado;
- ao Zero pelas discussões, pelos equipamentos (controle de experiências via computador), pelas dicas, pelas fotografias e pela companhia e ajuda inestimáveis;
- ao Julian (responsável pela programação do ajuste das curvas de histerese) pelos esclarecimentos, pela leitura da dissertação e sugestões e por tudo;
- ao Ângelo, pelos equipamentos (principalmente pelo AGM) e por tudo;
- ao Prof. João, pela orientação neste trabalho;
- ao M. Knobel (o Marcelo), pela produção das amostras;
- ao L.G. Pereira (o Gugu), pela ajuda com o sistema criogênico e pela leitura e sugestões sobre a dissertação;
- ao pessoal do IEN “Galileo Ferraris” (Torino, Itália), onde foram produzidas as amostras;
- ao M. Carara pela leitura e sugestões;
- à Oficina Mecânica, ao Laboratório de Vácuo e ao Setor de Eletrônica nas pessoas de seus responsáveis e funcionários (também responsáveis);
- ao Setor de Informática, que mantém nossos computadores funcionando e nos liga ao mundo;
- ao Laboratório de Criogenia, por nos prover de He e N líquidos apesar das constantes quedas de força na rede de energia elétrica;
- à bibliotecária, funcionárias e funcionários da Biblioteca do Instituto de Física;
- à Hyper Home, nas pessoas do Lauro e do Roberto, pela digitalização das fotografias.

## Resumo

Foram investigados os efeitos de tratamentos térmicos nas propriedades estruturais, magnéticas e de magnetotransporte eletrônico de fitas de  $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$  rapidamente resfriadas (“melt-spun”) enfatizando o estudo de possíveis relações entre as interações magnéticas entre grãos, camadas e cristais presentes nestes materiais e a magnetoresistência. A análise combinada da evolução estrutural e da intensidade das interações entre os grãos magnéticos mostra claramente o papel de alguns parâmetros estruturais (tamanho e densidade de partículas, distância entre partículas) e da própria intensidade das interações entre as partículas nas propriedades de transporte eletrônico em presença de um campo magnético.

## **Abstract**

The effects of annealing on the structural, magnetic and magnetotransport properties of melt-spun  $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$  granular alloys have been investigated, emphasizing the investigation of possible relations between the magnetic interactions of entities like grains, layers and crystals present in these materials and the magnetoresistance. The analysis of the structural evolution and interaction strength between the magnetic clusters clearly shows the role of some structural parameters (particle size and density, interparticle distance) and the inter-particle interaction strength itself in the magnetic field response of the resistance.

# Sumário

<b>I INTRODUÇÃO</b> .....	<b>7</b>
<b>II MAGNETORESISTÊNCIA</b> .....	<b>8</b>
II .1 Introdução .....	8
II .2 GMR em granulares .....	13
<b>III INTERAÇÕES MAGNÉTICAS</b> .....	<b>19</b>
III .1 Introdução.....	19
III .2 Gráficos de $\delta M$ .....	22
<b>IV EXPERIMENTAL</b> .....	<b>29</b>
IV .1 Introdução .....	29
IV .2 Produção e Preparação das Amostras .....	29
IV .2 .1 “Melt-spinning” .....	30
IV .2 .2 Forno a Lâmpada e Ambiente Inerte .....	31
IV .2 .3 Medida e Controle de Temperatura.....	32
IV .3 Caracterização Estrutural das Amostras: Difração de Raios-X .....	33
IV .4 Medidas de Magnetoresistência .....	35
IV .4 .1 Sistema supercondutor .....	36
IV .5 Medidas de Magnetização e Magnetização Remanente .....	37
IV .5 .1 AGM - Magnetômetro de Gradiente de Campo Alternado .....	39
IV .5 .2 VSM - Magnetômetro de Amostra Vibrante.....	44
<b>V CURVAS DE MAGNETIZAÇÃO</b> .....	<b>47</b>
<b>VI RESULTADOS E DISCUSSÕES</b> .....	<b>51</b>
VI .1 Comportamento em função da temperatura de recozimento $T_{ann}$ .....	51
VI .1 .1 Discussão .....	57
VI .2 Comportamento em função do tempo de recozimento $t_{ann}$ .....	62
<b>VII CONCLUSÕES</b> .....	<b>67</b>
<b>VIII LISTA DE FIGURAS</b> .....	<b>69</b>
<b>APÊNDICE I - OPERAÇÃO VIA COMPUTADOR</b> .....	<b>73</b>
a) Bobinas supercondutoras.....	73
b) Controle via computador.....	77
<b>REFERÊNCIAS</b> .....	<b>79</b>

# I Introdução

Materiais magnéticos granulares compostos de nano-estruturas (entidades com dimensões nanométricas) de um elemento ferromagnético (tal como Fe, Co ou Ni) imersos em uma matriz metálica (normalmente Cu, Ag ou Au) tem sido estudados nos últimos anos, principalmente por apresentarem magnetoresistência gigante (GMR) isotrópica<sup>1,2</sup>.

O objetivo deste trabalho é investigar a relação entre a magnetoresistência e a micro-estrutura de fitas de  $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$  resfriadas rapidamente (“melt-spun”), levando em conta explicitamente a influência das interações magnéticas entre grãos no comportamento da magnetoresistência. Alguns parâmetros estruturais são obtidos através de uma análise detalhada das curvas de histerese (Capítulo V), enquanto que as interações e seus efeitos são estudados usando os dados de magnetização remanente e de magnetotransporte (Capítulo VI). A definição de um novo gráfico para extrair informações sobre as interações a partir das curvas de magnetização remanente desmagnetizadas dc ( $\delta M^{\text{dc}}(H)$ ) é descrita no Capítulo III. A análise combinada da evolução estrutural a partir de tratamentos térmicos e da intensidade das interações entre os grãos magnéticos (Capítulo VI) mostra o papel de alguns parâmetros estruturais (tamanho e densidade de partículas, distância entre partículas) e da intensidade da interação entre as nano-estruturas no comportamento da resistência elétrica em presença de um campo magnético.

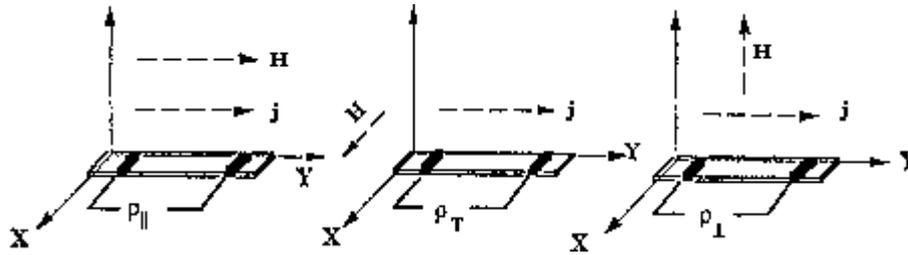
## II Magnetoresistência

### II.1 Introdução

A magnetoresistência (MR) é a variação da resistência elétrica devido a um campo magnético externo aplicado ( $H$ ), ou seja, aumento ou diminuição da resistência (positiva ou negativa em relação a resistência com  $H = 0$ ). Em metais de transição, em particular em metais de transição ferromagnéticos (Fe, Co, Ni e suas ligas), os elétrons que participam da condução da corrente elétrica são os elétrons híbridos  $sd$ . Podemos separar estes elétrons em duas “famílias”, de acordo com a orientação relativa da componente  $z$  de seus spins em relação à magnetização local: os elétrons spin up ( $\uparrow$ ) e os elétrons spin down ( $\downarrow$ ). Nesta descrição, o eixo  $z$  é escolhido como o eixo de quantização e é paralelo à magnetização. A baixas temperaturas, estas duas famílias de elétrons carregam a corrente em paralelo, pois poucos espalhamentos afetam o spin dos elétrons. Este é o modelo de duas correntes proposto por Mott<sup>3</sup>.

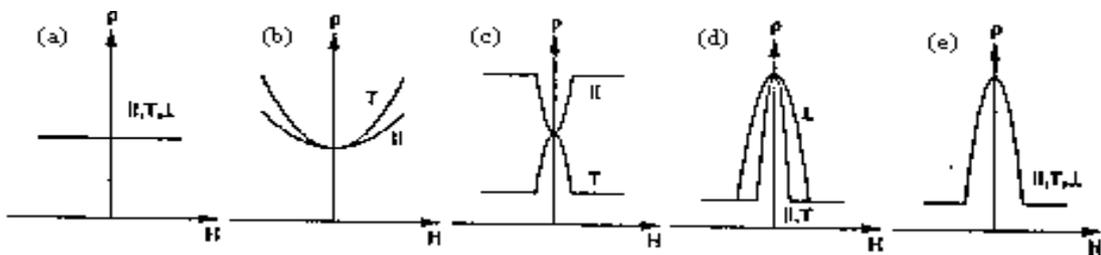
Em metais de transição ferromagnéticos (também a baixas temperaturas) estes dois canais de elétrons podem ter espalhamentos muito diferentes, independente do tipo de centro de espalhamento (impurezas magnéticas, defeitos cristalográficos tais como dislocações, fronteira de grão ou mesmo fônons). Esta dependência de spin nos espalhamentos eletrônicos resulta da diferença na densidade de estados vazios das subbandas  $d\text{-}\uparrow$  e  $d\text{-}\downarrow$  ao nível de Fermi, os quais os elétrons podem ocupar após serem espalhados. Esta diferença nas densidades de estados de elétrons spin  $\uparrow$  e elétrons spin  $\downarrow$  é uma consequência do “splitting” da banda  $d$ , uma característica do magnetismo em metais de transição. Como exemplo, em  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ , o livre caminho médio dos elétrons spin  $\uparrow$  foi estimado ser no mínimo 5 vezes maior do que o dos elétrons spin  $\downarrow$ <sup>4,5</sup>.

Para uma amostra de filme fino, onde a corrente elétrica (com uma densidade  $j$ ) está em geral no plano, a MR pode ser medida em três geometrias:  $\rho_{\parallel}$  (MR longitudinal,  $H \parallel j$ ),  $\rho_T$  (MR transversal,  $H$  está no plano do filme e perpendicular a  $j$ ) e  $\rho_{\perp}$  (MR perpendicular,  $H$  é perpendicular ao plano do filme e perpendicular a  $j$ ). Uma ilustração destas três geometrias pode ser vista na Figura II-1.



**Figura II-A.** (a) Magneto-resistividade longitudinal ( $\rho_{\parallel}$ ). (b) Magneto-resistividade transversal ( $\rho_T$ ). (c) Magneto-resistividade perpendicular ( $\rho_{\perp}$ ). Extraída de C.L. Chien<sup>6</sup>.

Uma outra geometria de medida, com  $j$  perpendicular ao plano da amostra, também aparece na literatura definida como MR perpendicular e aqui, quando citada, será identificada como geometria  $\rho_{CPP}$  (CPP - Current Perpendicular to Plane).



**Figura II-B.** Representação de vários tipos de comportamento da MR. (a) Ausência de MR em um metal de Drude. (b) MR comum em um metal não-magnético. (c) MR anisotrópica em um metal

ferromagnético. **(d)** MR gigante negativa em uma multicamada. **(e)** MR gigante negativa em um sólido granular. Extraída de C.L. Chien<sup>6</sup>.

Na Figura II-2 é apresentada a representação esquemática de vários tipos de comportamento da MR em função do campo magnético aplicado. As características da MR em vários materiais reais, a baixas temperaturas, podem ser resumidas como a seguir<sup>6</sup>, em ordem crescente de efeito:

1. **Magneto-resistência comum (OMR - Ordinary Magnetoresistance):** tem origem na força de Lorentz e é observada em metais não-magnéticos comuns, tais como Au e Cu. A MR é muito pequena. Tanto  $\rho_{\parallel}$  quanto  $\rho_{\perp}$  são positivas e aumentam com  $H^2$ , com  $\rho_{\perp} > \rho_{\parallel}$ , como mostra a Figura II-2(b).
2. **Magneto-resistência anisotrópica (AMR - Anisotropic Magnetoresistance):** em metais ferromagnéticos (*e.g.* Fe, Co) e ligas (*e.g.* ligas de FeNi : permalloy), MR substanciais são observadas. Na maioria das vezes  $\rho_{\parallel}$  é positiva e  $\rho_{\perp}$  é negativa, como na Figura II-2(c), e  $\rho_{\parallel} > \rho_{\perp}$ , ao contrário da OMR. Tanto  $\rho_{\parallel}$  quanto  $\rho_{\perp}$  podem ser saturadas a campos não muito altos. A AMR depende da direção da magnetização espontânea e é devida à interação spin-órbita<sup>7,8</sup>. O campo de saturação ( $H_s$ ) para a AMR em permalloys é pequeno (menos de 10 Oe). Isto, somado aos valores mensuráveis da variação da resistividade entre  $H = 0$  e  $H = H_{\max}$   $\Delta\rho \approx 0.5 \mu\Omega\text{-cm}$  e  $\Delta\rho/\rho_{\text{med}} \approx 2\%$  a temperatura ambiente, forma a base da maioria das aplicações magneto-resistivas de baixo campo<sup>7,8</sup>.
3. **Magneto-resistência gigante (GMR - Giant Magnetoresistance) ou efeito de válvula de spin:** em 1988, Baibich *et al.*<sup>9</sup> descobriram a magneto-resistência gigante negativa em multicamadas de Fe/Cr com camadas de Cr de determinadas espessuras. Através destas a interação inter-camada, com acoplamento antiferromagnético das camadas adjacentes de Fe,

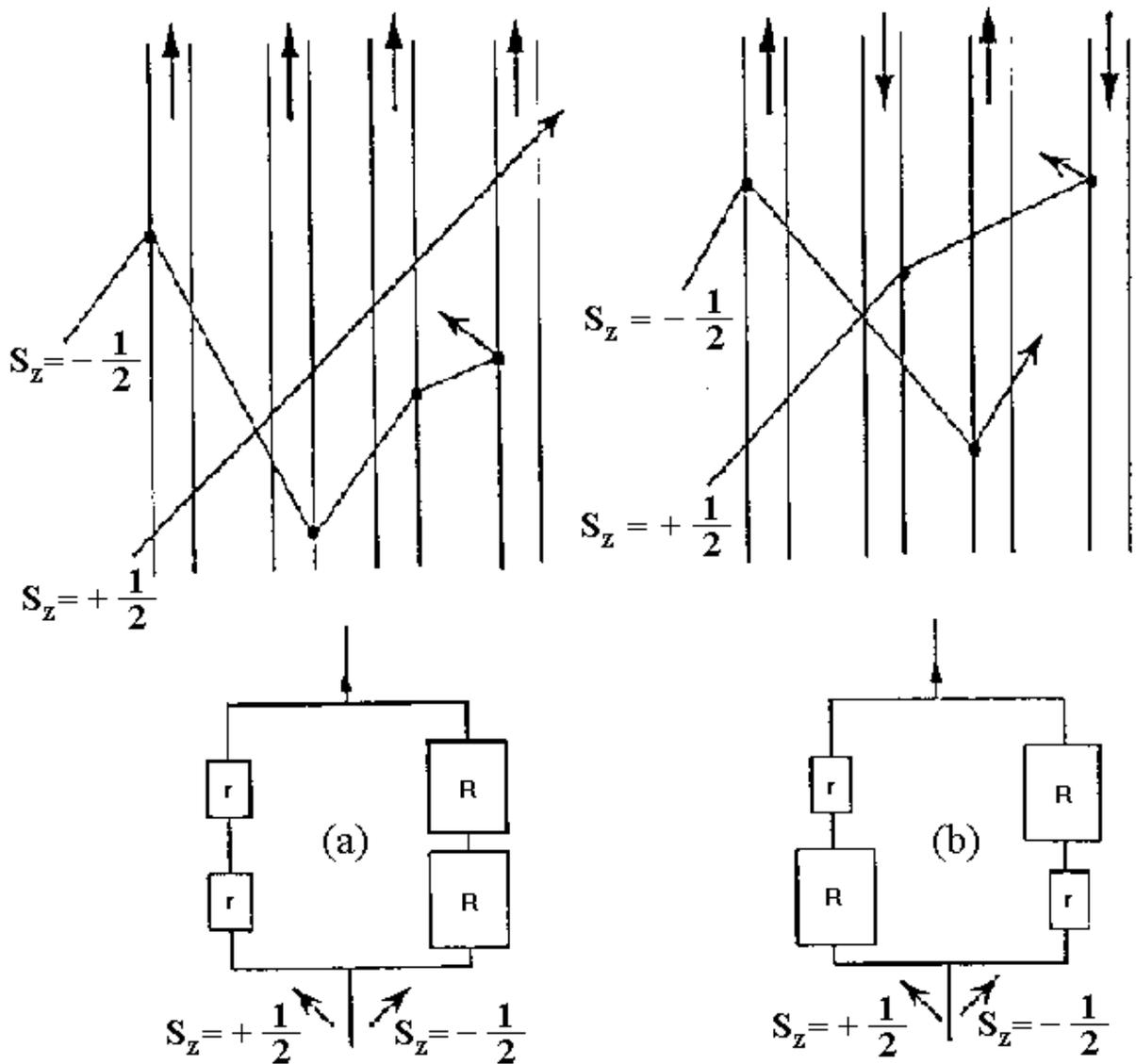
leva a magnetização zero ( $M=0$ )<sup>9, 10</sup>. Sob um campo magnético suficientemente alto, um alinhamento paralelo ( $M=M_s$ ) é obtido. Notadamente, as resistividades do alinhamento paralelo e do anti-paralelo diferem entre si por um fator dois. Este efeito tem sido observado em uma grande variedade de multicamadas<sup>6,11,12,13,14,15,16,17,18,19</sup>. Devido a MR nas multicamadas de Fe/Cr ser tão grande, o efeito de MR tem sido amplamente chamado de magnetoresistência gigante (GMR). Desde que foram descobertos, a GMR e o acoplamento entre camadas gerou um enorme interesse de muitos pesquisadores através do mundo. Até 1992, a atenção havia sido focada exclusivamente sobre as multicamadas, nas quais a maioria dos modelos teóricos tem sido baseados. Em 1992, a GMR foi observada em sistemas magnéticos granulares de CoCu produzidos por sputtering<sup>1,2</sup>, dissipando a noção até então existente de que o fenômeno era exclusivo das multicamadas.

Convém aqui citar também a recente descoberta<sup>20,21,22,23,24,25,26,27</sup> de magnetoresistência gigante, chamada de magnetoresistência colossal (CMR), no sistema  $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ , com valores da ordem de milhares por cento.

O efeito de GMR em multicamadas estimulou um grande interesse devido a sua possível aplicação em sensores magnéticos, cabeças de gravação (mídia em geral) e componentes eletrônicos metálicos. A dependência da resistividade com o campo magnético é normalmente interpretada pelo chamado modelo de duas correntes<sup>3,53,54,55</sup>, conforme descrito no primeiro parágrafo desta introdução (página 8).

A Figura II-3 mostra o comportamento resistivo de uma multicamada magnética de maneira simplificada. É feita uma comparação entre a condução eletrônica numa multicamada com um circuito de resistores.

Este comportamento magnético é comumente chamado válvula de spin pelo fato do sistema funcionar como se fosse uma válvula: na configuração de camadas magnéticas alinhadas paralelamente tem-se uma resistividade baixa (válvula aberta); na configuração de camadas magnéticas alinhadas antiparalelamente tem-se uma resistividade alta (válvula fechada).



**Figura II-C.** Representação esquemática da difusão do spin numa multicamada. **(a)** Alinhamento paralelo. **(b)** Alinhamento antiparalelo.

## II.2 GMR em granulares

No caso de materiais homogêneos contendo grãos ferromagnéticos não há a necessidade de haver acoplamento entre as regiões magnéticas para explicar o aparecimento da GMR; a existência de regiões monodomínios com direções de magnetização aleatoriamente distribuídas seria suficiente para gerar espalhamento dependente de spin.

Uma explicação alternativa para a GMR em granulares sólidos, recentemente proposta por Kim *et al.*<sup>51</sup>, não exige a presença de espalhamento dependente de spin. Neste modelo, granulares tais como CoAg e CoCu são representados por pequenos grãos esféricos, que agem como centros espalhadores (barreira interfacial) que interagem (via interação dipólo-dipólo) com os elétrons da banda de condução: a partir do modelo é calculada a concorrência entre ambas as contribuições (barreira e interação).

As teorias existentes prevêm a dependência da magnetoresistência reduzida pela resistência de saturação ( $GMR_{RED}$ ) com o quadrado da magnetização reduzida ( $M/M_s$ ) para sistemas consistindo de momentos magnéticos aleatoriamente distribuídos. Hickey *et al.*<sup>56</sup> atribuem um desvio do comportamento quadrático à uma distribuição larga de tamanhos de partículas.

Os efeitos de GMR observados em multicamadas e sólidos granulares podem ser de fato muito grandes ( $\Delta\rho/\rho \geq 160\%$ , na geometria CPP) em alguns casos, mas modestos ( $\Delta\rho/\rho < 5\%$ ) em outros. Mas o que distingue o efeito de GMR dos outros efeitos de MR não é apenas o tamanho do efeito, mas suas características intrinsecamente diferentes. Primeiro, a GMR em multicamadas que apresentam efeito válvula de spin normalmente é negativa (embora possa ser também positiva<sup>28</sup>), *i.e.* a resistência decresce com o aumento do campo, independente da direção relativa entre o campo magnético e a corrente elétrica, como mostrado na Figura II-2(d).

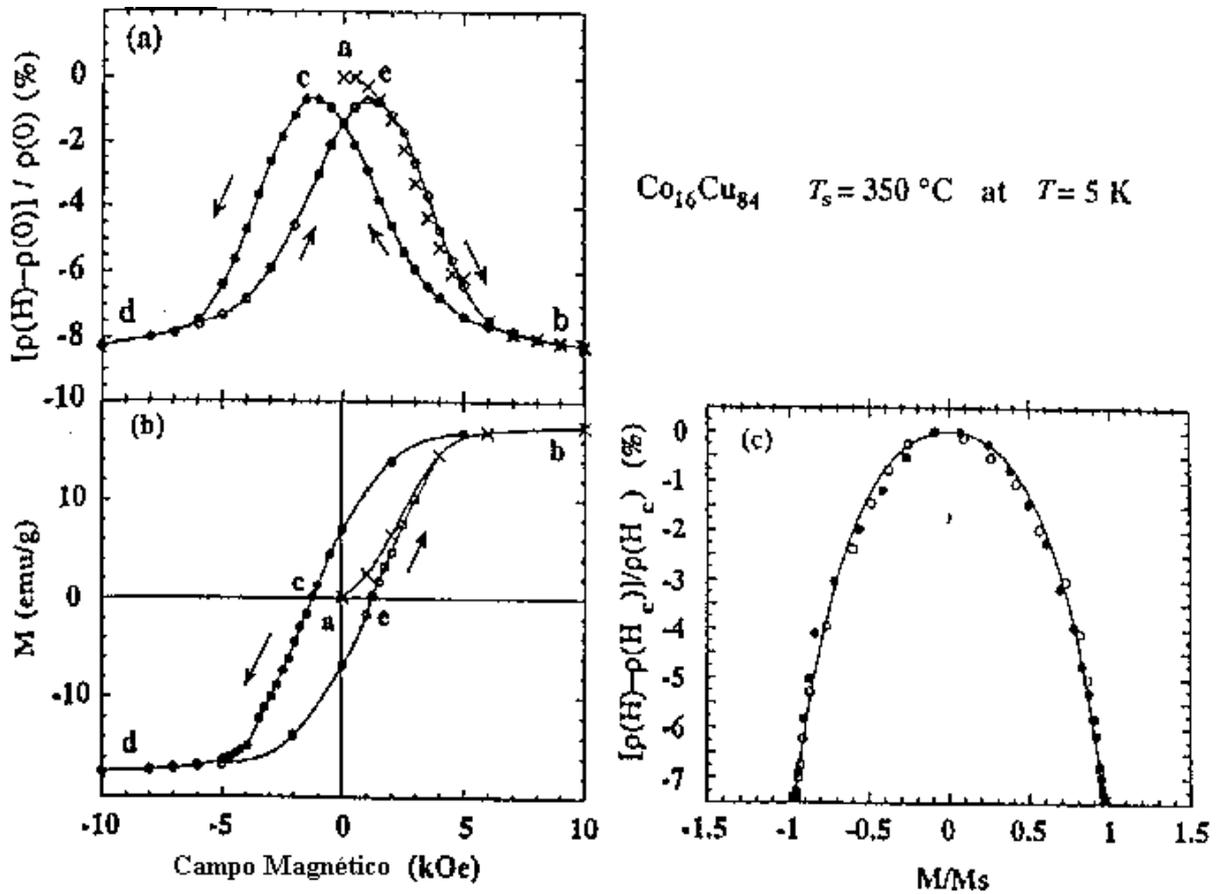
Isto é qualitativamente diferente da OMR positiva observada em metais não-magnéticos, e as AMR positiva e negativa observadas em metais magnéticos. Devido a estrutura de camadas, a GMR em multicamadas não é isotrópica<sup>9</sup>; especificamente a relação  $\rho_{\perp} > \rho_{\parallel} \approx \rho_T$  (válida para qualquer metal magnético) é ressaltada, como mostrado na Figura II-2(d). Além disso, outras características da GMR em sólidos granulares, como descrito abaixo, são também diferentes daquelas dos metais e ligas comuns.

OMR, AMR e GMR não são efeitos isolados. AMR está presente também em sistemas que apresentam GMR. Isto é de particular preocupação se a GMR é muito pequena. Nesse caso, as medidas devem ser feitas em várias geometrias para separar a contribuição da AMR<sup>17</sup>. Sob um alto campo magnético, materiais AMR normalmente apresentam uma fraca dependência com  $H^2$  devido a OMR<sup>7</sup>.

A primeira observação de GMR em materiais granulares foi feita independentemente e publicada simultaneamente por Berkovitz *et al.*<sup>1</sup> e Xiao *et al.*<sup>2</sup>, usando amostras de CoCu granular (após Childress e Chien anunciarem a fabricação deste material<sup>29,98</sup>) assim como Barnard *et al.*<sup>30</sup> e Tosin *et al.*<sup>31</sup> observaram inesperadamente altos valores de magnetoresistência em filmes finos de CoAg, que provavelmente continham algumas características de sólido granular. Pouco tempo depois, foi mostrado que vários sistemas granulares de Co, Fe e Ni (e suas ligas) embebidos em metais nobres (Ag, Cu e Au) também apresentam GMR<sup>32,33,34,35,36,37,38,39,40,48</sup>.

Na Figura II-4(a) é apresentada a magnetoresistência a 5 K de  $\text{Co}_{16}\text{Cu}_{84}$  depositada com substrato a temperatura  $T_s = 350^\circ\text{C}$ <sup>2</sup>. A aparente dependência da GMR com  $H$  não é reveladora porque a GMR é uma consequência direta da dependência da magnetização  $M$  com o campo magnético. A maior e a menor resistividades estão localizadas respectivamente no estado

desmagnetizado original ( $M = 0$ ) e no estado magnetizado com todas as partículas alinhadas paralelamente ( $M = M_s$ , onde  $M_s$  é a magnetização de saturação). Estes dois estados correspondem aos alinhamentos antiparalelo ( $M = 0$ ) e paralelo ( $M = M_s$ ) para as multicamadas. Como pode ser visto na Figura II-4(b), a curva de histerese mantém uma estreita correlação com a curva de magnetoresistência. Os braços de campo crescente e campo decrescente da MR correspondem exatamente aos da curva de histerese. Os máximos de MR estão localizados precisamente nas



**Figura II-D.** Magnetoresistência (a) e curvas de histerese (b) de  $\text{Co}_{16}\text{Cu}_{84}$  ( $T_s = 350^\circ\text{C}$ ) a 5 K. As cruces e os círculos sólidos e os círculos vazados denotam a curva inicial ( $a \rightarrow b$ ), o braço com campo decrescente ( $b \rightarrow c \rightarrow d$ ) e o braço com campo crescente ( $d \rightarrow e \rightarrow b$ ), respectivamente. Estas duas

curvas estão combinadas em (c) para mostrar o comportamento da magnetoresistência em função da magnetização. Extraída de C.L. Chien<sup>6</sup>.

regiões do campo coercivo. A correlação entre a MR e a magnetização é mostrada claramente na Figura II-4(c), que é nada mais que um gráfico de  $MR(H)$  versus  $M(H)$ . A relação mostra que a GMR é também, como é de se esperar, uma função par da magnetização<sup>32</sup>.

Embora GMR seja normalmente descrita em percentagem ( $\Delta\rho/\rho$ ), são os valores absolutos da resistividade  $\rho$  e de  $\Delta\rho$  que contém o intrincado efeito físico. Alguns autores propõem<sup>32,35</sup> que em sistemas magnéticos granulares exibindo GMR, a física essencial do comportamento da resistividade está contida em uma resistividade da forma:

$$\rho(H, T) = \rho_o(T) + \rho_m(T)[1 - F(M/M_s)],$$

Equação II-A

onde o primeiro termo  $\rho_o(T)$  é a parte da resistividade independente do campo, devida às contribuições usuais de espalhamento em fônons, defeitos e impurezas. O segundo termo é responsável pela GMR. O valor da resistividade magnética [ $\rho_m(T)$ ] em relação a  $\rho_o(T)$  é o que determina o tamanho do efeito da GMR. A dependência com o campo de  $\rho(H, T)$  se dá através da dependência da magnetização  $M$  com o campo magnético via a função  $F(M/M_s)$ . A função  $F(M/M_s)$  é uma função par de  $M/M_s$  com valores limites  $F(M/M_s) \rightarrow 0$  quando  $M \rightarrow 0$  (quando  $H=0$  ou  $H=H_c$ , onde  $H_c$  é o campo coercivo) e  $F(M/M_s) \rightarrow 1$  quando  $M \rightarrow M_s$ , (quando  $H \geq H_s$ , onde  $H_s$  é o campo de saturação).

O valor observado de GMR, se expresso em percentagem relativa ao estado de maior resistência é<sup>35</sup>:

$$\left(\frac{\Delta\rho}{\rho}\right)_0 = \frac{\rho(0, T) - \rho(H_s, T)}{\rho(0, T)} = \frac{\rho_m(T)}{\rho_o(T) + \rho_m(T)}.$$

Alternativamente, este valor pode ser escrito em percentagem relativa ao estado de menor resistência:

$$\left(\frac{\Delta\rho}{\rho}\right)_{H_s} = \frac{\rho(0, T) - \rho(H_s, T)}{\rho(H_s, T)} = \frac{\rho_m(T)}{\rho_o(T)},$$

Das duas equações acima, fica claro que o tamanho da GMR depende de uma combinação de  $\rho_o(T)$  com  $\rho_m(T)$ , que devem ser medidas separadamente.

Em sistemas granulares que exibem GMR, as resistividades medidas nas geometrias perpendicular, longitudinal e transversal são praticamente iguais ( $\rho_{\perp} \approx \rho_{\parallel} \approx \rho_T$ ), como pode ser visto esquematicamente na Figura II-2(e). Sistemas magnéticos granulares são a única mídia magnética a mostrar GMR independente da orientação relativa entre o campo magnético e a corrente elétrica. Quando usados como sensores de campo, este pode estar orientado em qualquer direção com respeito a amostra.

Além de apresentarem GMR com variação similar à obtida em algumas multicamadas<sup>9</sup>, os sólidos granulares podem ser facilmente obtidos por várias técnicas, tais como sputtering, “melt-spinning” e eletrodeposição, e sua microestrutura pode ser alterada significativamente através de tratamentos térmicos, permitindo estudos mais profundos da influência dos parâmetros estruturais sobre o fenômeno da magnetoresistência gigante<sup>41,42</sup>. Variando-se os métodos e/ou condições de tratamento térmico, uma ampla variedade de estruturas granulares pode ser criada<sup>43</sup>, as quais são caracterizadas pela distribuição de tamanhos e densidade das partículas. Embora os parâmetros estruturais sejam normalmente difíceis de estudar por análise estrutural convencional, eles podem ser obtidos indiretamente através da análise detalhada das

curvas de magnetização<sup>44,45</sup>. Desta forma é possível estudar a evolução da GMR como função da temperatura de tratamento, por exemplo, no sentido de encontrar as condições de tratamento ótimas para desenvolver materiais com grandes valores de GMR. Este tipo de análise tem sido feito em diferentes sistemas, e no caso de ligas de CoCu, a amplitude máxima de GMR é obtida para tratamentos térmicos em temperaturas no intervalo 440°C-500°C<sup>46,47,48</sup>.

Embora tenha sido feito um enorme esforço para entender os mecanismos básicos responsáveis pela GMR, bem como para otimizar o efeito para aplicações potenciais, a microestrutura complexa das amostras e o conseqüente comportamento magnético impedem ainda uma completa compreensão do fenômeno.

### III Interações Magnéticas

#### III.1 Introdução

Vários modelos teóricos foram propostos para explicar a GMR em sistemas granulares, e sua relação com a microestrutura dos materiais<sup>49,50,51,52</sup>. Análogo ao caso de multicamadas metálicas, a GMR em sistemas granulares é imaginada como sendo relacionada ao espalhamento dependente de spin dos elétrons de condução dos grãos magnéticos<sup>53,54,55</sup>. Assumindo que as partículas magnéticas são essencialmente superparamagnéticas, é esperado<sup>2</sup> um comportamento parabólico da GMR como função da magnetização reduzida  $M/M_s$ . Entretanto, várias evidências experimentais de desvios significantes da lei parabólica tem sido observados em diferentes sistemas<sup>56,57,58</sup>, indicando a existência de correlação magnética entre os momentos. Recentemente, uma teoria analítica que leva explicitamente em conta a correlação entre os momentos magnéticos foi proposta por Allia *et al.*<sup>59</sup> para explicar o achatamento das curvas de GMR versus  $M/M_s$  em campos baixos. A presença de correlação entre os precipitados magnéticos foi observada através de medidas de curvas de magnetização versus campo magnético<sup>60,61</sup> e até mesmo observação direta da formação de estruturas de domínios magnéticos em meios granulares usando microscopia de elétrons secundários polarizados (SEMPA)<sup>62</sup>.

Do ponto de vista teórico, a ausência de simetria translacional faz com que os cálculos necessitem ser mais rebuscados, mas modelos realísticos do acoplamento entre grãos magnéticos começam a aparecer na literatura<sup>63,64</sup>. Por exemplo, o trabalho de Altbir *et al.*<sup>63</sup>, onde são calculadas as energias das interações de dois grãos, de  $N$  átomos cada, entre si (interação dipolar) e também com os elétrons da banda condução (interação RKKY, Ruderman-Kittel-

Kasuya-Yosida). É assim demonstrado que para grãos maiores que aproximadamente 100 átomos de Co, o acoplamento é completamente dominado pela interação dipolar.

Uma maneira alternativa para estudar interações entre entes magnéticos são as curvas de remanência magnética<sup>65,66,67</sup>:  $M_r(H)$  (curva de remanência direta, medida partindo do estado

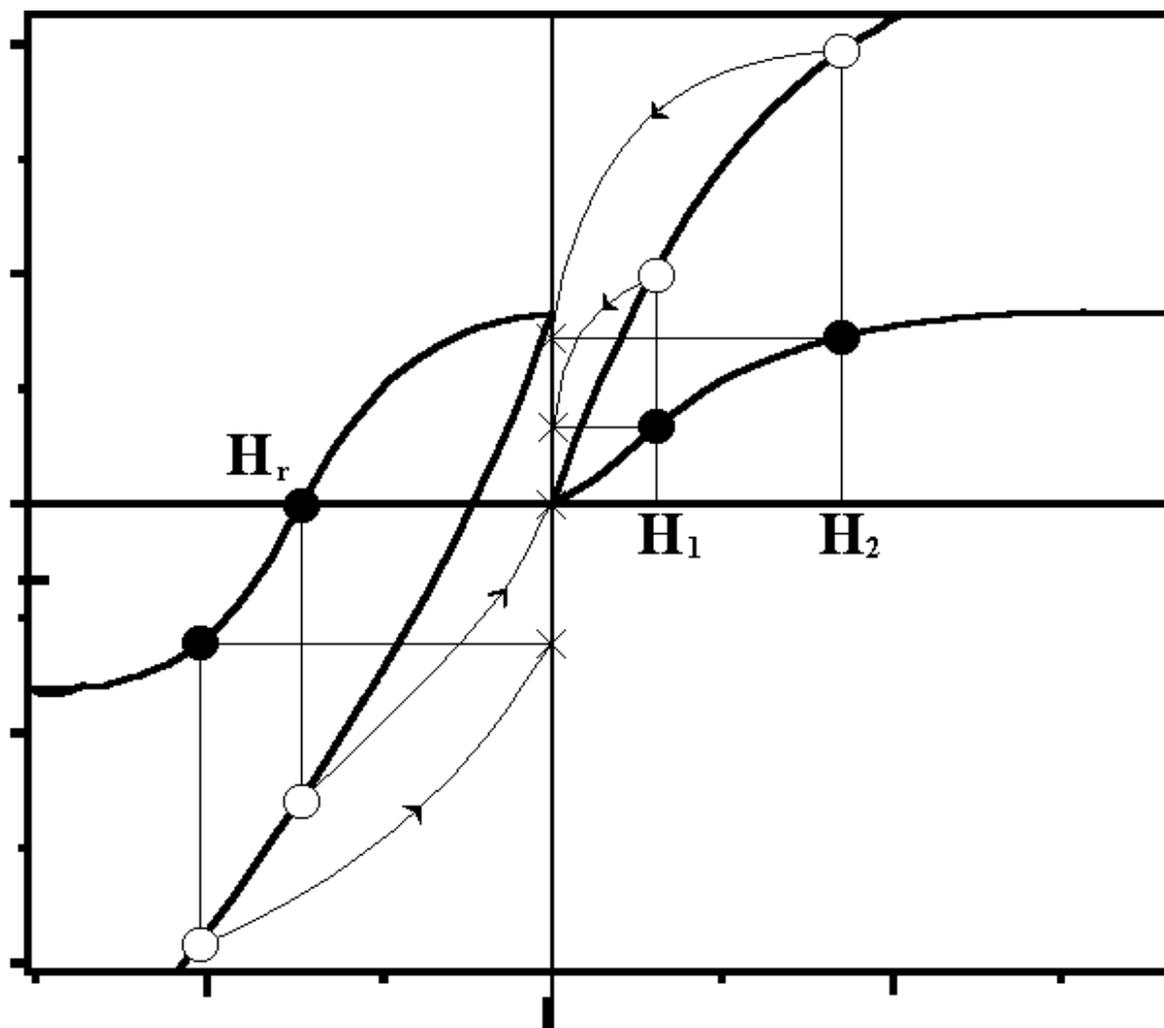


Figura III-A. Esquema de medida das curvas de remanência  $M_r(H)$  e  $M_d(H)$ .

desmagnetizado e normalizada pela remanência de saturação) e  $M_d(H)$  (curva de remanência inversa, medida partindo do estado previamente saturado e também normalizada pela

remanência de saturação), usadas principalmente para investigar materiais particulados usados como mídia de gravação. Ambas são medidas no intervalo  $0 < H < H_{\max}$ .

As medidas de magnetização remanente (remanência) são feitas simultaneamente à obtenção da curva de histerese, possibilitando a construção de três curvas a partir de uma única rotina de medida.

A medida de  $M_r(H)$  começa a partir do estado desmagnetizado da amostra (magnetização nula) e a curva é obtida simultaneamente com a curva de magnetização inicial: é aplicado um campo magnético  $H_1$  e medida a magnetização; é retirado o campo e medida a remanência que é relacionada com este campo  $H_1$ ; é aplicado um campo maior  $H_2$  e medida a magnetização; é retirado o campo e medida a remanência relacionada com este campo  $H_2$ ; e assim sucessivamente até o campo máximo. Ao graficarmos os valores de remanência contra os valores de campo ( $H$ ) obtemos a curva  $M_r(H)$ .

Após atingir o campo máximo, é medido apenas o segundo braço da curva de histerese, que vai desde o campo máximo até campo nulo.

A medida de  $M_d(H)$  começa a partir do estado saturado da amostra e a curva é obtida simultaneamente com o terceiro braço da curva de histerese: é aplicado um campo magnético inverso (no outro sentido) e medida a magnetização; é retirado o campo e medida a remanência relacionada com este campo; é aplicado um campo inverso maior e medida a magnetização; é retirado o campo e medida a remanência relacionada com este campo; e assim sucessivamente até o campo máximo inverso. Existe um campo para o qual a remanência é nula, chamado o campo coercivo da remanência ( $H_r$ ). Ao graficarmos os valores de remanência contra os valores de campo ( $H$ ) obtemos a curva  $M_d(H)$ .

Após atingir o campo máximo inverso, são medidos o quarto e o quinto braços da curva de histerese, passando pelo campo nulo e indo até o campo máximo novamente.

Uma técnica baseada nestas curvas, o gráfico de  $\delta M^{67}$ , tem sido usada (como por exemplo no trabalho de Parker *et al.*<sup>68</sup> sobre multicamadas de Fe/Cr) por ser muito sensível a pequenas mudanças nas curvas de remanência produzidas por interações entre as regiões magnéticas do sistema. Entretanto, a forma dos gráficos de interação depende muito do processo de desmagnetização.

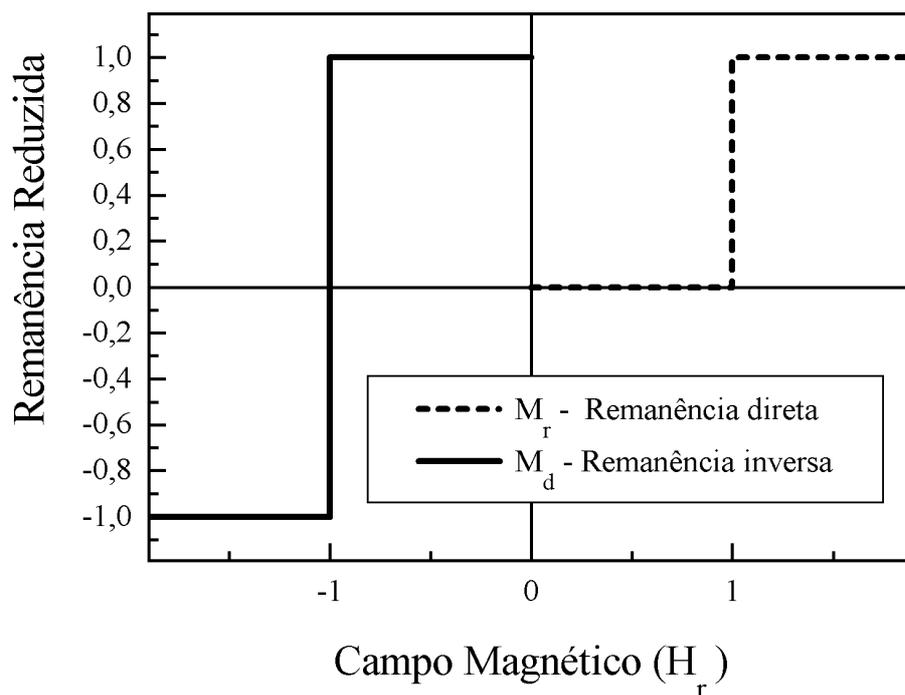
### **III .2 Gráficos de $\delta M$**

A maioria dos métodos usados para estimar os efeitos das interações magnéticas em materiais particulados e em multicamadas com anisotropia uniaxial são baseados na relação de Wohlfarth<sup>65</sup>:

$$M_d(H) = 1 - 2M_r(H),$$

Equação III-A

onde  $M_r(H)$  e  $M_d(H)$  são as magnetizações remanentes reduzidas, normalizadas pela remanência de saturação, e  $H$  é campo externo aplicado. Esta relação é válida apenas para sistemas com partículas monodomínio sem interação e com anisotropia uniaxial. Uma curva exemplificando o comportamento das curvas de remanência de tal sistema é apresentada na **figura iii-b**.



**Figura III-B.** Curvas de remanência para sistema idealizado de partículas monodomínio sem interação e com anisotropia uniaxial.

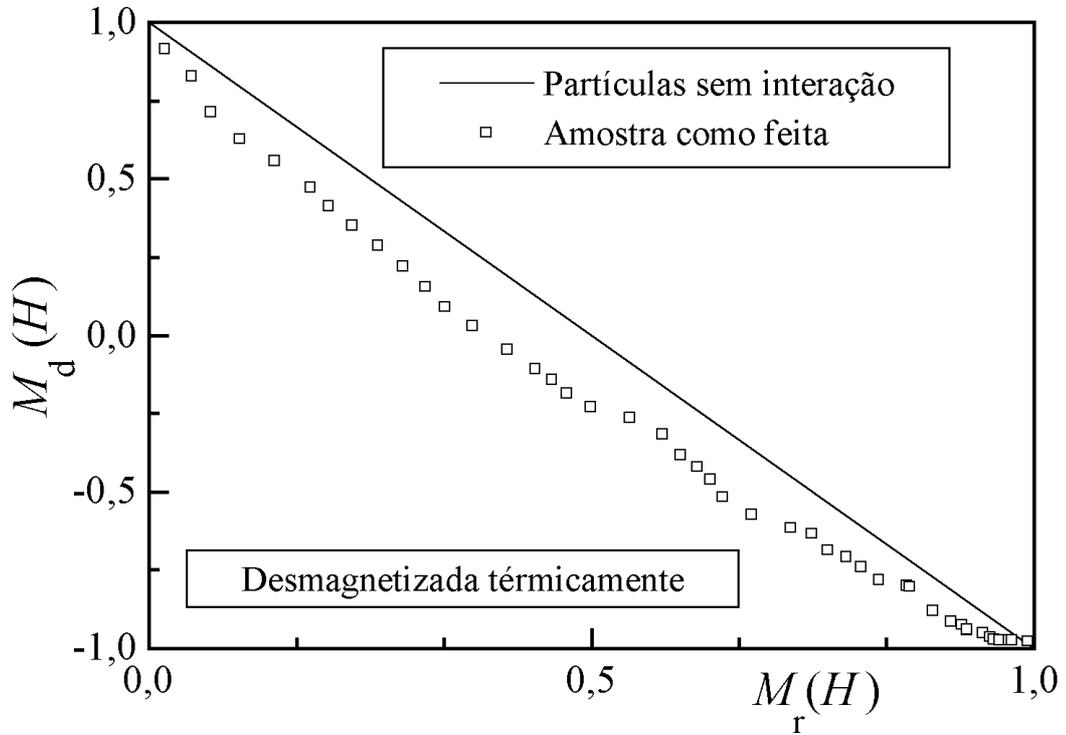
Esta representação torna a relação clara. Como cada partícula tem apenas dois valores possíveis de remanência (1 ou -1), são apenas duas regiões a serem consideradas:  $H < H_r$  e  $H > H_r$ , e em ambas a solução é a mesma.

Henkel<sup>66</sup> foi o primeiro a notar que para o caso de partículas com anisotropia uniaxial, a variação experimental de  $M_r(H)$  com  $M_d(H)$  mostra gráficos com curvaturas tanto positivas quanto negativas. O gráfico para o caso de partículas sem interação, desmagnetizada pela aplicação de um campo alternado (desmagnetização ac)<sup>a</sup> ou termicamente, corresponde a um gráfico linear com inclinação -2. Um exemplo pode ser visto na Figura III-3, onde temos o

---

<sup>a</sup>Desmagnetização ac: aplicação de um campo magnético alternado (ac) com a redução gradual da amplitude.

gráfico de Henkel apresentando curvatura abaixo da reta, o que corresponderia (veja próximo parágrafo) a valores negativos de  $\delta M$ .



**Figura III-C.** Gráfico de Henkel para amostra de  $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$  “melt-spun”, como feita, desmagnetizada térmicamente (virgem).

Mais tarde, valores positivos do gráfico de  $\delta M$ , definido por Kelly *et al.*<sup>67</sup> como:

$$\delta M(H) = M_d(H) - 1 + 2 M_r(H),$$

Equação III-B

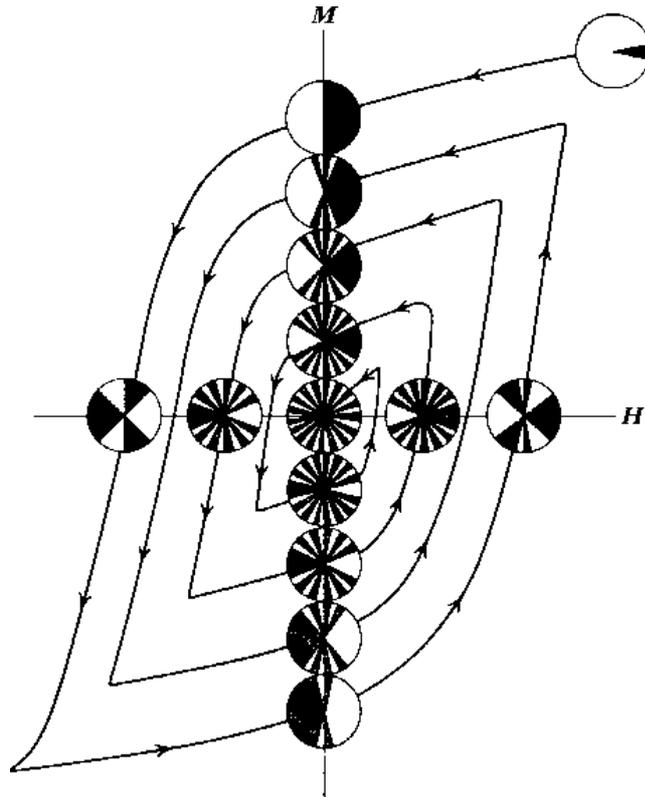
foram atribuídos à interações promovendo o estado magnetizado (amostra mais fácil de magnetizar do que desmagnetizar) enquanto que valores negativos foram relacionados com interações promovendo o estado desmagnetizado (amostra mais fácil de desmagnetizar do que magnetizar).

Isto pode ser melhor visualizado quando escrevemos  $\delta M$  em função da fração de partículas revertidas, para um dado campo, em cada uma das curvas  $M_r(H)$  e  $M_d(H)$ . Sendo  $P_I = M_r(H)$  e  $P_D = \frac{1}{2}(1 - M_d(H))$ , temos que  $\delta M = 2(P_I - P_D)$ , ou seja, duas vezes a diferença entre o número de partículas invertidas na magnetização e o número de partículas invertidas na desmagnetização. Um exemplo de como ocorre a inversão das partículas durante um processo de desmagnetização ac e também num ciclo de histerese pode ser visto nas Figura III-4 e Figura III-5 respectivamente.

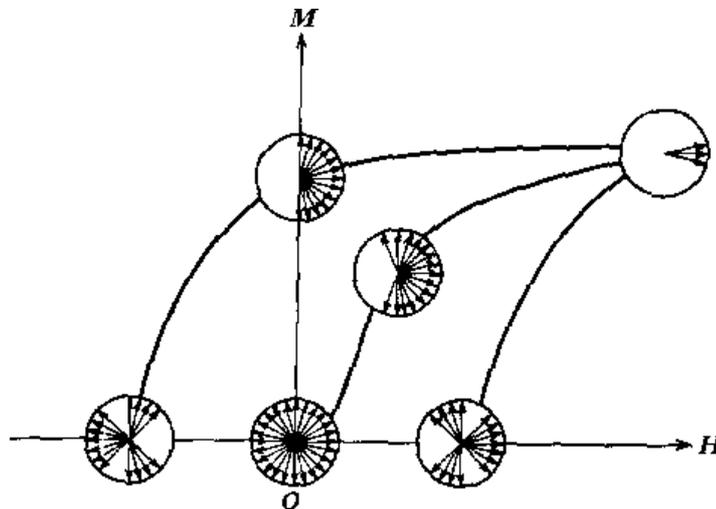
A relação para  $\delta M$  apresentada acima também é válida para ferromagnetos multidomínios quando as paredes de domínio interagem com a mesma densidade e distribuição de pontos de “pinning” tanto na magnetização quanto na desmagnetização<sup>69</sup>. Da mesma forma podemos definir

$$\delta M^{ac} = M_d(H) - 1 + 2M_r(H) .$$

Equação III-C



**Figura III-D.** Figura representando a variação da distribuição angular de domínios durante um processo de desmagnetização ac. Figura retirada de S. Chikazumi<sup>70</sup>.



**Figura III-E.** Variação da distribuição angular de domínios numa curva de magnetização. Figura retirada de S. Chikazumi<sup>70</sup>.

O estado magnético inicial da amostra para efetuar a medida de  $M_r(H) \times H$  é muito importante em sistemas com interação, pois é possível obter curvas iniciais de magnetização remanente muito diferentes<sup>71</sup> se a amostra for desmagnetizada ac, dc ou termicamente.

A desmagnetização dc, vale lembrar, consiste em levar o campo aplicado na amostra até a coercitividade remanente  $-H_r$  ( $H_r : M_d(H_r) = 0$ ) e então reduzir o campo a zero. Após a desmagnetização, as partículas com campos de anisotropia menor que  $H_r$  tem sua magnetização revertida, enquanto que aquelas que precisam de campos maiores que  $H_r$  para tanto, continuam magnetizadas na direção da remanência de saturação. Assim, o processo de desmagnetização dc consiste em mudar a direção da magnetização das partículas com campos de anisotropia pequenos que possuíam uma direção oposta à do campo externo.

Para o caso ideal de partículas sem interação com anisotropia uniaxial, Bissel *et al.*<sup>72</sup> relacionaram a curva de remanência direta após desmagnetização dc,  $M_r^{dc}(H)$ , e a curva de remanência inversa,  $M_d(H)$ .

As expressões resultantes são:

$$M_r^{dc}(H) = 1 - M_d(H), \quad \text{para } H < H_r, \text{ e}$$

Equação III-D

$$M_r^{dc}(H) = 1, \quad \text{para } H \geq H_r.$$

Equação III-E

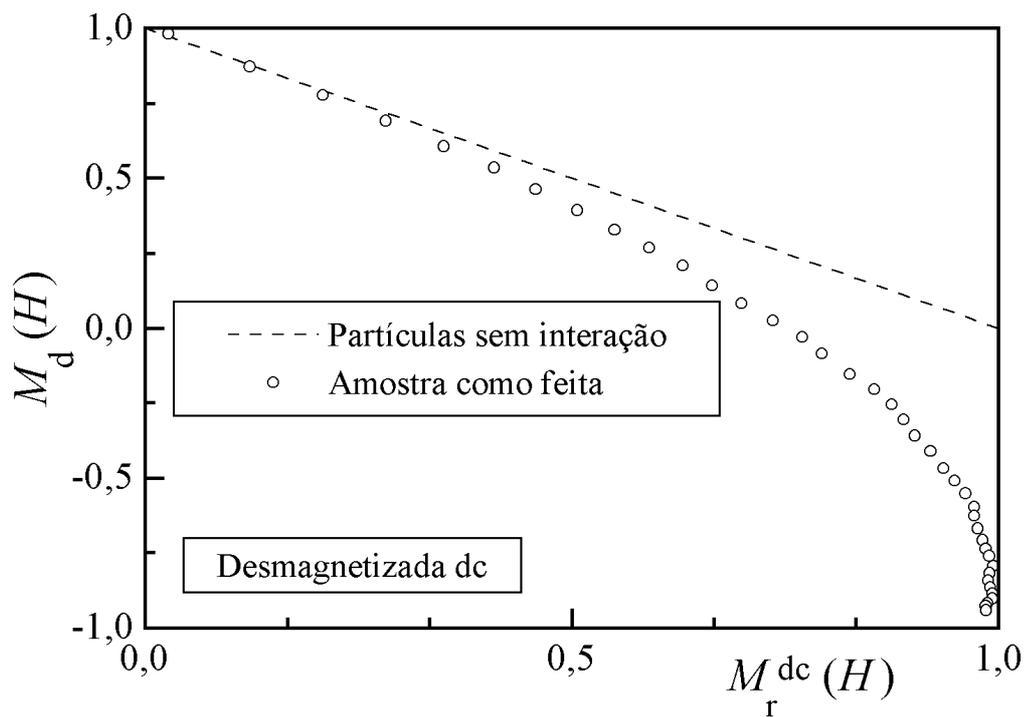
Aqui é introduzido um novo gráfico,  $\delta M^{dc}(H)$ , definido como

$$\delta M^{dc}(H) = M_r^{dc}(H) - 1 + M_d(H), \quad \text{para } H < H_r \text{ e}$$

Equação III-F

$$\delta M^{dc}(H) = M_r^{dc}(H) - 1, \quad \text{para } H \geq H_r.$$

Equação III-G



**Figura III-F.** Gráfico de Henkel para amostra de  $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$  "melt-spun", como feita, desmagnetizada dc.

O gráfico de  $\delta M^{dc}(H)$  para o caso de partículas sem interação com anisotropia uniaxial é zero para todos os valores de  $H$ . Correspondentemente, o gráfico de Henkel é linear e tem inclinação -1, como pode ser visto na Figura III-6.

## IV Experimental

### IV.1 Introdução

Neste capítulo serão apresentados os detalhes experimentais do trabalho, referentes à produção, preparação e medida das propriedades magnéticas e de transporte eletrônico das amostras, bem como um pequeno resumo sobre as técnicas experimentais utilizadas.

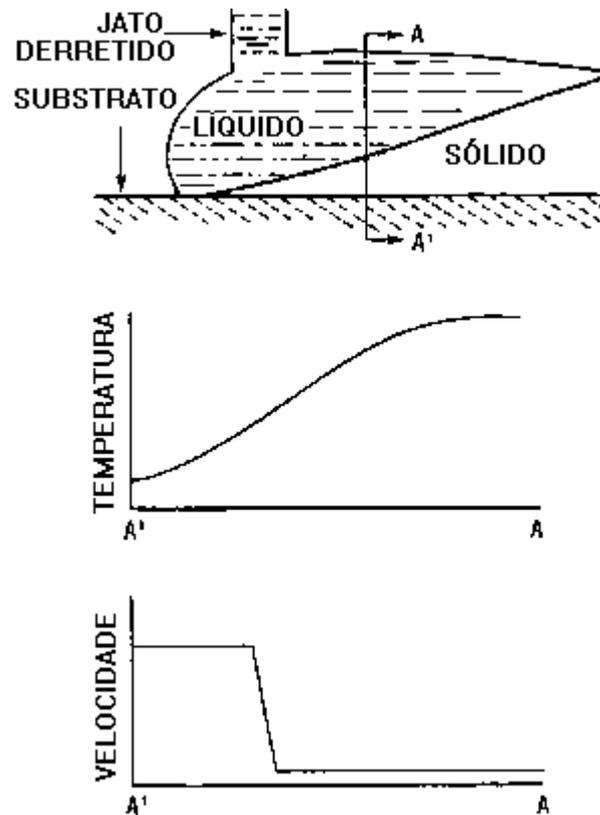
As amostras estudadas foram fabricadas pelo Dr. M. Knobel no IEN “Galileo Ferraris”, Torino, Itália, sendo que neste trabalho foram posteriormente tratadas a diferentes temperaturas ( $T_{\text{ann}}$ ) e por diferentes intervalos de tempo ( $t_{\text{ann}}$ ) em um forno a lâmpada. As medidas de magnetização foram feitas em um magnetômetro de gradiente de campo alternado (AGM - Alternating Gradient Magnetometer), a temperatura ambiente, e posteriormente calibradas em um magnetômetro de amostra vibrante (VSM - Vibrating Sample Magnetometer); as medidas de magnetoresistência foram feitas usando um sistema de quatro pontas, também a temperatura ambiente, utilizando uma bobina supercondutora para geração do campo magnético.

### IV.2 Produção e Preparação das Amostras

Fitas de  $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$  foram preparadas por resfriamento rápido (CBMS - Chill Block Melt-Spinning) em atmosfera de He sobre uma roda de  $\text{CuZr}^{47}$ . A produção das mesmas se deu após diversos testes para obtenção dos parâmetros ótimos para preparação de fitas contínuas, em vácuo e atmosferas protetoras para evitar oxidação. Estas fitas foram cortadas em tiras e submetidas a tratamentos térmicos em um forno a lâmpada a diferentes temperaturas  $T_{\text{ann}}$  entre  $200^{\circ}\text{C}$  e  $700^{\circ}\text{C}$  por intervalos de tempo  $t_{\text{ann}}$  desde 5 min até 240 min, numa atmosfera inerte (argônio).

#### IV .2 .1 “Melt-spinning”

O termo “melt-spinning” vem do inglês “Chill Block Melt-spinning” (CBMS) e a técnica consiste em jogar um jato de uma liga metálica ainda em estado líquido (melt) ao encontro de um substrato frio (chill block) que gira.



**Figura IV-A.** Diagrama esquemático da “gota” (puddle) de metal derretido sobre o substrato em alta velocidade. Abaixo são apresentados os perfis de temperatura e velocidade através da seção reta  $A-A'$ , segundo o modelo de Kavesh<sup>78</sup>. Figura retirada de H.H. Liebermann<sup>75</sup>.

O processo envolve a formação de um jato líquido, pela expulsão da liga fundida através de um orifício, contra a superfície de um substrato que se move rapidamente. As taxas de resfriamento obtidas são da ordem de  $10^6$  K/s. As superfícies mais comuns são o interior ou exterior de tambores ou rodas metálicas<sup>73,74</sup>. Tanto a taxa de resfriamento inicial quanto a

geometria final da fita dependem da natureza da massa líquida. Por exemplo, uma massa estável durante o processo de CBMS normalmente resulta em fitas com superfície e borda suaves<sup>75,76,77</sup>.

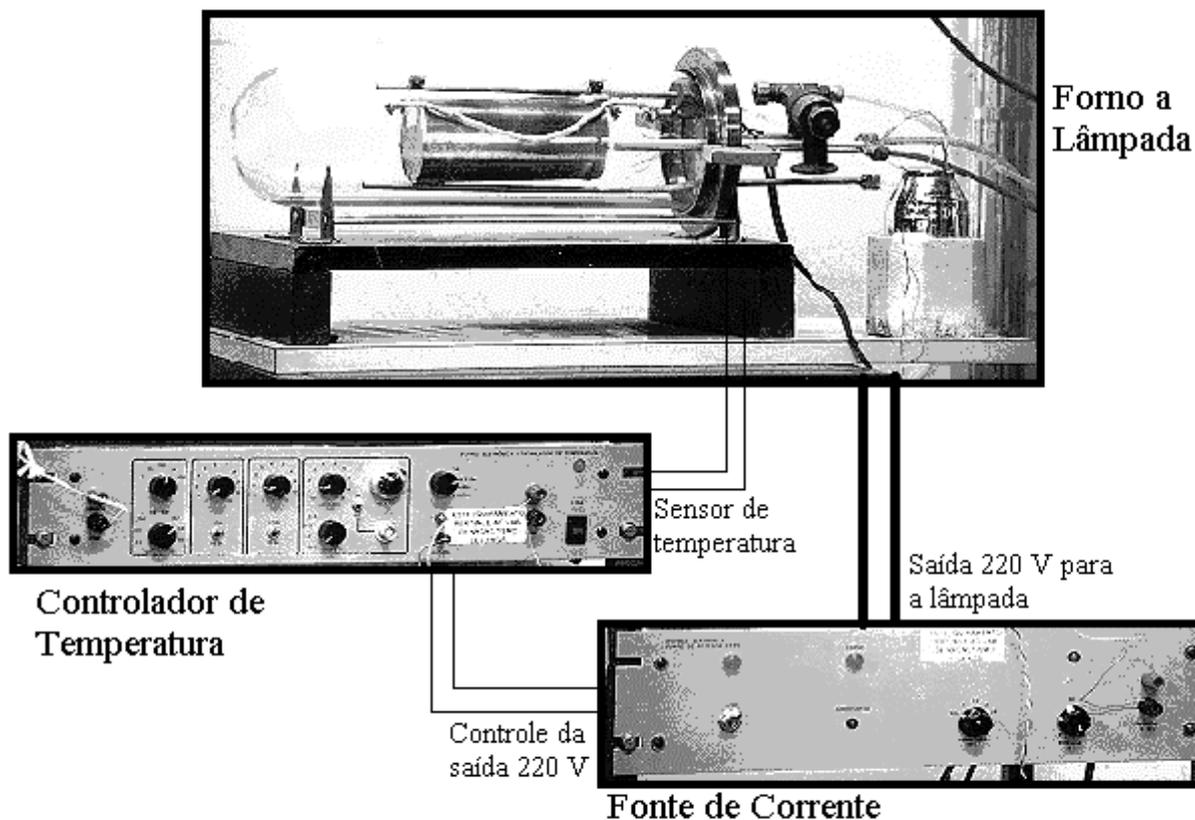
Uma descrição matemática apurada do processo de CBMS é difícil devido à ocorrência simultânea de transferência de massa e de calor. Com o propósito de controlar o produto final, produzindo amostras uniformes e, acima de tudo, reproduzíveis, têm sido estabelecidas relações empíricas entre parâmetros do processo de produção e largura e espessura das fitas<sup>73,78,79,80,81,82</sup>. Na Figura IV-1 é apresentado um diagrama esquemático da “gota” (puddle) de metal derretido em contato com a superfície em alta velocidade, junto com perfis de temperatura e velocidade conseguidos através do modelo de Kavesh<sup>78</sup>.

#### **IV .2 .2Forno a Lâmpada e Ambiente Inerte**

Um desenho esquemático do forno a lâmpada é mostrado na Figura IV-2. O forno é composto basicamente por uma lâmpada halógena e uma cuba de quartzo externa, fechada por um anel de vedação de borracha e uma base de latão. Nesta base existem passadores para os contatos do medidor de temperatura e da alimentação elétrica para a lâmpada, bem como os orifícios para circulação de gás e ligação à bomba de vácuo.

Após a colocação da amostra no forno e o seu fechamento, é iniciado o processo de “limpeza” de sua atmosfera, que se dá através da repetição dos processos de evacuação (até  $8.10^{-2}$  mBar) e subsequente alimentação com argônio até a pressão de aproximadamente 760 mmHg.

Após este ciclo, a válvula de alimentação de argônio é aberta para que a pressão interna atinja um valor acima de 760 mmHg, para que então seja aberta a válvula de alívio de gás. Isto impede a entrada de qualquer gás do exterior para o interior do forno. É então mantido um fluxo



**Figura IV-B.** Diagrama de blocos representando o forno a lâmpada

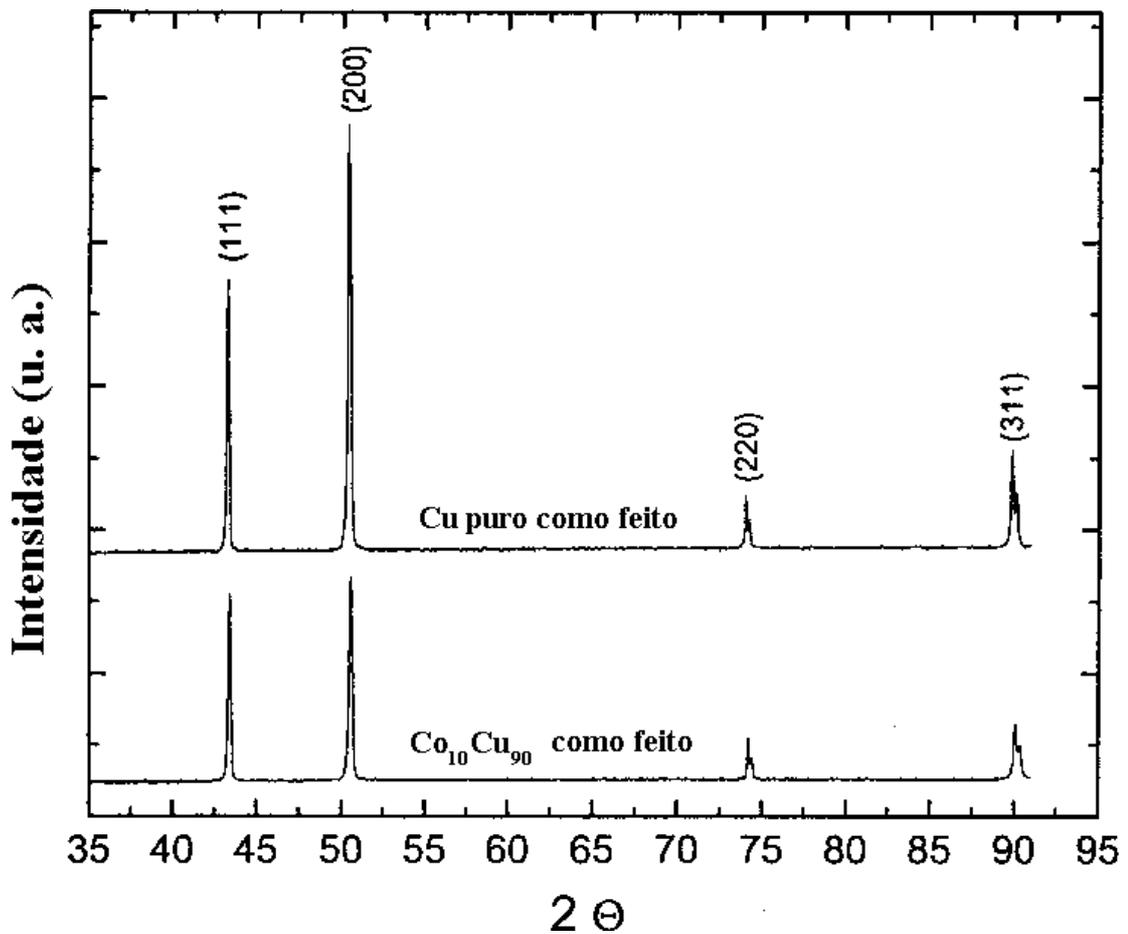
de gás através do forno por aproximadamente 10 min, para dar-se então início ao tratamento. O fluxo de gás é mantido durante todo o tempo do tratamento e durante o resfriamento da amostra, que se dá por meio da circulação de água através de uma serpentina colada à base metálica do forno.

#### **IV .2 .3 Medida e Controle de Temperatura**

A temperatura no interior do forno é medida utilizando-se um termopar de platina 10%-rhodio-platina.

O aquecimento é feito através da transmissão de calor da lâmpada halógena para a amostra. O controle da temperatura é feita através de um controlador de temperatura construído no Laboratório de Eletrônica da UFRGS. Durante a medida, a temperatura pode ser monitorada através de qualquer voltímetro.. Este controlador permite um precisão de 1°C.

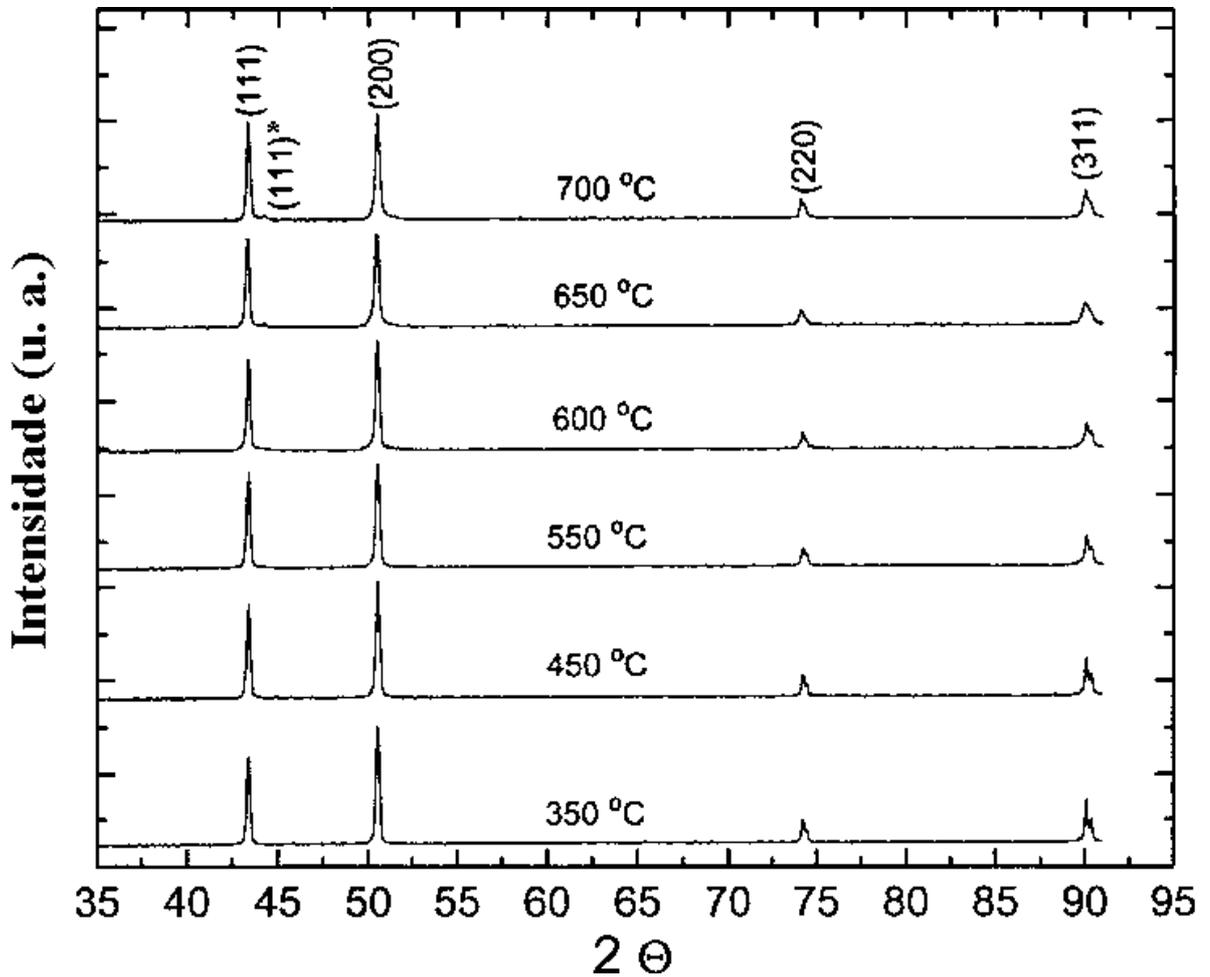
#### IV.3 Caracterização Estrutural das Amostras: Difração de Raios-X



**Figura IV-C.** Espectro de raios-x para amostras de Cu puro e Co<sub>10</sub>Cu<sub>90</sub>, ambas como feitas. Retirada de Yu *et al.* <sup>47</sup>.

Os dados referentes à caracterização estrutural das amostras foram obtidos no IEN “Galileo Ferraris”<sup>83</sup> estão publicados na Referência [47]. Eles mostram a presença de átomos de Co dissolvidos na matriz do Cu, bem como pequenas partículas de Co fcc. Estas partículas não

podem ser caracterizadas por difração convencional devido à alta coerência entre os parâmetros de rede do Co e a matriz de Cu, assim



**Figura IV-D.** Espectro de raios-x para amostras de  $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$  tratadas a diferentes temperaturas. O asterisco (\*) representa a linha de difração dos aglomerados de Co. Retirada de Yu *et al.* <sup>47</sup>.

como pelo seu tamanho relativamente pequeno (dezenas de Å). Não há indicação de Co hcp. Durante o tratamento térmico, é observada a formação das partículas de Co devido ao processo de difusão, que separa os átomos de Co da matriz de Cu fcc a medida que a  $T_{\text{ann}}$  aumenta.

#### IV.4 Medidas de Magnetoresistência

Um esquema básico do sistema utilizado para as medidas de resistência  $R$  pode ser visto na Figura IV-5. As medidas de  $R$  são feitas a temperatura ambiente usando o método padrão de quatro-pontas.

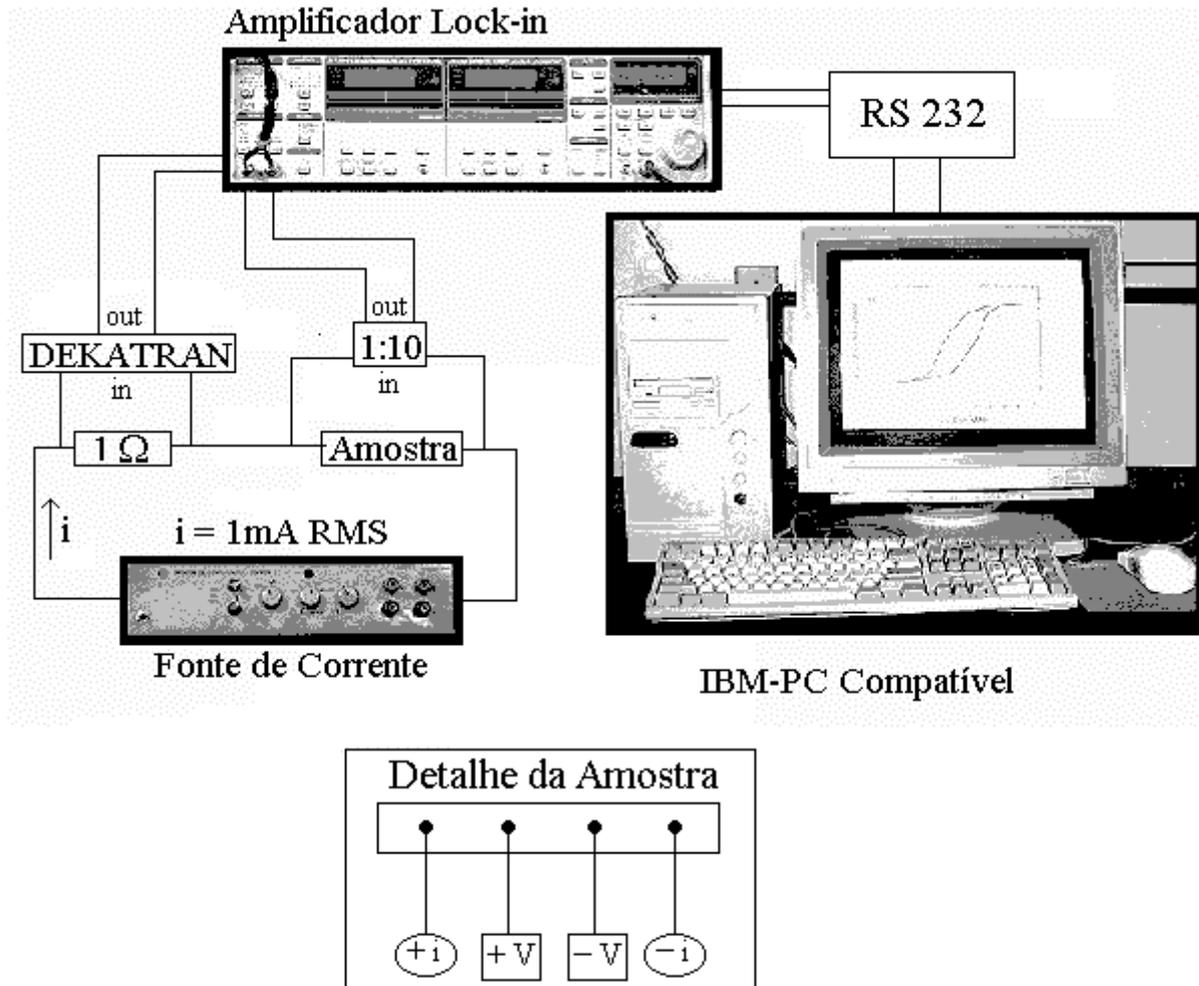


Figura IV-E. Diagrama de blocos com o esquema básico do sistema de medida de resistência.

Quatro pontas de contato são coladas à amostra. As duas pontas externas são ligadas em série à uma resistência padrão de  $1\ \Omega$  e a uma fonte de corrente. A amostra e a resistência padrão são atravessadas por uma corrente de  $1\ \text{mA RMS}$ , com frequência da ordem de  $20\ \text{Hz}$ . A queda

de tensão sobre a amostra (medida com as duas pontas internas) é amplificada 10 vezes através de um transformador de baixo ruído. A queda de tensão sobre a resistência padrão é multiplicada (reduzida) por uma década de transformadores (DEKATRAN). É feita então a subtração entre as duas voltagens, que é amplificada por um amplificador síncrono sensível à fase (lock-in). Esta amplificação permite que mesmo sinais muito pequenos, da ordem de nano-volts, sejam percebidos em meio a um ruído.

O campo magnético é aplicado no plano da amostra, utilizando-se um ímã supercondutor. A razão relativa da GMR é definida como  $\Delta R/R(H) \equiv [(R(H=0) - R(H))/R(H=0)] \times 100$ . O valor máximo de variação da magnetoresistência gigante GMR é dado por  $\Delta R/R_{\max} \equiv \Delta R/R(H_{\max})$ , onde  $H_{\max} = 60$  kOe é o campo máximo a que é submetida a amostra.

Valores típicos: uma variação de 10 nV na tensão medida (diferença entre as quedas de tensão na amostra e no padrão) equivale a uma variação de 1  $\mu\Omega$  na resistência da amostra (para uma resistência inicial típica de 5 m $\Omega$ , uma variação de 0.02 %). As variações típicas de resistência [ $R(H=0) - R(H=H_{\max})$ ] das amostras estudadas são da ordem de 500  $\mu\Omega$ , o que corresponde a um sinal de 5  $\mu$ V.

#### **IV .4 .1 Sistema supercondutor**

Todo o sistema supercondutor é formado pelos seguintes componentes:

- 1) Bobina supercondutora;
- 2) Criostato;
- 3) Sensor e Monitor do nível de He (controle remoto);
- 4) Chave inversora da corrente (controle remoto);
- 5) Sensor de temperatura;

- 6) Fonte de potência (controle remoto);
- 7) Módulo de interface (IEE-488 e RS232);
- 8) Linha de transferência de He;
- 9) Criostato interno de temperatura variável.

O criostato utilizado foi fabricado todo em aço inoxidável, com escudo de nitrogênio líquido, pela Cryoindustries of America. Para medidas feitas com a amostra a temperatura ambiente, é prática comum evacuar o criostato interno. O método de resfriamento do sistema consiste de: **1)** preenchimento do escudo de nitrogênio líquido e pré-resfriamento do sistema a aproximadamente 77 K e **2)** preenchimento do reservatório de He até, no mínimo, um nível de 25 cm de He líquido assegurando o completo resfriamento da bobina supercondutora a 4.2 K.

O sistema permite uma rápida troca de amostras, sem necessidade de aquecimento do criostato.

#### ***IV.5 Medidas de Magnetização e Magnetização Remanente***

As medidas de magnetização e magnetização remanente foram feitas usando um AGM a temperatura ambiente. Este equipamento consegue uma excelente relação sinal ruído mesmo para pequenas quantidades de material magnético (100 Å de Fe, 0.25 cm<sup>2</sup>). Nas medidas foram usadas amostras de aproximadamente 5 mg (500 µg de material magnético). No entanto, devido a grande sensibilidade do equipamento à posição e à massa da amostra não há como se fazer uma medida absoluta da magnetização. A troca da amostra por um padrão, mesmo que não mude sua massa (ou mude de um fator conhecido), muda sua posição.

Para a calibração, é usada uma amostra padrão de Ni com magnetização de saturação  $M_{Ni} = 32.095 \cdot 10^{-3}$  emu. Ela é saturada em um campo magnético de 6 kOe e é então medida sua magnetização em um VSM, que apresenta uma tensão RMS  $V_{Ni}$  proporcional à sua

magnetização. A amostra padrão é então substituída por uma amostra do sistema estudado (de massa  $m_{\text{CoCu}}$  conhecida) e medida sua magnetização ( $V_{\text{CoCu}}$ ). Desta forma, é possível então saber a magnetização em emu/g da amostra em um campo de 6 kOe:

$$M^{\text{CoCu}}(H = 6 \text{ kOe}) = V_{\text{CoCu}} (M^{\text{Ni}} / V_{\text{Ni}}) / m_{\text{CoCu}}.$$

Equação IV-A

Através desta medida e conhecendo o valor da magnetização (em V RMS) medido pelo AGM em 6 kOe  $V_{\text{CoCu}}^{\text{AGM}}(H = 6 \text{ kOe})$ , temos então o valor da magnetização para qualquer campo magnético:

$$M^{\text{CoCu}}(H) = V_{\text{CoCu}}^{\text{AGM}}(H) M^{\text{CoCu}}(H = 6 \text{ kOe}) / V_{\text{CoCu}}^{\text{AGM}}(H = 6 \text{ kOe}).$$

Equação IV-B

As curvas de magnetização remanente  $M_r(H)$ ,  $M_r^{\text{dc}}(H)$  e  $M_d(H)$  são obtidas partindo-se dos estados desmagnetizado, desmagnetizado dc e saturado, respectivamente, e obedecem à uma rotina de medida semelhante e uma rotina de calibração idêntica as usadas para as medidas de magnetização. Para a medida de  $M_d(H)$  a amostra é inicialmente saturada no sentido positivo, sendo então o campo reduzido para ser medida  $M_d(0)$ . Um pequeno campo é aplicado no sentido negativo e logo retirado, para ser medida a magnetização remanente. Um campo um pouco maior é então aplicado e retirado, e novamente é medida a magnetização remanente. O processo é repetido até que a amostra tenha atingido a saturação no sentido negativo.  $M_r(H)$  é medida da mesma forma, sendo que a diferença está apenas no estado inicial (desmagnetizado). A Figura IV-6 mostra dois exemplos representativos de medidas de  $M_r(H)$  e  $M_d(H)$ .

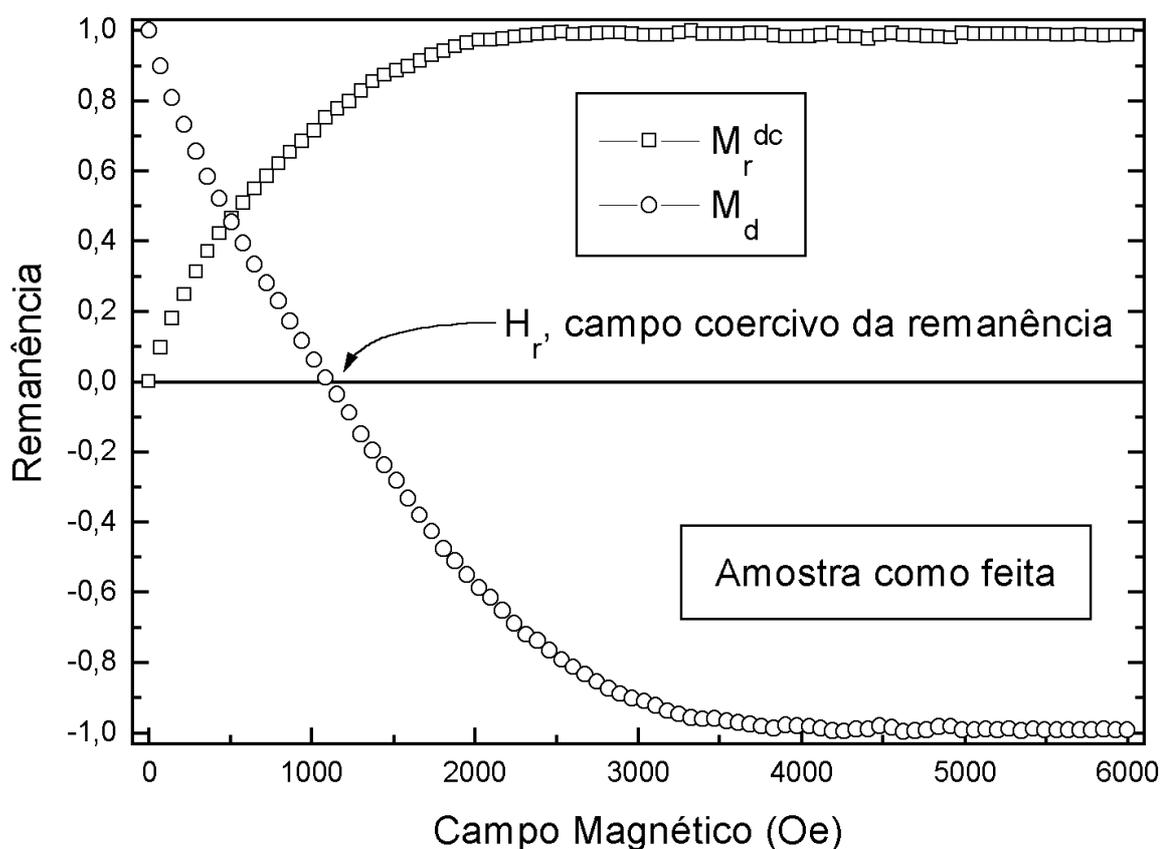


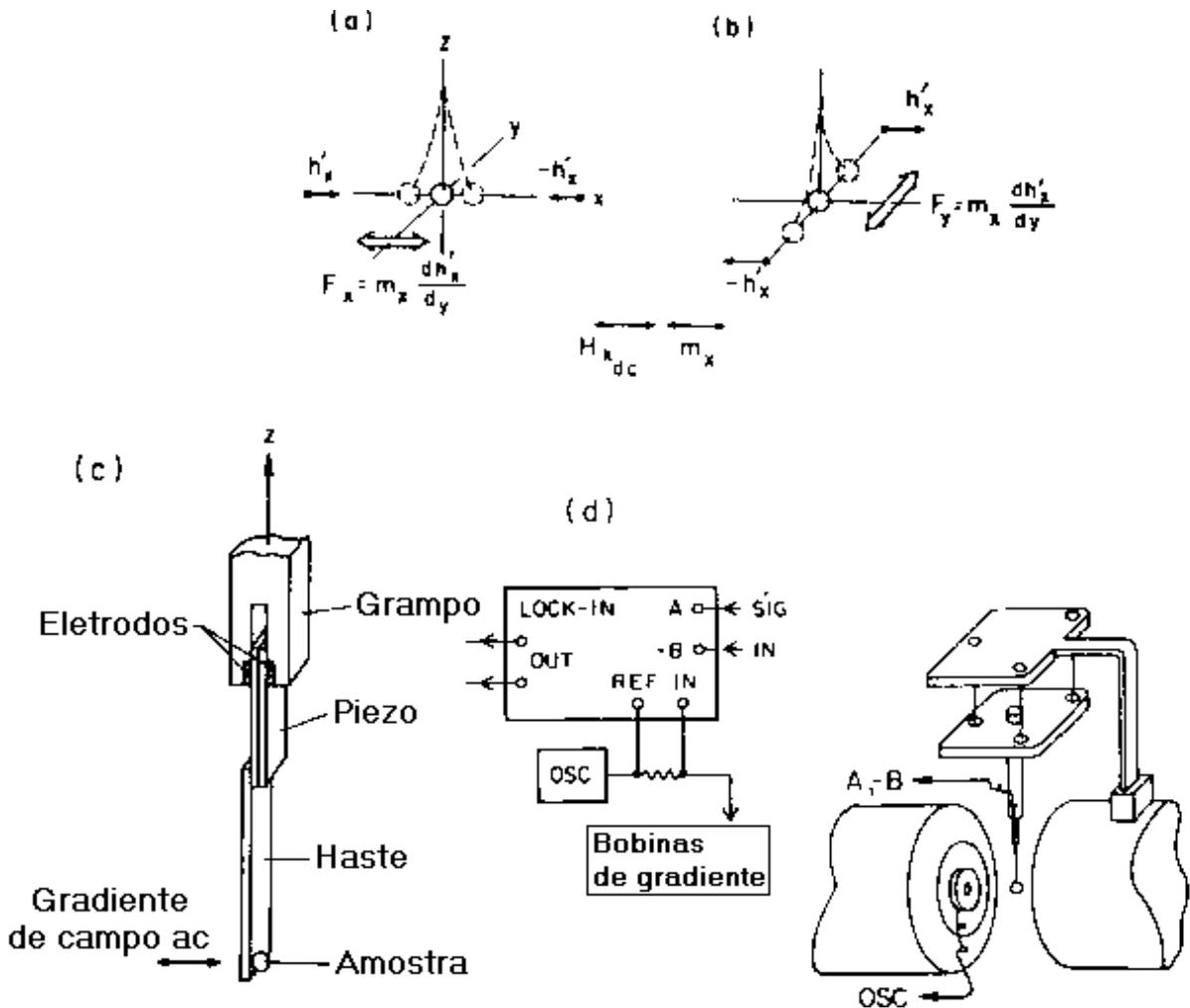
Figura IV-F. Curvas representativas de  $M_r(H)$  e  $M_d(H)$  de  $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$ .

#### IV .5 .1AGM - Magnetômetro de Gradiente de Campo Alternado

O magnetômetro de gradiente de campo alternado (ou magnetômetro de gradiente de força ac) é um instrumento para medida de momento magnético. O sistema existente no Laboratório de Magnetismo, usado para as medidas apresentadas neste trabalho, foi montado com base no artigo de Flanders<sup>84</sup>.

O primeiro magnetômetro de AGM foi desenvolvido por Zijlstra<sup>85</sup>, que detectava a amplitude vibracional opticamente usando um microscópio. Reeves<sup>86</sup> detectava a amplitude de vibração usando um piezelétrico, o qual não fazia parte da haste. Um “review” sobre

magnetômetros de força ac e uma comparação com outros métodos pode ser encontrado no artigo de Foner<sup>87</sup>.



**Figura IV-G.** (a) e (b) configurações do campo magnetizante e de gradiente; (c) piezelétrico, haste e amostra; (d) visão geral do sistema. Retirada de P.J. Flanders<sup>84</sup>.

O sistema de medida é baseado na geração de um gradiente de campo alternado para a produção de uma força periódica em uma amostra magnetizada (Figura IV-7(a,b)). A amostra é colocada na ponta de uma haste vertical de pirex (eixo z), com o campo de gradiente ao longo do eixo x ou y. A parte superior da haste é presa à extremidade inferior de um cristal piezelétrico

(Figura IV-7c). A extremidade superior do piezelétrico é presa firmemente a dois eletrodos. A força do gradiente de campo na amostra magnetizada produz uma torção no piezelétrico, que gera uma tensão proporcional à força na amostra. A tensão elétrica gerada no piezelétrico é detectada em sincronia com a frequência do gradiente de campo. A amplitude desta tensão é proporcional ao momento magnético da amostra, o que permite a construção de uma curva de histerese através da variação do campo magnético  $H$ .

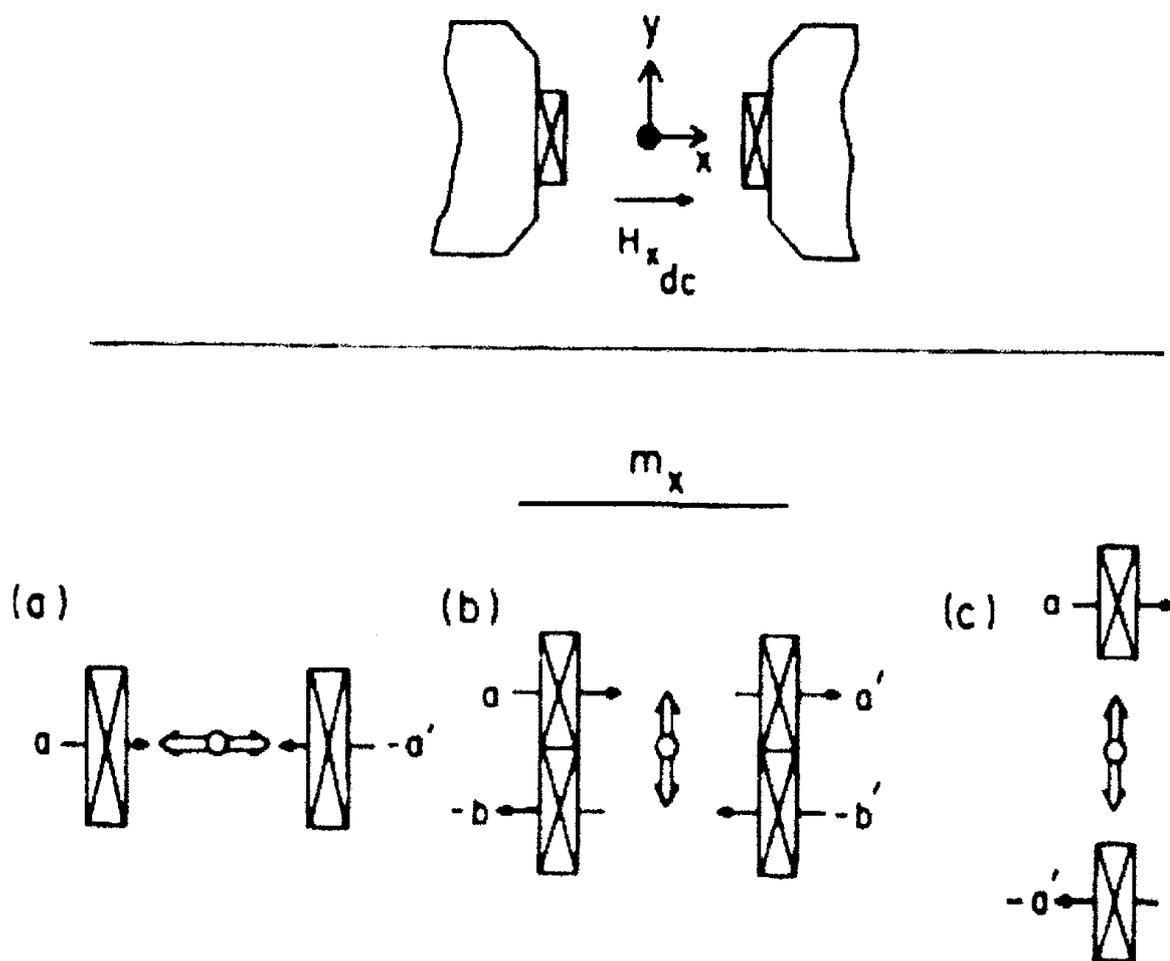


Figura IV-H. Vários arranjos das bobinas geradoras do gradiente. Retirada de P.J. Flanders<sup>34</sup>.

A orientação do piezelétrico depende da direção do gradiente. Na Figura IV-8a, a força na direção  $x$  entre o gradiente de campo  $\dot{h}_x$  e o momento magnético  $m_x$  é

$$F_x = m_x \dot{dh}_x / dx$$

Equação IV-C

enquanto que na Figura IV-8(b,c) a força na direção  $y$  é

$$F_y = m_x \dot{dh}_x / dy$$

Equação IV-D

Em ambos os casos acima,  $m_x$  é variado através de uma variação em  $H_x$ .

Para um piezelétrico livre (isto é, sem nada preso a ele), a frequência fundamental de ressonância é dada por

$$f_0 = t_B / (2\pi l_b^2) \cdot (Y_{11} / \rho)^{1/2}$$

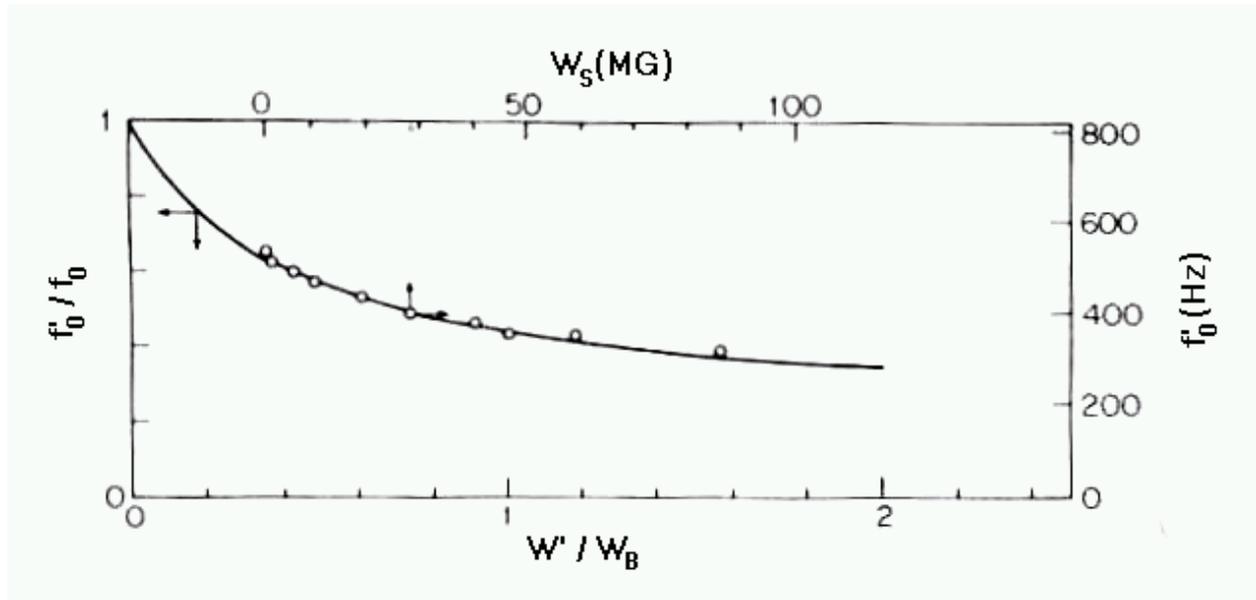
Equação IV-E

onde  $t_B$  é a espessura do piezelétrico com densidade  $\rho$  e módulo de Young  $Y_{11}$  e  $l_b$  é o seu comprimento. Quando a haste e a amostra são coladas a ele, a frequência de ressonância é diminuída de  $f_0$  para  $f_0'$  por um fator que é uma função da razão  $W'/W_B$ , onde  $W'$  é o peso combinado da haste, da amostra e chapas de fixação, e  $W_B$  é o peso do piezelétrico. A expressão que governa esta diminuição é <sup>88</sup>

$$f_0'/f_0 = (W_B / W_B + 4.2 W')^{1/2}.$$

Equação IV-F

Na Figura IV-9 temos um gráfico de  $f_0'/f_0$  versus  $W'/W_B$ . A linha cheia é calculada usando a Equação IV-6, e os círculos são pontos experimentais para uma série de 10 amostras diferentes.



**Figura IV-I.** A curva para  $f'_0/f_0$  versus  $W'/W_B$ , da Equação IV-6, e valores experimentais para  $f'_0$  versus  $W_S$  para dez amostras diferentes ( $W_S = 2.2$  até 86 mg), presas a uma haste de 24 mg e um piezelétrico de 70 mg com  $f_0 = 827$  Hz. Retirada de P.J. Flanders<sup>89</sup>

Combinando as Equação IV-5 e Equação IV-6, encontramos

$$f'_0 = t_B / (2\pi l_B^2) \cdot [Y_{11} W_B / \rho (W_B + 4.2 W')]^{1/2} .$$

Equação IV-G

Para um piezelétrico medindo  $2 \times 0.15 \times 0.06$  cm<sup>3</sup>, pesando 108 mg,  $f_0$  é de aproximadamente 500 Hz. Como é aconselhável manter a frequência de medida acima dos 200 Hz para evitar a maioria dos ruídos ambientes, para este piezelétrico o valor máximo de  $W'$  é de  $1.25 W_B$  ou 135 mg.

A relação entre a força aplicada a ponta da haste e a tensão elétrica no piezelétrico é<sup>84</sup>

$$V/F = 3G(l_b + l_e)g_{31} (1 - \delta^2/t_b^2)/2\omega_b t_b .$$

Equação IV-H

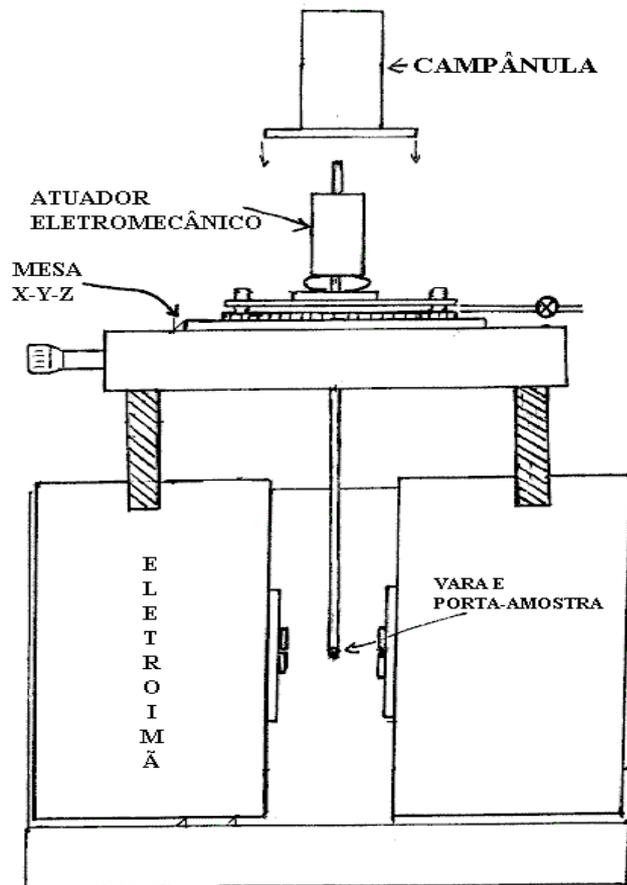
Ao combinar as Equação IV-3, Equação IV-4 e Equação IV-8, podemos escrever

$$V/m_x = 3G(l_b + l_e)g_{31} (1 - \delta^2/t_b^2) (dh'_x/dy)10^{-3}/2\omega_b t_b$$

onde G é o fator de ganho,  $l_b$  é o comprimento do piezelétrico,  $l_e$  é o comprimento da haste,  $g_{31}$  é o coeficiente de tensão do piezelétrico,  $\delta$  é a espessura da lâmina separadora do piezelétrico e  $\omega_b$  é a largura do piezeelétrico.

Quando expressamos o gradiente em Oe/cm e a força em dinas, temos  $V/m_x$  em unidades de volts por emu.

#### IV .5 .2VSM - Magnetômetro de Amostra Vibrante



**Figura IV-J.** Figura esquemática de um magnetômetro de amostra vibrante (VSM - Vibrating Sample Magnetometer). Retirada de R.L. Sommer<sup>90</sup>

O magnetômetro de amostra vibrante (VSM) também é um instrumento para medida de momento magnético. O princípio de funcionamento está baseado na detecção da força eletromotriz (*fem*) produzida numa bobina por um fluxo magnético variável devido ao movimento da amostra. O diagrama esquemático de um VSM típico é mostrado na Figura IV-10. Neste sistema a amostra é colocada na extremidade de uma haste não-magnética (à qual é imposto um movimento vibracional pelo atuador mecânico) e imersa em um campo magnético. Quatro bobinas sensoras são colocadas em série, duas (em oposição) em cada pólo<sup>b</sup>, próximas da amostra.

Para uma amostra sujeita a um campo magnético com momento  $M_s$ , o fluxo magnético pode ser escrito como:

$$\Phi = AH + B(4\pi - D)M_s \cdot \text{sen}(\omega t)$$

Equação IV-I

onde A e B são fatores que dependem da geometria das bobinas, D é o fator de desmagnetização da amostra e  $\omega$  é a frequência de vibração da vara. Como a *fem* é proporcional à variação do fluxo  $\Phi$  com o tempo, tem-se

$$fem = C(4\pi - D)M_s \cdot \omega \cdot \text{sen}(\omega t)$$

Equação IV-J

onde C é uma constante determinada pela calibração do instrumento. Para filmes finos (medidos no plano da amostra) o fator desmagnetizante<sup>c</sup> é desprezível.

---

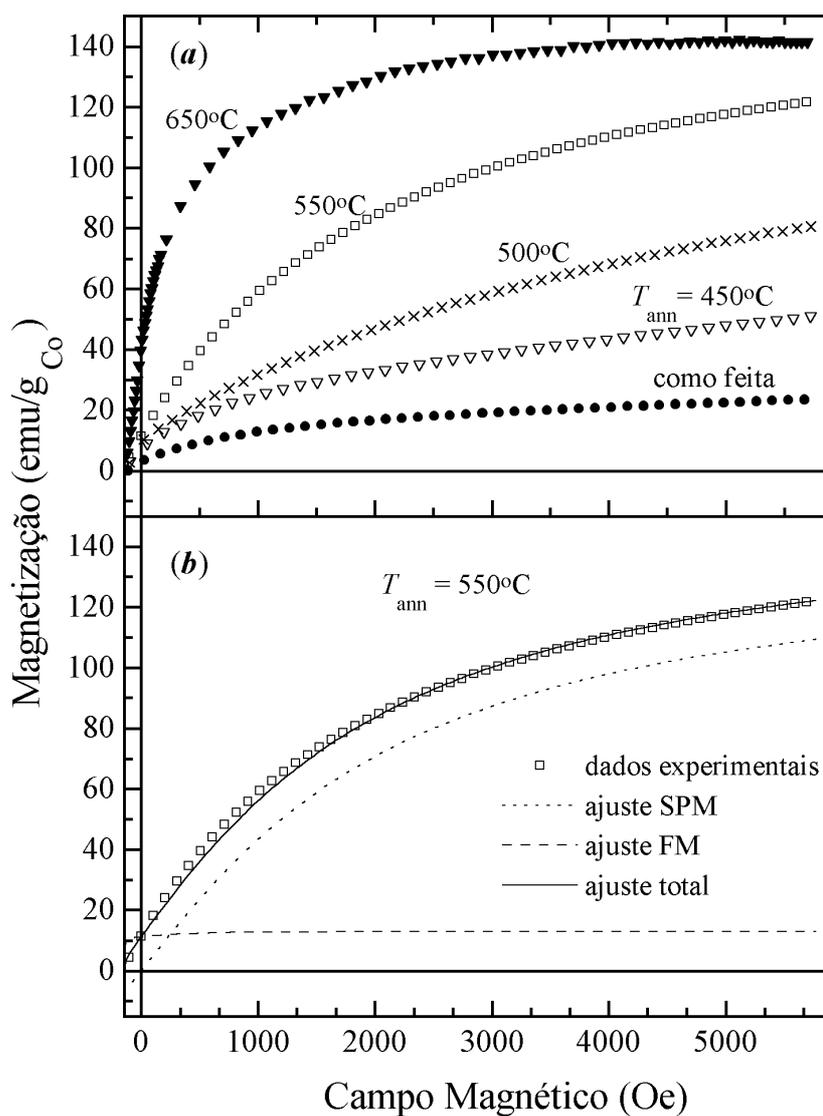
<sup>b</sup>As bobinas usadas estão dispostas na configuração de Mallinson. Têm diâmetro de 30 mm e  $4000 \pm 50$  espiras cada, feitas de fio número 39 AWG. Indutância 3 H e resistência de 1 k $\Omega$ .

<sup>c</sup>Campo interno gerado pelos pólos magnético induzidos na amostra.

As medidas de momento magnético como função de um campo magnético aplicado permitem determinar a magnetização de uma amostra magnética, e com a utilização de uma amostra padrão já calibrada, de determiná-la em unidades absolutas (por exemplo, emu/g).

## V Curvas de Magnetização

Além da caracterização microestrutural, o tamanho das partículas de Co pode ser estimado através da análise das curvas de magnetização.



**Figura V-A.** (a) Magnetização versus campo aplicado para amostras tratadas por 1 h a diferentes temperaturas  $T_{\text{ann}}$ , em unidades de emu por g de Co. (b) Dados experimentais e curvas de ajuste de

uma amostra representativa tratada a  $T_{\text{ann}} = 550^{\circ}\text{C}$ . Ajustes superparamagnético (SPM) e ferromagnético (FM).

Na Figura V-1(a) são mostradas as curvas de desmagnetização para várias amostras tratadas a diferentes  $T_{\text{ann}}$ , bem como para a amostra como feita. Pode ser notado que, especialmente para as  $T_{\text{ann}}$  mais baixas, as amostras não estão saturadas e a forma da curva é característica de um sistema de partículas muito pequenas que exibem superparamagnetismo (SPM): os vetores magnetização dessas partículas estão agitados termicamente com energia superior a de suas barreiras de potencial, o que permite que girem até sua direção de equilíbrio. Tais partículas são chamadas de “partículas desbloqueadas” ou partículas SPM.

Entretanto, todas as curvas mostram magnetização remanente ( $M_r$ ) e campo coercivo ( $H_c$ ) diferentes de zero. Em um sistema consistindo apenas de partículas SPM, o comportamento da curva de histerese poderia ser explicado pela presença de interação ferromagnética entre as partículas. Como a remanência atinge um valor relativamente alto (até  $0.25M_s$ ) para as amostras tratadas a temperaturas mais altas, considera-se as amostras como consistindo de duas fases magnéticas de Co embutidas na matriz de Cu: (i) partículas SPM não interagentes; (ii) “partículas bloqueadas” (partículas SPM interagentes e/ou partículas ferromagnéticas maiores), as quais chamaremos de partículas FM.

O tamanho médio  $D$  das partículas SPM e a magnetização de saturação podem ser obtidos através do ajuste das curvas de histerese experimentais levando em conta tanto a contribuição FM quanto a SPM<sup>91</sup>. Todos os ajustes foram feitos utilizando um programa de computador escrito em linguagem C desenvolvido pelo Dr. J. Geshev.

A magnetização pode então ser escrita como

$$M(H) = M^{\text{FM}}(H) + M^{\text{SPM}}(H).$$

Equação V-A

O termo  $M^{\text{FM}}(H)$  representa a contribuição ferromagnética das partículas de Co, que se assume tem anisotropia magnetocristalina cúbica com quatro eixos fáceis de magnetização (estrutura fcc). Para essas amostras, em campos magnéticos maiores do que 4 kOe, onde as partículas FM já estão saturadas, o primeiro termo da Equação V-1 pode ser escrito como o valor da magnetização de saturação  $M_s^{\text{FM}}$ , independente de  $H$ . Aqui é aceito  $M_s^{\text{FM}} = M_r / 0.866$ , o que é válido para um sistema desordenado de partículas monodomínios de anisotropia cúbica com quatro eixos fáceis de magnetização (constante de anisotropia de primeira ordem  $K_1$  negativa)<sup>92</sup>.

Portanto, para  $H > 4$  kOe,

$$M^{\text{SPM}}(H) = M(H) - M_s^{\text{FM}}.$$

Equação V-B

A magnetização de um sistema superparamagnético de partículas com tamanho uniforme, assumindo interações fracas entre as partículas, pode ser descrita pela função de Langevin  $L(\alpha) = \coth(\alpha) - 1/\alpha$ ,  $\alpha = N\mu_B H/(kT)^{-1}$  ( $N$  é o número de magnetons de Bohr do cluster). Em sistemas granulares reais, é necessário considerar a distribuição de tamanhos de partícula. Logo, o termo  $M^{\text{SPM}}(H)$  deve ser descrito como uma superposição ponderada de funções de Langevin

$$M^{\text{SPM}} = M_s^{\text{Co}} \int_0^\infty L\left(\frac{\mu H}{k_B T}\right) f(V) dV,$$

Equação V-C

onde  $\mu = M_s^{\text{Co}} V$  é o momento magnético de uma partícula monodomínio de Co com magnetização de saturação  $M_s^{\text{Co}}$  e volume  $V$ , e  $f(V)$  é a distribuição de tamanhos de partícula.

Assumindo partículas esféricas com diâmetro  $D$  por simplicidade, uma distribuição de tamanhos de partícula log-normal com largura  $\sigma$ .

$$f(D) = \frac{1}{\sqrt{2\pi \ln \sigma}} \exp\left(-\frac{(\ln D - \ln \bar{D})^2}{2(\ln \sigma)^2}\right)$$

Equação V-D

é normalmente usada<sup>93</sup>, onde  $V = \pi D^3/6$ . Assumindo  $M_s^{\text{Co}} = 164.8$  emu/g para o Co fcc puro<sup>94</sup>,  $f(D)$  e  $\sigma$  podem ser obtidos através do ajuste da  $M^{\text{SPM}}$  (Equação V-2) na Equação V-3.

Uma vez obtida  $M^{\text{SPM}}(H)$ , a parte ferromagnética da magnetização experimental pode ser ajustada usando a curva modelo para um sistema de partículas pequenas com quatro eixos fáceis de magnetização,  $M/M_s = f(H/(2M_s/K_1))$ ,<sup>95</sup>. Além de  $M_r$ , é suficiente conhecer apenas mais um parâmetro da curva, a coercividade  $H_c^{\text{FM}}$ , obtido da curva  $M(H) - M^{\text{SPM}}(H)$ .

Portanto, neste modelo propomos que a curva de ajuste total da desmagnetização é feita de uma superposição de ambas as curvas de ajuste, SPM e FM. Essas curvas junto com os dados experimentais, para uma amostra representativa ( $T_{\text{ann}} = 550^\circ\text{C}$ ), são mostrados na Figura V-1(b). A concordância entre teoria e experiência é evidente, mesmo na região de baixo campo. Devido aos valores pequenos da remanência para as amostras tratadas a temperaturas mais baixas, o tipo de funções de ajuste FM usadas não muda significativamente os valores de  $D$  e  $M_s$ , mas, como será demonstrado abaixo, o ajuste a campos baixos pode dar informações adicionais sobre a estrutura cristalográfica da fase magnética, a medida que a forma das funções de ajuste da magnetização para os casos de uma (Co hcp) ou quatro (Co fcc) direções fáceis de magnetização são muito diferentes.

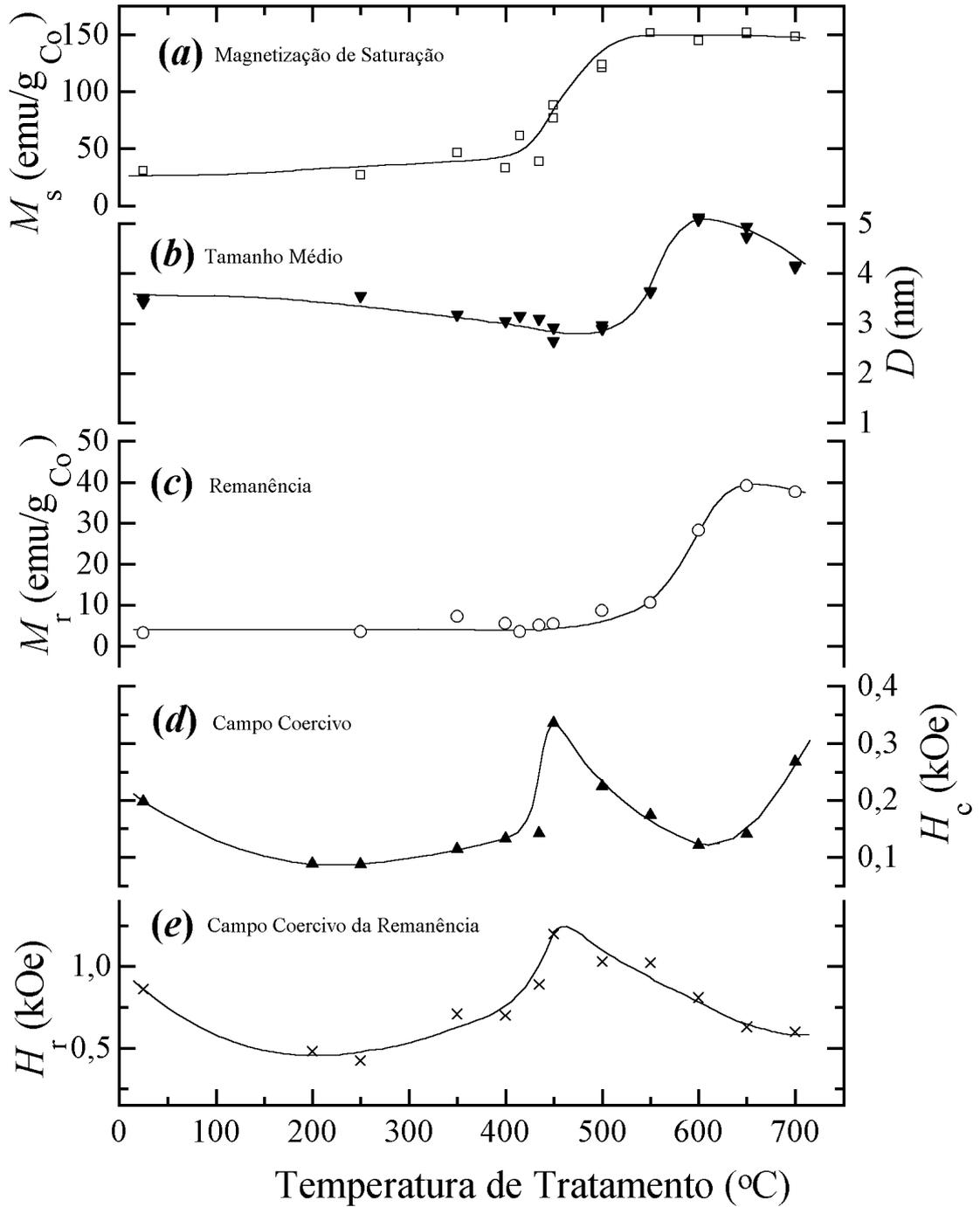
## VI Resultados e Discussões

Como resultado da investigação dos efeitos de tratamentos térmicos nas propriedades estruturais, magnéticas e de transporte das fitas de  $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$  “melt-spun”, e enfatizando o estudo de possíveis relações entre as interações magnéticas entre grãos e a magnetoresistência, é apresentado abaixo o comportamentos do sistema frente a duas abordagens:

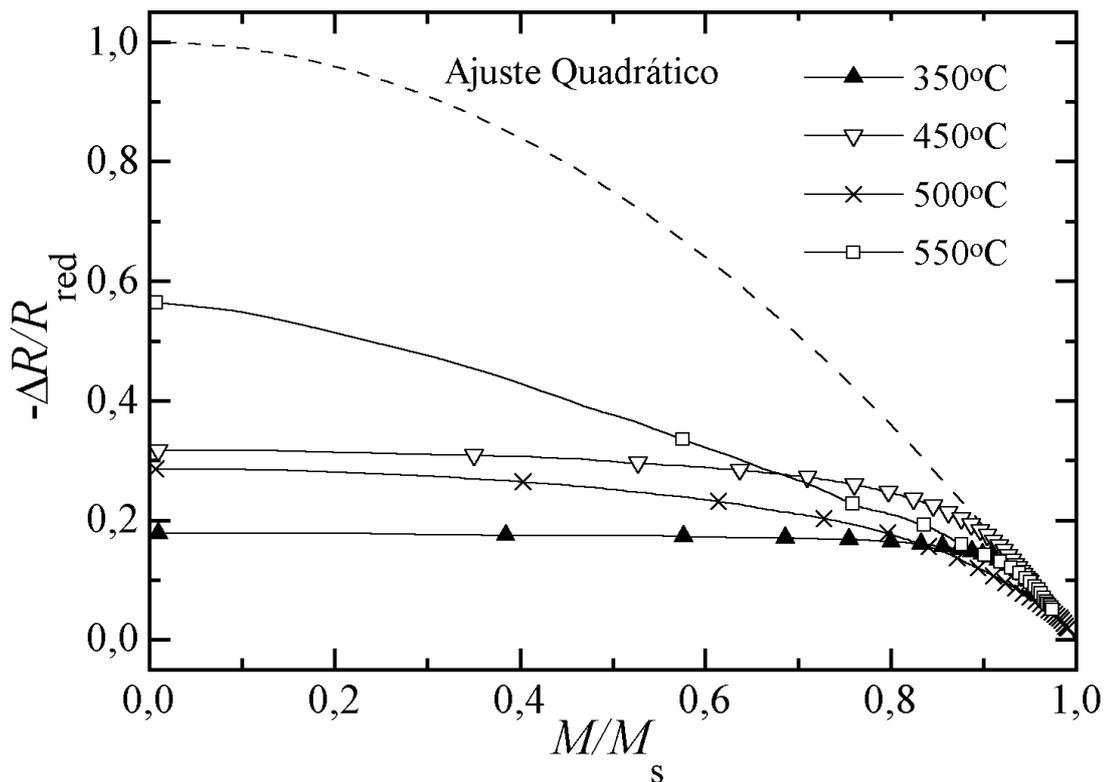
- (1) comportamento de amostras tratadas por uma hora a diferentes temperaturas ( $250^{\circ}\text{C}$  -  $700^{\circ}\text{C}$ );
- (1)comportamento de amostras tratadas a  $450^{\circ}\text{C}$  por diferentes intervalos de tempo (5 min - 200 min).

### **VI.1 Comportamento em função da temperatura de recozimento $T_{\text{ann}}$**

Na Figura VI-1 é apresentado um sumário do comportamento das propriedades magnéticas das amostras, fitas de  $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$  rapidamente resfriadas (“melt-spun”) submetidas a tratamentos térmicos a diferentes temperaturas  $T_{\text{ann}}$ . Nas Figura VI-1(a,b) são mostrados  $M_s$  e o tamanho de grão médio das partículas ( $D$ ), obtidos da forma descrita no Capítulo V (pág. 47), bem como os valores das medidas experimentais da magnetização remanente  $M_r$ , do campo coercivo  $H_c$  e da coercividade remanente  $H_r$  (Figura VI-1(c-e)).



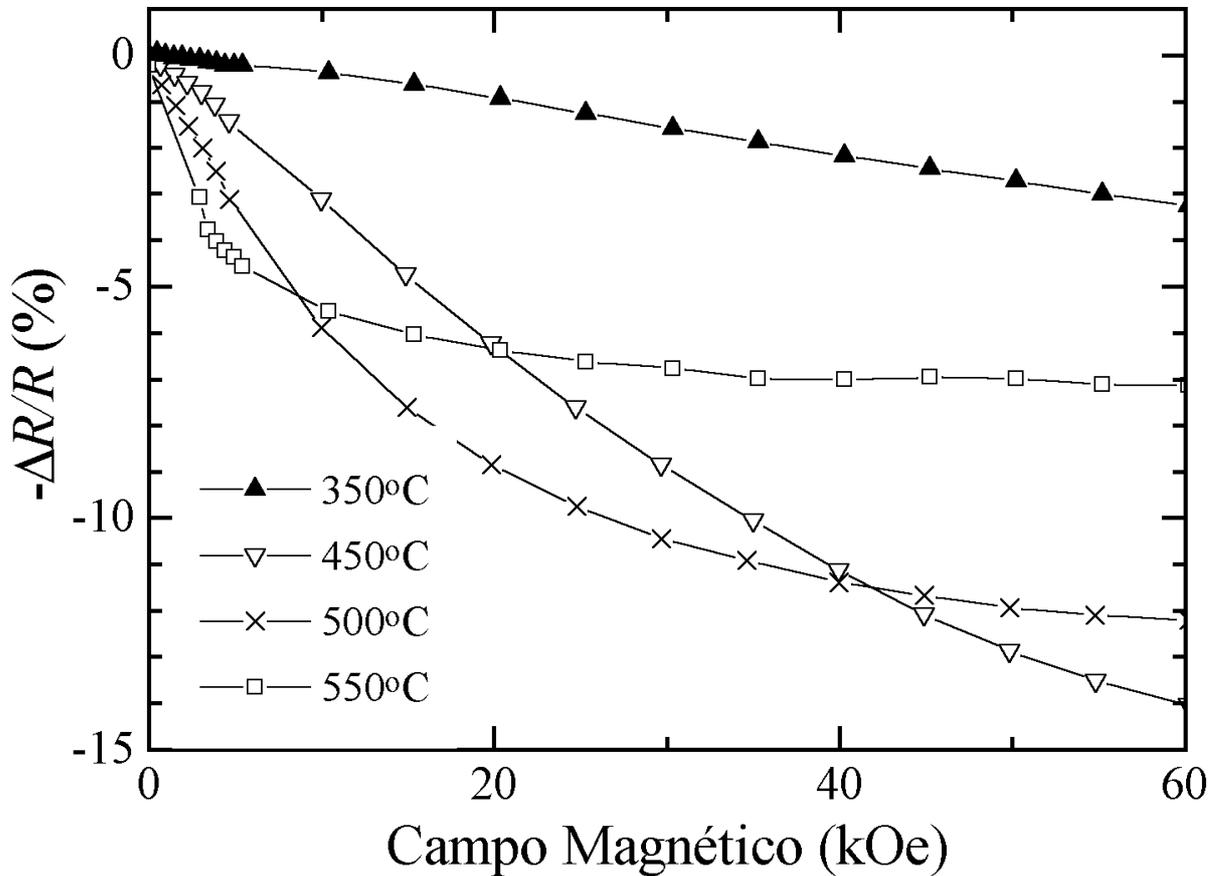
**Figura VI-A.** Propriedades magnéticas das amostras tratadas por 1h a diferentes  $T_{ann}$ . **(a)** Magnetização de saturação  $M_s$  e **(b)** tamanho médio das partículas SPM  $D$ , obtidos através dos procedimentos de ajuste descritos no Capítulo IV. **(c-e)** Medidas experimentais da remanência  $M_r$ , do campo coercivo  $H_c$  e do campo coercivo da remanência  $H_r$ . A linha contínua serve apenas como guia.



**Figura VI-B.** GMR reduzida como função de  $M_s$  para quatro amostras. A linha pontilhada é o comportamento parabólico previsto para o caso não-intergente.

Na Figura VI-2 são apresentadas a GMR reduzida ( $\Delta R/R(H=0)_{\text{red}}$ ) para quatro amostras como função da magnetização reduzida  $M/M_s$ , construída como indicado na Ref.[59]. A linha pontilhada é o comportamento parabólico esperado no sistema de momentos magnéticos aleatoriamente distribuídos<sup>2,32</sup>. Os desvios observados são maiores do que aqueles observados por Allia *et al.*<sup>59</sup> para amostras da mesma composição, o que pode ser atribuído ao campo máximo aplicado maior. Entretanto, como pode ser visto na Figura VI-3, a magnetoresistência continua a decrescer mesmo em campos acima do qual a fração FM está saturada, produzindo as caudas longas nas curvas de magnetoresistência. Concluímos que devido à falta de saturação

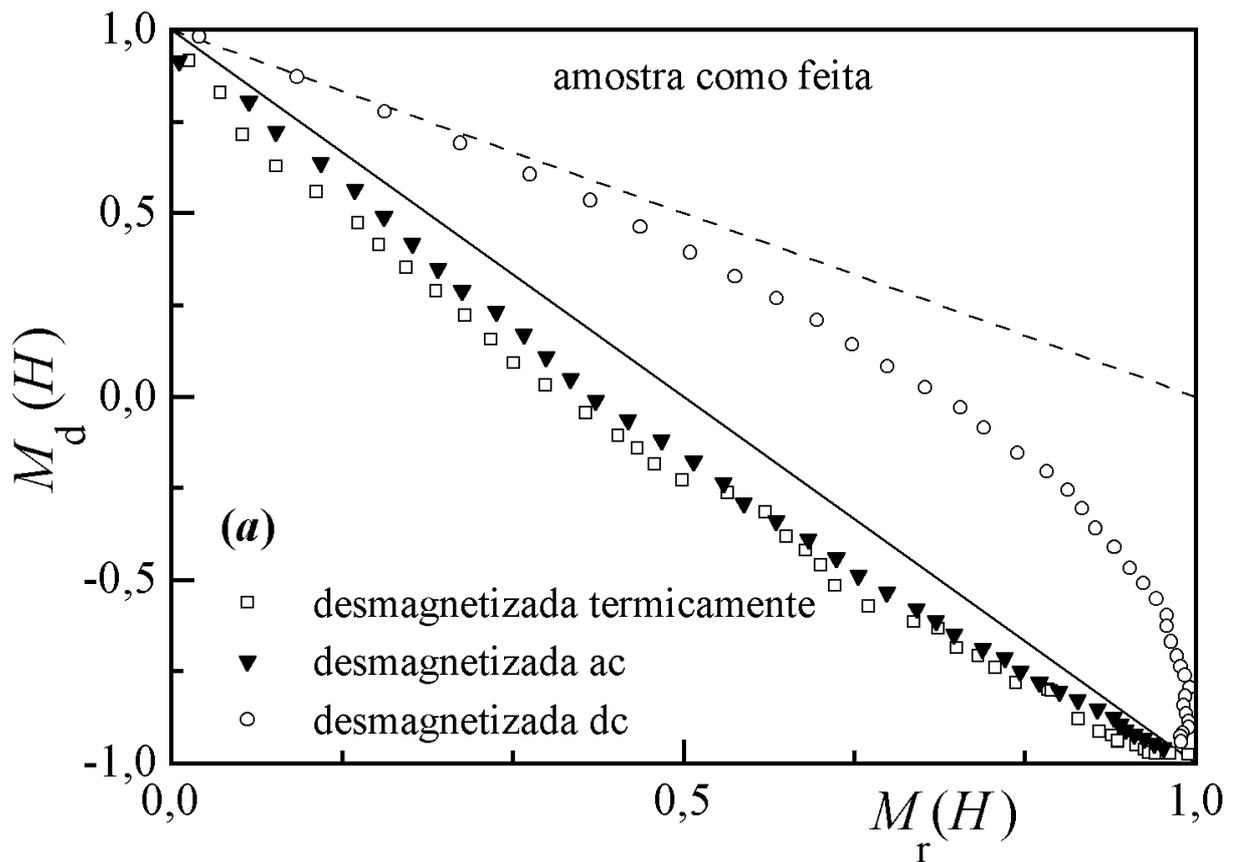
nessas curvas de magnetoresistência, é difícil usar as curvas na Figura VI-2 para estimar a intensidade das interações nas ligas granulares de  $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$  “melt-spun” como feito na Ref. [59].



**Figura VI-C.** GMR como função do campo magnético  $H$  para amostras tratadas por 1h a diferentes temperaturas  $T_{\text{ann}}$ .

Os efeitos das interações magnéticas são estudados então através dos gráficos de  $\delta M$  e  $\delta M^{\text{dc}}$ , construídos a partir das curvas de magnetização remanente. Os gráficos de Henkel ( $M_d(H)$  versus  $M_r(H)$ ) obtidos das curvas de remanência, partindo dos estados desmagnetizados ac, dc e termicamente, juntamente com os gráficos correspondentes de  $\delta M$  são apresentados nas Figura VI-4 e Figura VI-5. Na Figura VI-4 vemos que todos os gráficos de Henkel mostram desvios

negativos das linhas retas dos casos sem interação (anisotropia uniaxial), tracejada para a amostra desmagnetizada dc e sólida para as outras. Para cada gráfico de  $\delta M$  (mostrados na Figura VI-5) existe apenas um mínimo, e este comportamento é o mesmo para todas as amostras estudadas.



**Figura VI-D.** Gráficos de Henkel representativos obtidos dos estados desmagnetizados ac, dc e termicamente, para a amostra de  $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$  “melt-spun” como feita.

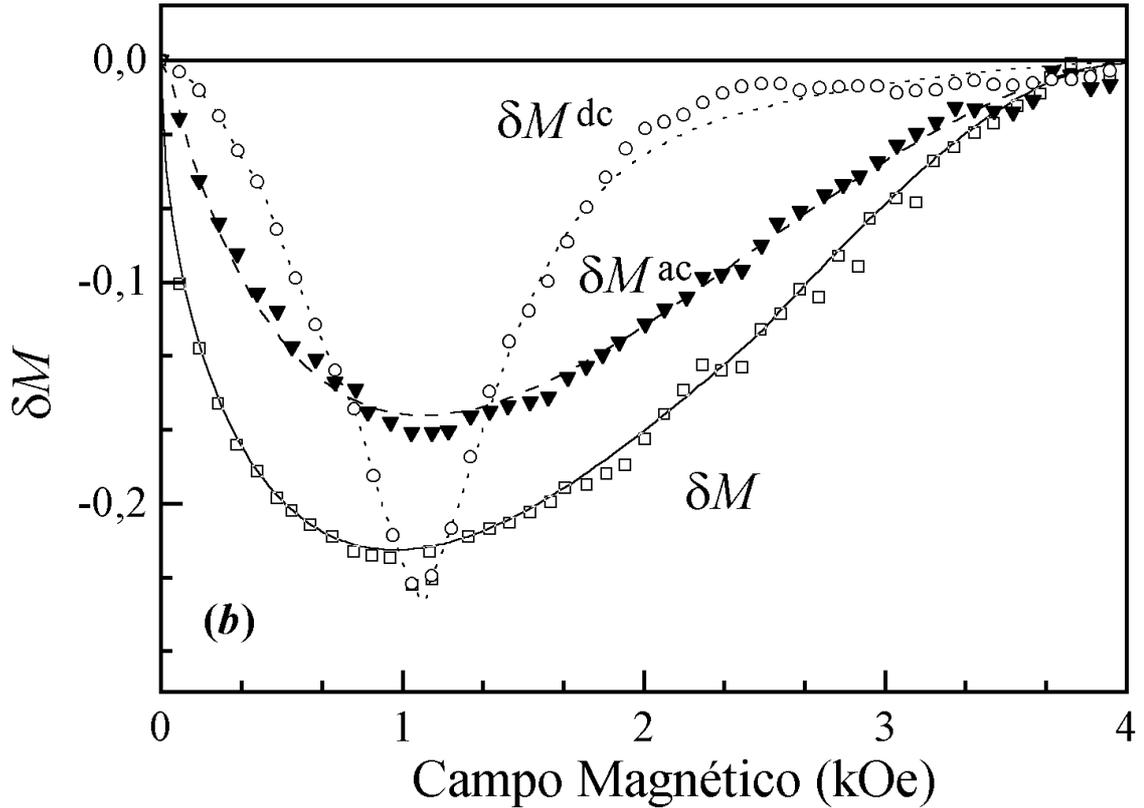


Figura VI-E. Os gráficos de  $\delta M^{ac}$ ,  $\delta M^{dc}$  e  $\delta M$  correspondentes à Figura VI-4.

Devemos lembrar que gráficos do tipo Henkel, calculados para o caso de partículas não-interagentes com quatro eixos fáceis de magnetização<sup>96</sup> é não-linear “positivo” quando a concavidade é para baixo, correspondendo a um gráfico de  $\delta M$  com pico positivo. Logo, no caso de anisotropia cúbica, valores negativos de  $\delta M$  indicam, da mesma forma, interações negativas. Entretanto, como as contribuições das fases fcc e hcp do Co (se coexistem, o que provavelmente é o caso nas amostras tratadas a temperaturas mais altas) não podem ser separadas, para estimar a mudança na intensidade das interações como função de  $T_{ann}$  e  $t_{ann}$  usamos a amplitude do mínimo dos gráficos de  $\delta M$  e  $\delta M^{dc}$ . Qualquer mudança nestes valores é atribuída a mudança da

intensidade relativa das interações, que podem ser tanto de natureza dipolar como de troca, levando a um comportamento magnético complexo.

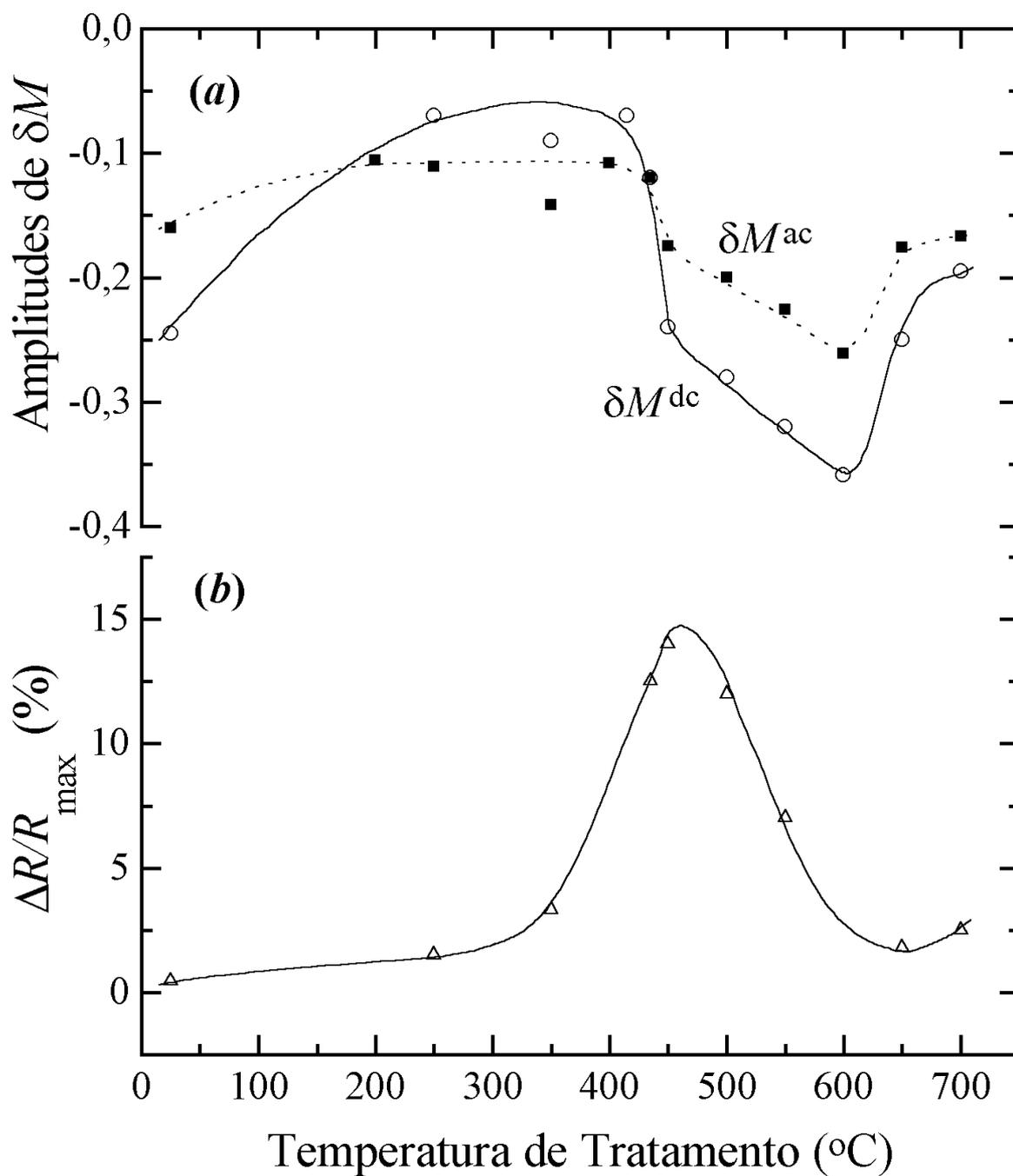
As amplitudes dos gráficos de  $\delta M^{dc}$  e  $\delta M^{ac}$  versus  $T_{ann}$  são mostradas na Figura VI-6(a). De maneira a comparar as variações nas interações magnéticas com as mudanças nas propriedades de magnetotransporte, na Figura VI-6(b) está mostrada a dependência de GMR com  $T_{ann}$ .

### VI.1.1 Discussão

Baseado nestas novas informações há possibilidade de detalhar os diferentes processos que ocorrem dentro do material a medida que o mesmo é tratado, em complementação a outros trabalhos<sup>46,47,93,97</sup>.

Das Figura VI-1 e Figura VI-6 podemos identificar pelo menos quatro intervalos de  $T_{ann}$  nos quais se situam transformações físicas distintas.

i)  $T_{ann} < 420^{\circ}\text{C}$ : neste intervalo de temperatura, a maioria dos parâmetros muda apenas lentamente com  $T_{ann}$ , sendo uma exceção feita para GMR, que rapidamente atinge um máximo por volta de  $420^{\circ}\text{C}$ . Desde que a GMR depende do tamanho médio ( $D$ ) e da distância entre as partículas SPM, podemos dizer que o sistema evolui no sentido de produzir novas destas partículas (inicialmente de tamanho menor do que as já existentes nas amostras como feitas) as custas do Co diluído atômicamente. Desta maneira teríamos então um pequeno aumento de  $M_s$  e uma redução de  $D$ , como visto na Figura VI-1(a,b). O aumento da GMR é baseado no fato de que  $D$  e/ou a distância média entre as partículas SPM se aproxima de seus valores ótimos (para a



**Figura VI-F.** (a) Amplitudes dos gráficos de  $\delta M^{dc}$  e  $\delta M^{ac}$  e (b)  $\Delta R/R_{max}$ , ambos para amostras tratadas por 1h a diferentes  $T_{ann}$ . A linha contínua serve apenas como guia.

magneto-resistência). A distância média, que poderia ser reduzida devido a existência de um número maior de partículas presentes, teria valor comparável ao do livre caminho médio e um espalhamento mais seletivo ocorreria.

A sugestão de que apenas partículas SPM são formadas é também suportada pela ausência de aumento no valor de  $M_r$ , embora haja aumento no valor de  $M_s$ . Os valores de  $H_c$  e  $H_r$  também aumentam, mostrando que as rotações das magnetizações das partículas se tornam mais coletivas. Entretanto, esta mudança do comportamento das interações não altera a amplitude dos gráficos de  $\delta M$ , a medida que as interações são aproximadamente as mesmas durante os processos de magnetização inicial e desmagnetização.

Os valores de  $H_c$ ,  $H_r$  e amplitudes dos gráficos de  $\delta M$  para as amostras tratadas neste intervalo de temperatura são menores do que aqueles para a amostra como feita. Uma explicação simples para este fato pode ser a remoção de tensões (introduzidas pelo “melt-spinning”) durante o tratamento.

ii)  $420^\circ\text{C} < T_{\text{ann}} < 520^\circ\text{C}$ : após o sistema atingir as condições ótimas para GMR, notamos que com o aumento de  $T_{\text{ann}}$ , se estabelece uma configuração de fortes interações ferromagnéticas (um crescimento rápido de  $H_r$  e  $H_c$ , e maiores amplitudes negativas dos gráficos de  $\delta M$ ), causando uma redução significativa da GMR. Observa-se também um consumo ainda maior de Co atômicamente diluído (representado pelo aumento de  $M_s$ ), criando um número ainda maior de pequenas partículas SPM ( $M_r$  quase constante e decréscimo lento de  $D$ ), interagindo entre si devido às pequenas distâncias.

O tratamento a temperaturas no intervalo  $450^\circ\text{C} < T_{\text{ann}} < 520^\circ\text{C}$  causa um decréscimo na GMR por duas razões: (1) a diminuição da distância entre as partículas (que fica da ordem do livre caminho médio); (2) o aparecimento de acoplamento ferromagnético entre as partículas de

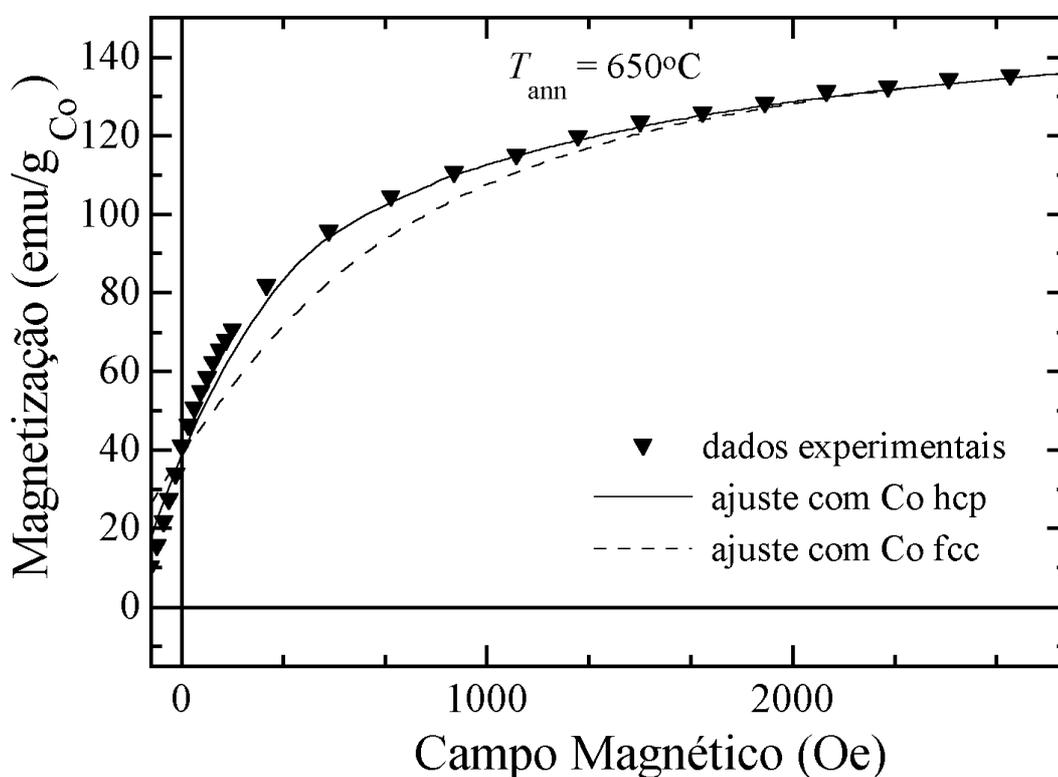
Co vizinhas. Devido a esses acoplamentos, o comportamento aleatório das direções das magnetizações dos precipitados magnéticos é perdido em uma escala de comprimento maior do que o livre caminho médio.

A fração das partículas FM no material (representada por  $M_r$ ) não é alterada significativamente.

iii)  $520^\circ\text{C} < T_{\text{ann}} < 600^\circ\text{C}$ : para as amostras tratadas a temperaturas maiores que  $520^\circ\text{C}$  os processos de formação de novos grãos a partir dos átomos de Co da matriz de Cu estão terminados, indicado pelo fato de  $M_s$  ter atingido seu valor final. Como pode ser visto pelo formato das curvas de magnetização na Figura VI-1(a), o tamanho médio das partículas SPM aumenta devido a coalescência entre eles, tornando alguns grandes o suficiente para se tornarem ferromagnéticos, resultando num aumento de  $M_r$ . Provavelmente, as partículas FM já existentes se tornam muito grandes comparadas com o livre caminho médio dos elétrons de condução e/ou as interações entre as partículas SPM se tornam mais fortes. Para essas partículas FM, o tamanho ótimo dos monodomínios foi superado, e as coercividades  $H_c$  e  $H_i$  são diminuídas. Um aumento da intensidade das interações magnéticas é observado através do aumento (negativo) das amplitudes dos gráficos de  $\delta M$ ; conseqüentemente a GMR é reduzida ainda mais.

iv)  $600^\circ\text{C} < T_{\text{ann}} < 700^\circ\text{C}$ : as amostras tratadas a essas temperaturas tendem muito mais a ferromagnéticas, como pode ser visto do aumento adicional de  $M_r$  (aumento da fração de material capaz de reter sua magnetização). Do decréscimo de  $D$  pode-se concluir que (até  $T_{\text{ann}} = 650^\circ\text{C}$ , onde  $M_r$  alcança um máximo) a maioria das partículas SPM maiores coalescem. O decréscimo subsequente de  $D$  não afeta significativamente  $M_r$  a medida que o número de partículas SPM remanescentes é muito pequeno: essas partículas, que se tornam FM, são pequenas em número e não aumentam a remanência o suficiente para ser observado. A redução

de  $M_r$  e  $M_s$  (Figura VI-1), também observada por outros autores<sup>43,46,59,98</sup>, deve indicar que uma parte do cobalto está novamente dissolvida na matriz do cobre, de acordo com um mecanismo proposto por Wecker *et al.*<sup>97</sup> esperado para estar presente em tratamentos a altas temperaturas. Outra contribuição para a diminuição de  $M_r$  pode ser a transição do cobalto de anisotropia fcc para hcp, observada por van Alphen e de Jongue<sup>99</sup>. A existência da transição fcc-hcp nas amostras tratadas a 650°C e 700°C é suportada pelo melhor ajuste de suas curvas de magnetização, na região de baixo campo, usando uma anisotropia uniaxial ao invés de cúbica na contribuição FM (Figura VI-7).

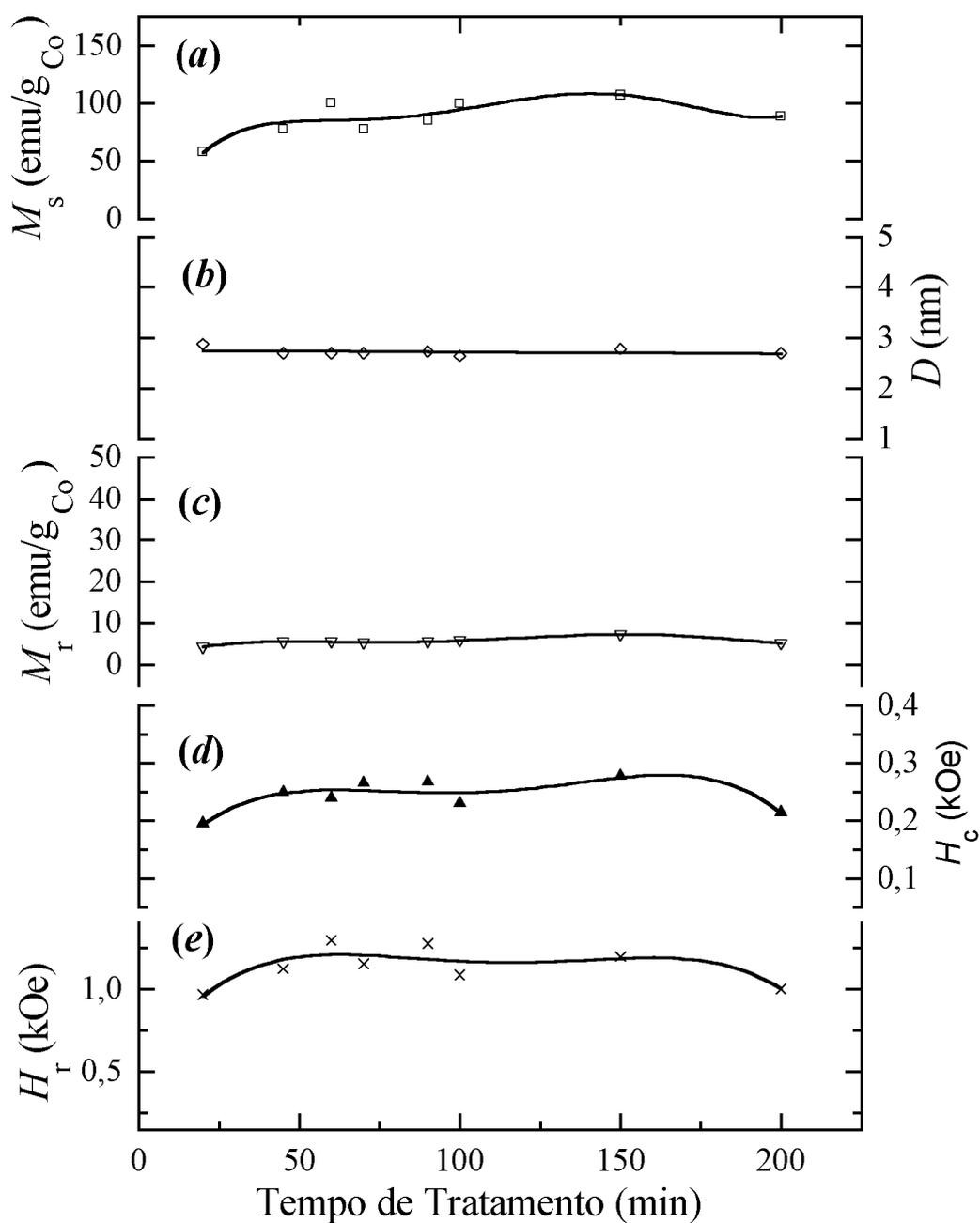


**Figura VI-G.** Magnetização versus campo aplicado para uma fita de  $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$  tratada a 650°C, em unidades de emu/g de Co. Linhas sólida e pontilhada são as funções de ajuste para os casos de anisotropia uniaxial (hcp) e cúbica (fcc) das partículas de Co, respectivamente.

Como pode ser visto na Figura VI-6(a) (gráficos de  $\delta M$ ), a intensidade das interações nesta faixa de  $T_{\text{ann}}$  diminui. Isto leva a conclusão que, diferente do que acontecia para a faixa de  $T_{\text{ann}} < 420^\circ\text{C}$  (veja página 59), o aumento de  $H_c$  é associado a uma transformação final de partículas SPM em partículas ferromagnéticas maiores, indicada pelo aumento de  $M_r$ . Esta transformação de fase não leva a um aumento de  $H_r$ , que não depende da fração de material FM, mas apenas das suas propriedades intrínsecas ( $M_s$ , constantes de anisotropia etc.).

## **VI.2 Comportamento em função do tempo de recozimento $t_{\text{ann}}$**

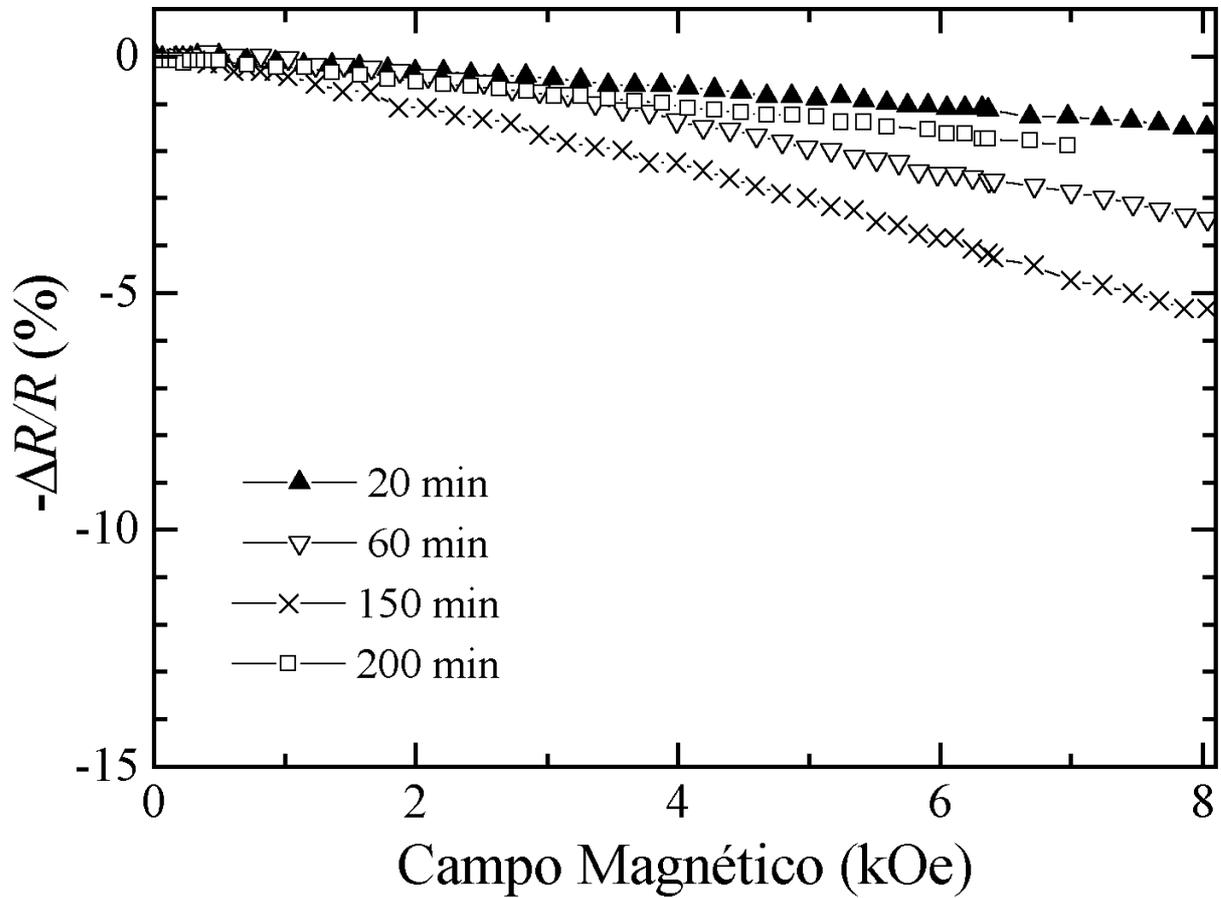
Na Figura VI-8 é apresentado sumário do comportamento das propriedades magnéticas das amostras, fitas de  $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$  rapidamente resfriadas (“melt-spun”) submetidas a tratamentos térmicos a  $450^\circ\text{C}$  por diferentes tempos  $t_{\text{ann}}$ . Na Figura VI-8(a,b) são mostrados  $M_s$  e o tamanho de grão médio das partículas ( $D$ ), obtidos da forma descrita no Capítulo V (pág. 47), bem como os valores das medidas experimentais da magnetização remanente  $M_r$ , do campo coercivo  $H_c$  e da coercividade remanente  $H_r$  (Figura VI-8(c-e)).



**Figura VI-H.** Propriedades magnéticas das amostras tratadas a 450°C por diferentes intervalos de tempo  $t_{ann}$ . (a) Magnetização de saturação  $M_s$  e (b) tamanho médio das partículas SPM  $D$ , obtidos através dos procedimentos de ajuste descritos na seção 0. (c-e) Medidas experimentais da remanência  $M_r$ , do campo coercivo  $H_c$  e do campo coercivo da remanência  $H_r$ . A linha contínua serve apenas como guia.

As dependências com o campo magnético da GMR para diferentes  $t_{\text{ann}}$  são mostradas na

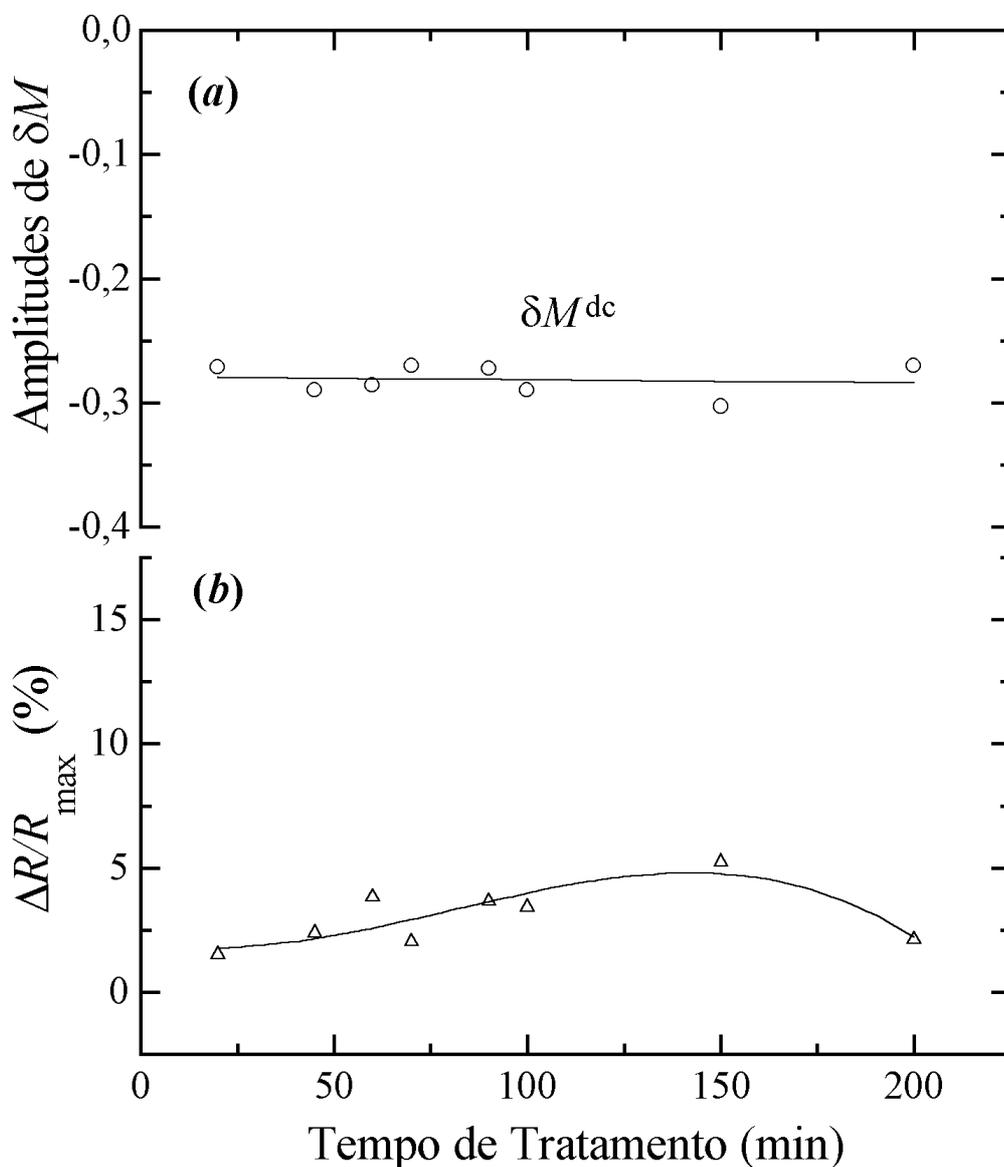
Figura VI-9.



**Figura VI-I.** GMR como função do campo magnético  $H$  para amostras tratadas a 450°C por diferentes intervalos de tempo  $t_{\text{ann}}$ .

Da mesma forma como na seção anterior, os efeitos das interações magnéticas são estudados através dos gráficos de  $\delta M$  e  $\delta M^{\text{dc}}$ , construídos a partir das curvas de magnetização remanente.

As amplitudes dos gráficos de  $\delta M^{dc}$  e  $\delta M^{ac}$  versus  $t_{ann}$  são mostradas na Figura VI-10. De maneira a comparar as variações nas interações magnéticas com as mudanças nas propriedades de magnetotransporte, na Figura VI-10(b) está mostrada a dependência de GMR com  $t_{ann}$ .



**Figura VI-J.** (a) Amplitudes dos gráficos de  $\delta M^{dc}$  e  $\delta M^{ac}$  e (b)  $\Delta R/R_{max}$ , ambos para amostras tratadas a 450°C por diferentes  $t_{ann}$ . A linha contínua serve apenas como guia.

As propriedades magnéticas não apresentaram uma mudança significativa (a menos dos extremos de tempo, 5 min e 150 min) com o aumento do tempo de tratamento, como pode ser visto pela Figura VI-8 (página 63). Isto pode ser explicado pela evolução (relaxação) da amostra durante o processo de recozimento: a medida que  $t_{\text{ann}}$  é aumentado o número de partículas ferromagnéticas e superparamagnéticas cresce.

Os valores provenientes das medidas magnéticas e de GMR estão em concordância com os valores obtidos para a amostra tratada a 450°C por 1h, como pode ser constatado ao compararmos as Figura VI-1 (propriedades magnéticas versus  $T_{\text{ann}}$ ) e Figura VI-8 (propriedades magnéticas versus  $t_{\text{ann}}$ ); Figura VI-6 (GMR e  $\delta M$  versus  $T_{\text{ann}}$ ) e Figura VI-10 (GMR e  $\delta M$  versus  $t_{\text{ann}}$ ).

## VII Conclusões

Foram feitas medidas em detalhe de curvas de histerese e de remanência das fitas de  $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$  “melt-spun” desmagnetizadas por dois métodos diferentes (desmagnetização ac e desmagnetização dc), tratadas a diferentes temperaturas desde 250°C até 700°C e por diferentes intervalos de tempo entre 5 min e 200 min.

Estas medidas permitiram descrever a evolução da estrutura morfológica e magnética do material e relacionar esta evolução ao comportamento da GMR. Foi demonstrado que além de permitir a obtenção do tamanho médio das partículas SPM e a magnetização de saturação, o ajuste das curvas de histerese levando em conta as contribuições FM e SPM (especialmente na região de baixo campo) pode contribuir com informações adicionais sobre a estrutura cristalográfica da fase magnética.

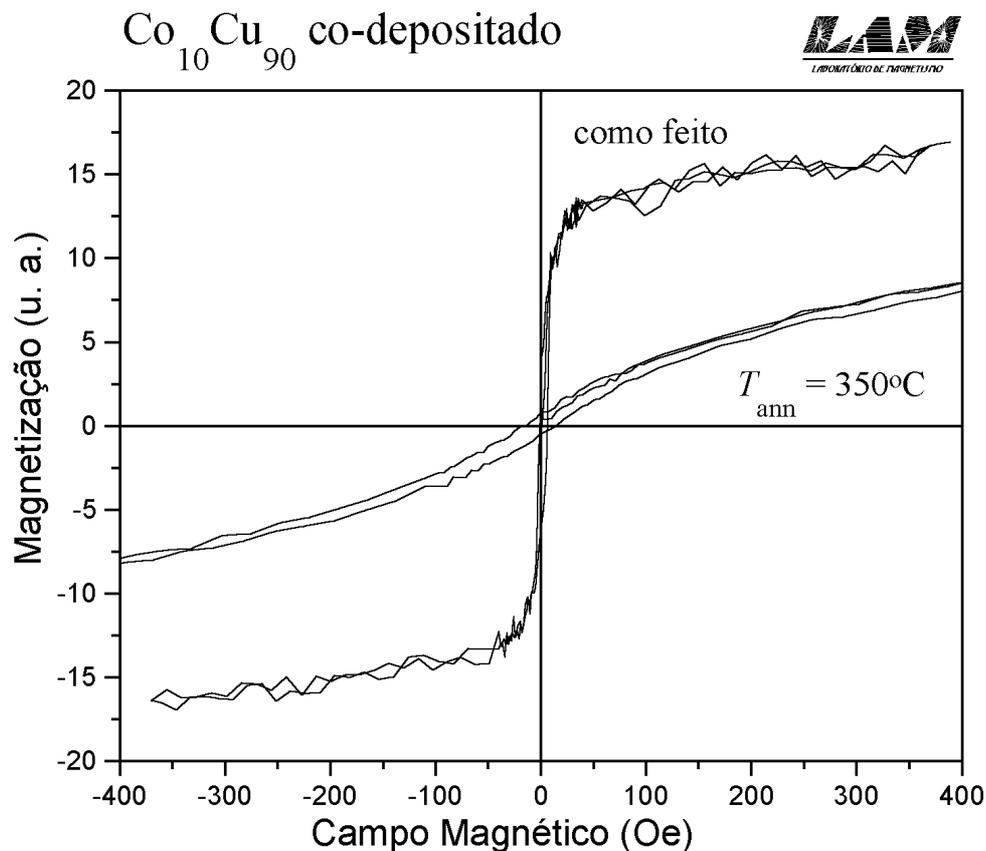
Foram medidas curvas de magnetoresistência para altos campos (até 6 T) dessas mesmas fitas e tal medida possibilitou a constatação de ausência de saturação mesmo para campos tão altos. Esta ausência de saturação nas curvas de magnetoresistência não permite o uso do desvio do comportamento quadrático (em relação à magnetização reduzida) previsto na teoria<sup>100</sup> para estimar a intensidade das interações entre as partículas.

Como meio de estimar a interação entre as partículas foi usada a técnica dos gráficos de  $\delta M$ , a partir das medidas de remanência com amostras desmagnetizadas por dois métodos diferentes. A partir deste estudo, foi possível verificar a estreita e inversamente proporcional relação entre a GMR e as interações magnéticas entre os grãos de Co.

A análise da evolução estrutural das amostras e da intensidade da interação entre as partículas mostra claramente a influência de alguns parâmetros estruturais (tamanho e densidade

de partículas, distância entre partículas) e da própria intensidade das interações magnéticas entre as partículas nas propriedades de transporte eletrônico em presença de um campo magnético.

A partir destes resultados foi iniciado recentemente um trabalho de continuidade também baseado na extração das interações magnéticas através dos gráficos de  $\delta M$ , para o sistema de CoCu codepositado por evaporação ( $\text{Co}_x\text{Cu}_{100-x}$ ,  $x = 10, 20, 30$ ), objetivando principalmente separar melhor os efeitos das duas fases magnéticas presentes no sistema “melt-spun”: partículas SPM e partículas FM. As medidas de magnetização nas amostras de  $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$  codepositados mostram uma transição do sistema de uma fase claramente ferromagnética para outra totalmente superparamagnética, induzida por tratamentos térmicos a diferentes temperaturas. Medidas de magnetização preliminares já mostram esta separação. Este trabalho está em andamento.



## VIII Lista de Figuras

<b>Figura II-1.</b> (a) Magneto-resistividade longitudinal ( $\rho_{\parallel}$ ). (b) Magneto-resistividade transversal ( $\rho_T$ ). (c) Magneto-resistividade perpendicular ( $\rho_{\perp}$ ). Extraída de C.L. Chien .....	9
<b>Figura II-2.</b> Representação de vários tipos de comportamento da MR. (a) Ausência de MR em um metal de Drude. (b) MR comum em um metal não-magnético. (c) MR anisotrópica em um metal .....	9
<b>Figura II-3.</b> Representação esquemática da difusão do spin numa multicamada. (a) Alinhamento paralelo. (b) Alinhamento antiparalelo. ....	12
<b>Figura II-4.</b> Magnetoresistência (a) e curvas de histerese (b) de $\text{Co}_{16}\text{Cu}_{84}$ ( $T_s = 350^\circ\text{C}$ ) a 5 K. As cruces e os círculos sólidos e os círculos vazados denotam a curva inicial ( $a \rightarrow b$ ), o braço com campo decrescente ( $b \rightarrow c \rightarrow d$ ) e o braço com campo crescente ( $d \rightarrow e \rightarrow b$ ), respectivamente. Estas duas.....	15
<b>Figura III-1.</b> Esquema de medida das curvas de remanência $M_r(H)$ e $M_d(H)$ . ....	20
<b>Figura III-2.</b> Curvas de remanência para sistema idealizado de partículas monodomínio sem interação e com anisotropia uniaxial.....	23
<b>Figura III-3.</b> Gráfico de Henkel para amostra de $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$ “melt-spun”, como feita, desmagnetizada termicamente (virgem). ....	24
<b>Figura III-4.</b> Figura representando a variação da distribuição angular de domínios durante um processo de desmagnetização ac. Figura retirada de S. Chikazumi.....	26
<b>Figura III-5.</b> Variação da distribuição angular de domínios numa curva de magnetização. Figura retirada de S. Chikazumi <sup>70</sup> .....	26

<b>Figura III-6.</b> Gráfico de Henkel para amostra de $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$ “melt-spun”, como feita, desmagnetizada dc. ....	28
<b>Figura IV-1.</b> Diagrama esquemático da “gota” (puddle) de metal derretido sobre o substrato em alta velocidade. Abaixo são apresentados os perfis de temperatura e velocidade através da seção reta $A-A'$ , segundo o modelo de Kavesh <sup>78</sup> . Figura retirada de H.H. Liebermann <sup>75</sup> . ...	30
<b>Figura IV-2.</b> Diagrama de blocos representando o forno a lâmpada .....	32
<b>Figura IV-3.</b> Espectro de raios-x para amostras de Cu puro e $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$ , ambas como feitas. Retirada de Yu <i>et al.</i> <sup>47</sup> .....	33
<b>Figura IV-4.</b> Espectro de raios-x para amostras de $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$ tratadas a diferentes temperaturas. O asterisco (*) representa a linha de difração dos aglomerados de Co. Retirada de Yu <i>et al.</i> <sup>47</sup> .....	34
<b>Figura IV-5.</b> Diagrama de blocos com o esquema básico do sistema de medida de resistência. ....	35
<b>Figura IV-6.</b> Curvas representativas de $M_r(H)$ e $M_d(H)$ de $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$ .....	39
<b>Figura IV-7.</b> (a) e (b) configurações do campo magnetizante e de gradiente; (c) piezelétrico, haste e amostra; (d) visão geral do sistema. Retirada de P.J. Flanders <sup>84</sup> .....	40
<b>Figura IV-8.</b> Vários arranjos das bobinas geradoras do gradiente. Retirada de P.J. Flanders <sup>84</sup> ..	41
<b>Figura IV-9.</b> A curva para $f_0'/f_0$ versus $W'/W_B$ , da Equação IV-6, e valores experimentais para $f_0'$ versus $W_S$ para dez amostras diferentes ( $W_S = 2.2$ até 86 mg), presas a uma haste de 24 mg e um piezelétrico de 70 mg com $f_0 = 827$ Hz. Retirada de P.J. Flanders.....	43
<b>Figura IV-10.</b> Figura esquemática de um magnetômetro de amostra vibrante (VSM - Vibrating Sample Magnetometer). Retirada de R.L. Sommer .....	44
<b>Figura V-1.</b> (a) Magnetização versus campo aplicado para amostras tratadas por 1 h a diferentes temperaturas $T_{\text{ann}}$ , em unidades de emu por g de Co. (b) Dados experimentais e curvas de	

ajuste de uma amostra representativa tratada a $T_{\text{ann}} = 550^{\circ}\text{C}$ . Ajustes superparamagnético (SPM) e ferromagnético (FM).....	47
<b>Figura VI-1.</b> Propriedades magnéticas das amostras tratadas por 1h a diferentes $T_{\text{ann}}$ . <b>(a)</b> Magnetização de saturação $M_s$ e <b>(b)</b> tamanho médio das partículas SPM $D$ , obtidos através dos procedimentos de ajuste descritos no Capítulo IV. <b>(c-e)</b> Medidas experimentais da remanência $M_r$ , do campo coercivo $H_c$ e do campo coercivo da remanência $H_r$ . A linha contínua serve apenas como guia.....	52
<b>Figura VI-2.</b> GMR reduzida como função de $M_s$ para quatro amostras. A linha pontilhada é o comportamento parabólico previsto para o caso não-interagente.....	53
<b>Figura VI-3.</b> GMR como função do campo magnético $H$ para amostras tratadas por 1h a diferentes temperaturas $T_{\text{ann}}$ .....	54
<b>Figura VI-4.</b> Gráficos de Henkel representativos obtidos dos estados desmagnetizados ac, dc e termicamente, para a amostra de $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$ “melt-spun” como feita.....	55
<b>Figura VI-5.</b> Os gráficos de $\delta M^{\text{ac}}$ , $\delta M^{\text{dc}}$ e $\delta M$ correspondentes à Figura VI-4.....	56
<b>Figura VI-6.</b> <b>(a)</b> Amplitudes dos gráficos de $\delta M^{\text{dc}}$ e $\delta M^{\text{ac}}$ e <b>(b)</b> $\Delta R/R_{\text{max}}$ , ambos para amostras tratadas por 1h a diferentes $T_{\text{ann}}$ . A linha contínua serve apenas como guia.....	58
<b>Figura VI-7.</b> Magnetização versus campo aplicado para uma fita de $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$ tratada a $650^{\circ}\text{C}$ , em unidades de emu/g de Co. Linhas sólida e pontilhada são as funções de ajuste para os casos de anisotropia uniaxial (hcp) e cúbica (fcc) das partículas de Co, respectivamente. ...	61
<b>Figura VI-8.</b> Propriedades magnéticas das amostras tratadas a $450^{\circ}\text{C}$ por diferentes intervalos de tempo $t_{\text{ann}}$ . <b>(a)</b> Magnetização de saturação $M_s$ e <b>(b)</b> tamanho médio das partículas SPM $D$ , obtidos através dos procedimentos de ajuste descritos na seção 0. <b>(c-e)</b> Medidas	

experimentais da remanência $M_r$ , do campo coercivo $H_c$ e do campo coercivo da remanência $H_r$ . A linha contínua serve apenas como guia.....	63
<b>Figura VI-9.</b> GMR como função do campo magnético $H$ para amostras tratadas a $450^\circ\text{C}$ por diferentes intervalos de tempo $t_{\text{ann}}$ .....	64
<b>Figura VI-10. (a)</b> Amplitudes dos gráficos de $\delta M^{\text{dc}}$ e $\delta M^{\text{ac}}$ e <b>(b)</b> $\Delta R/R_{\text{max}}$ , ambos para amostras tratadas a $450^\circ\text{C}$ por diferentes $t_{\text{ann}}$ . A linha contínua serve apenas como guia.....	65
<b>Figura VIII-1.</b> Ilustração das propriedades supercondutoras do NbTi. A superfície delimita a região onde o estado supercondutor é mantido.....	74
<b>Figura VIII-2.</b> Curva de curto de corrente versus campo magnético.....	75

## Apêndice I - Operação via computador

Este apêndice tem por objetivo esclarecer detalhes sobre o funcionamento da bobina supercondutora, bem como sobre a ligação do sistema supercondutor a um computador tipo IBM-PC compatível.

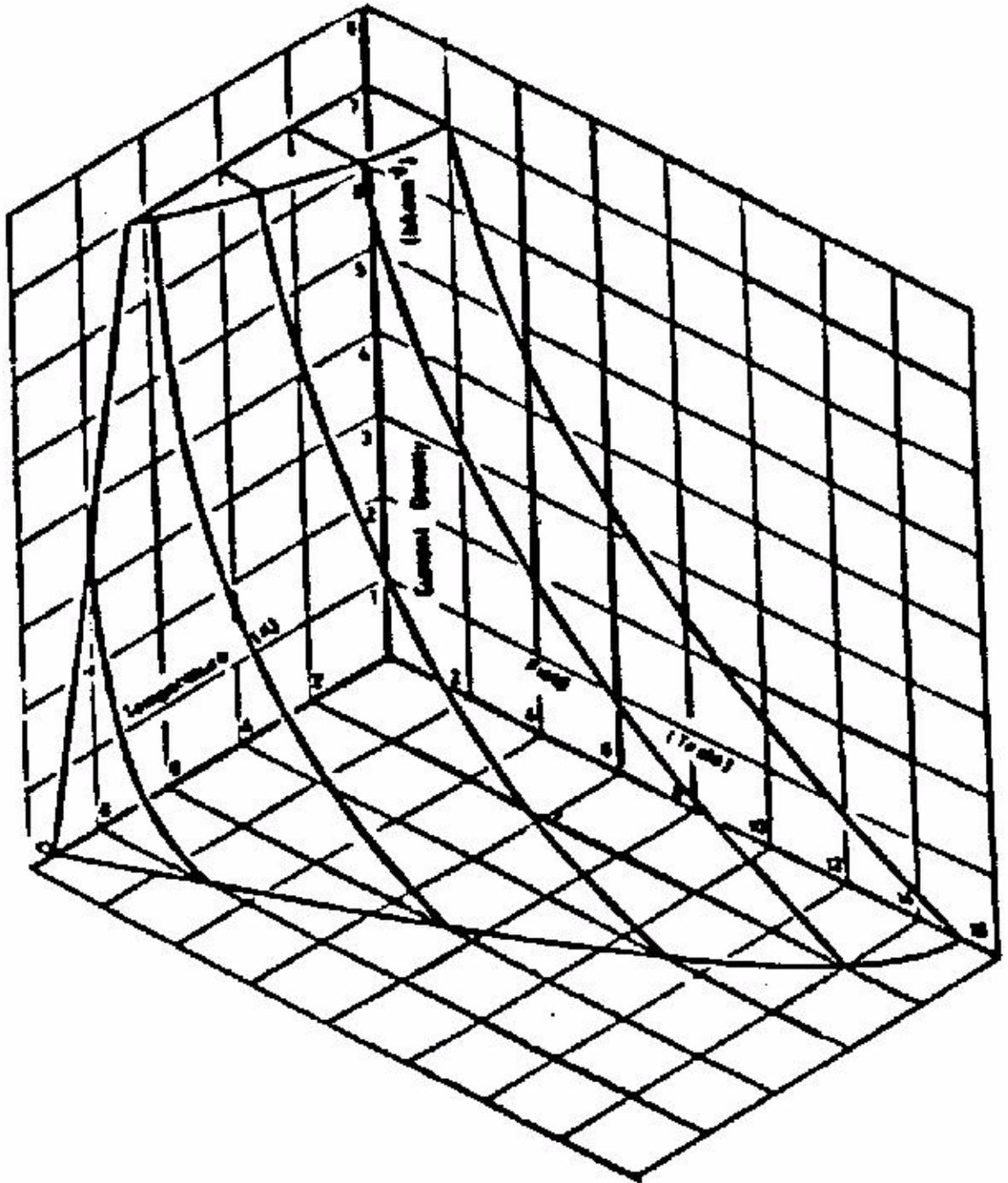
### *VIII.1.11. Bobinas supercondutoras*

Bobinas supercondutoras devem operar abaixo da temperatura e campo críticos do material do qual são formados. A Tabela VIII-1 ilustra as temperatura e campo críticos dos supercondutores mais comumente usados para a fabricação de bobinas supercondutoras.

<i>Material</i>	$T_{\text{crítica}}$ (K)	$H_{\text{crítico}}$ (kOe)
NbTi	9.8	120 a 4.2 K
		148 a 1.2 K
Nb <sub>3</sub> Sn	18.05	221 a 4.2 K

**Tabela VIII-A.** Propriedades de supercondutores normalmente usados na construção de bobinas supercondutoras.

Para uma bobina fabricada usando NbTi, a operação no estado supercondutor só é possível abaixo da superfície ilustrativa mostrada na Figura VIII-9. Enquanto a bobina supercondutora operar abaixo desta superfície, o estado supercondutor é mantido e a bobina funciona perfeitamente.



**Figura VIII-A.** Ilustração das propriedades supercondutoras do NbTi. A superfície delimita a região onde o estado supercondutor é mantido.

Se a bobina é operada a temperatura constante de 4.2 K a superfície da Figura VIII-1 pode ser substituída por uma gráfico bi-dimensional de densidade de corrente versus campo magnético. Para um dado tipo e tamanho de fio, a “densidade de corrente” pode ser substituída por “corrente” e assim temos algo como a Figura VIII-2:

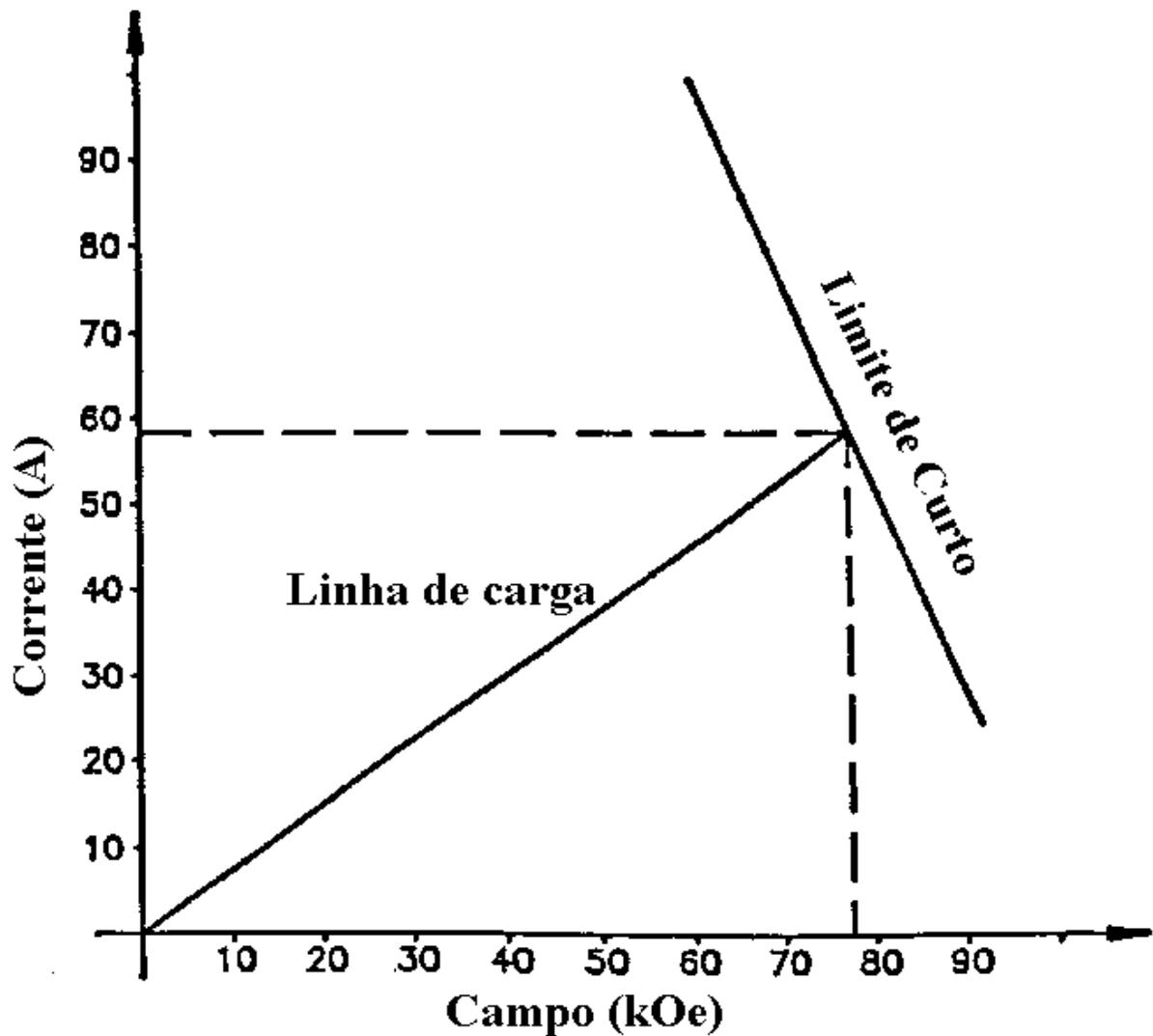


Figura VIII-B. Curva de curto de corrente versus campo magnético.

Este tipo de curva é normalmente chamada de “Curva de curto I-H”, pois representa o comportamento de um pequeno pedaço de um fio de determinada dimensão. O valor máximo de

corrente para esta bobina é de 58.5 A (correspondendo a 7.61 T). Se este limite de corrente é ultrapassado, o ponto onde o campo de pico acontecer sofrerá uma transição para o estado normal (resistivo). Esta região resistiva rapidamente aquecerá devido a alta corrente que passa através dela e se propagará até que: **a)** toda a energia armazenada na bobina seja dissipada ou **b)** toda a bobina transite para o estado resistivo ou **c)** resfriamento suficiente seja fornecido para evitar a propagação. Normalmente tanto (a) quanto (b) ocorrem, resultando em um completo superaquecimento da bobina. Uma outra maneira de provocar um “quench” na bobina supercondutora é aquecendo-a acima de sua temperatura crítica. O sistema criogênico tem como função manter a bobina supercondutora operando no estado supercondutor.

A bobina supercondutora foi construída usando fio de NbTi multifilamentar trançado em uma matriz de cobre. Ela é completamente impregnada de epoxy para prevenir aquecimentos devido ao atrito entre as espiras. A matriz de cobre usada no fio age, junto com alguns diodos, como uma forma de proteção contra “quench”.

Todo o sistema supercondutor pode ser interligado entre si (fonte de potência, chave inversora da corrente e sensor do nível de He líquido) e então ligado ao módulo de interface. Para utilização do sistema supercondutor para obtenção de dados, foi criado um programa de computador que liga o módulo de interface modelo CIM-16 a um computador tipo IBM-PC (486DX2 66 MHz, ou similar) através de uma interface IEE-488 (HP-IB ou equivalente). Este mesmo computador, via a interface RS232, está ligado à um amplificador tipo “lock-in” e ao sistema de medida de resistência.

O módulo CIM-16 é capaz de levar ao computador praticamente todo o controle de uma seção de medidas. Ele possui 8 (oito) portas de entrada, 7 (sete) portas de saída, ambas analógicas com 12 bits de resolução, uni- ou dipolar, +/- 10 V, e dois pares de portas de entrada

e saída, ambos digitais de 8 bits e 4 bits. Através destas portas, pode-se controlar completamente o campo magnético aplicada na amostra, bem como monitorar o nível de He líquido no dewar. O sistema permite ainda monitorar um possível “quençh” da bobina, através da fonte de potência.

### **VIII.1.12. Controle via computador**

Com o propósito de manter documentação sobre o controle do sistema supercondutor, é apresentado abaixo um esquema básico das ligações entre a fonte de corrente (modelo IPS-100), a chave inversora da corrente (modelo CRS-100), o monitor do nível de He (MODEL 1200) e o módulo de interface CIM-16. Detalhes sobre a localização e número das portas pode ser obtido no manual de instruções do sistema.

Porta		Função	Conexão
1	UNIPOLAR	Voltagem na IPS	IPS/BNC 2
2	UNIPOLAR	Voltagem da bobina	IPS/BNC 3
3	UNIPOLAR	Nível de He líq.	MODEL 1200

**Tabela VIII-B.** Relação das conexões das entradas analógicas da CIM-16.

Porta		Função	Conexão
1	UNIPOLAR	Limite de voltagem na IPS	IPS/BNC 5
2	UNIPOLAR	Taxa de carga da bobina	IPS/BNC 6
9	UNIPOLAR	Limite de corrente IPS	IPS/BNC 4

**Tabela VIII-C.** Relação das conexões das saídas analógicas da CIM-16.

Pino	Função	Conexão
1	Ramp down IPS	IPS/TERMINAL 2

2	Ramp up IPS	IPS/TERMINAL 3
3	Aquecedor B	IPS/TERMINAL 4
4	Aquecedor A	IPS/TERMINAL 5
5	Detetor de erro IPS	IPS/TERMINAL 6
6	Fast ramp IPS	IPS/TERMINAL 10
7	Direção da corrente	CRS/TERMINAL 2

**Tabela VIII-D.** Relação das conexões da porta 10, saída digital de 8 bits da CIM-16.

Pino	Função	Conexão
17	Limite de corrente STATUS	IPS/TERMINAL 8
18	Limite de voltagem STATUS	IPS/TERMINAL 7
19	Detetor de erro STATUS	IPS/TERMINAL 9
20	Corrente zero STATUS	CRS/TERMINAL 3
21	Corrente positiva STATUS	CRS/TERMINAL 4
22	Corrente negativa STATUS	CRS/TERMINAL 5
23	Sinal de leitura monitor de He	MODEL 1200/PINO 3
24	Alarme monitor de He	MODEL 1200/PINO 4
25	Terra digital	IPS/TERMINAL 1 CRS/TERMINAL 6 MODEL 1200/PINO 9

**Tabela VIII-E.** Relação das conexões da porta 11, entrada digital de 8 bits da CIM-16.

Pino	Função	Conexão
------	--------	---------

13	Seleção do sensor He	MODEL 1200/PINO 1
14	Seleção do modo He	MODEL 1200/PINO 2
15	Reset alarme He	MODEL 1200/PINO 5

**Tabela VIII-F.** Relação das conexões da porta 13, saída digital de 4 bits da CIM-16.

A conexão ao computador permite que todo o sistema seja transparente ao usuário, ou seja, impedindo que seja, por exemplo, aplicado um campo máximo superior a  $H_{\text{crítico}}$  ou ainda evitando um provável “quenching” da bobina.

O sistema pode então ser controlado unicamente pelo computador, que grava todos os resultados em arquivos formato ASCII, bastando ao usuário regular os valores relativos ao campo que deve ser aplicado à amostra, bem como ao tipo de variação do campo, normalmente uma rampa que segue uma curva de histerese magnética: partindo de  $H = 0$  até o campo máximo  $H = H_{\text{max}}$ , de volta a  $H = 0$  e seguindo até  $H = -H_{\text{max}}$ , e de volta, passando por  $H = 0$ , até  $H = H_{\text{max}}$ .

## Referências

- 
- <sup>1</sup>A.E. Berkowitz, J.R. Mitchell, M.J. Carey, A.P. Young, S. Zhang, F.E. Spada, F.T. Parker, A. Hutten, and G. Thomas, Phys. Rev. Lett. **68**(25), 3745 (1992).
- <sup>2</sup>J.Q. Xiao, J.S. Jiang, and C.L. Chien, Phys. Rev. Lett. **68**(25), 3749 (1992).
- <sup>3</sup>N.F. Mott, Proc. Phys. Soc. **47**, 571 (1935); Adv. Phys. **13**, 325 (1964).
- <sup>4</sup>A. Fert and I.A. Campbell, J. Phys. F **6**, 849 (1976); J.W.F. Dorleijn and A.R. Miedema, J. Phys. F **5**, 487 (1975), J. Phys. F **7**, L23 (1977).
- <sup>5</sup>B.A. Gurney, V.S. Speriosu, J.P. Nozieres, H. Lefakis, D.R. Wilhoit, and O.U. Need, Phys. Rev. Lett. **71**, 4023 (1993).

- 
- <sup>6</sup>C.L. Chien, *Ann. Rev. Mater. Sci.* **25**, 129 (1995).
- <sup>7</sup>T.R. McGuire and R.I. Potter, *IEEE Trans. Magn.* **MAG-11**, 1018 (1975).
- <sup>8</sup>A. Fert and I.A. Campbell, *J. Phys. F* **6**, 849 (1976).
- <sup>9</sup>M.N. Baibich, J.M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friedrich, and J. Chazelas, *Phys. Lett. B* **61**, 2472 (1988).
- <sup>10</sup>G. Binasch, P. Grünberg, P. Saurenbach, and W. Zinn, *Phys. Rev. B* **39**, 4828 (1989).
- <sup>11</sup>S.S.P. Parkin, R. Bhadra, and K.P. Roche, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 2152 (1991).
- <sup>12</sup>W.P. Pratt Jr., S.F. Lee, J.M. Slaughter, R. Loloee, P.A. Schroeder, and J. Bass, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 3060 (1991).
- <sup>13</sup>A. Chaiken, G.A. Prinz, and J.J. Krebs, *J. Appl. Phys.* **87**, 4892 (1990).
- <sup>14</sup>B. Dieny, V.S. Speriosu, S.S.P. Parkin, B.A. Gurney, D.R. Wilhoit, and D. Mauri, *Phys. Rev. B* **43**, 1297 (1991).
- <sup>15</sup>M.T. Johnson, S.T. Purcell, M.W.E. McGee, R. Coehoorn, J. van de Stegge, and W. Hoving, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 2688 (1992).
- <sup>16</sup>T. Shinjo and H. Yamamoto, *J. Phys. Soc.* **59**, 3061 (1990).
- <sup>17</sup>Y. Chen, J.M. Florczak, and E.D. Dahlberg, *J. Magn. Magn. Mater.* **104-105**, 1907 (1992).
- <sup>18</sup>E.E. Fullerton, D.M. Kelly, J. Guimpel, I.K. Schuller, and Y. Bruynseraede, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 859 (1992).
- <sup>19</sup>F. Tsui, B. Chen, D. Barlett, R. Clarke, and C. Uther, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 740 (1994).
- <sup>20</sup>R.M. Custers, J. Singleton, D.A. Keen, R. McGreevy, and W. Hayes, *Physica B* **155**, 362 (1989).
- <sup>21</sup>R. von Helmholt, J. Wecker, B. Holzapfel, L. Schultz, and K. Samwer, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 2331 (1993).
- <sup>22</sup>M. McCormack, S. Jin, T.H. Tiefel, R.M. Fleming, J.M. Philips, and R. Ramesh, *Appl. Phys. Lett.* **64**, 3045 (1994).
- <sup>23</sup>S. Jin, T.H. Tiefel, M. McCormack, R.A. Fastnacht, R. Ramesh, and L.H. Chen, *Science* **264**, 413 (1994).
- <sup>24</sup>S. Jin, H.M. O'Bryan, T.H. Tiefel, M. McCormack, and W.W. Rhodes, *Appl. Phys. Lett.* **66**, 382 (1995).
- <sup>25</sup>R. Mahendiran, A.K. Raychaudhuri, A. Chainani, D.D. Sarma, and S.B. Roy, *Appl. Phys. Lett.* **66**, 233 (1995).
- <sup>26</sup>J.F. Lawler and J.M.D. Coey, *J. Magn. Magn. Mater.* **140-144**, 2049 (1995); J.F. Lawler, J.G. Luney, and J.M.D. Coey, *Appl. Phys. Lett.* **65**, 3017 (1994).
- <sup>27</sup>W. E. Pickett and D.J. Singh, *Phys. Rev. B* **53(3)**, 1146 (1996).

- 
- <sup>28</sup>J.M. George, L.G. Pereira, A. Barthélémy, F. Petroff, L. Steren, J.L. Duvail, A. Fert, R. Loloee, P. Holody, and P.A. Schroeder, *Phys. Rev. Lett.* **72**(3), 408 (1994).
- <sup>29</sup>J.R. Childress, C.L. Chien, and M. Nathan, *Appl. Phys. Lett.* **56**, 95 (1990).
- <sup>30</sup>J.A. Barnard, A. Watnis, M. Tan, E. Haftek, M.R. Parker, and M.L. Watson, *J. Magn. Magn. Mater.* **114**, L230 (1992).
- <sup>31</sup>G. Tosin, L.F. Schelp, M. Carara, J.E. Schmidt, A.A. Gomes, and M.N. Baibich, *J. Magn. Magn. Mater.* **121**, 399 (1993).
- <sup>32</sup>J.Q. Xiao, J.S. Jiang, and C.L. Chien, *Phys. Rev. B* **46**(14), 9266 (1992).
- <sup>33</sup>P. Xiong, G. Xiao, J.Q. Wang, J.Q. Xiao, J.S. Jiang, and C.L. Chien, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 3220 (1992).
- <sup>34</sup>J.S. Jiang, J.Q. Xiao, and C.L. Chien, *Appl. Phys. Lett.* **61**, 2362 (1992).
- <sup>35</sup>C.L. Chien, J.Q. Xiao, and J.S. Jiang, *J. Appl. Phys.* **73**, 5309 (1993).
- <sup>36</sup>M.J. Carey, A.P. Young, A. Starr, D. Rao, and A.E. Berkowitz, *Appl. Phys. Lett.* **61**, 2935 (1992).
- <sup>37</sup>A. Tsoukatos, H. Wan, and G.C. Hadjipanayis, *Appl. Phys. Lett.* **61**, 3059 (1992).
- <sup>38</sup>G. Xiao, J.Q. Wang, and P. Xiong, *Appl. Phys. Lett.* **62**, 42 (1993).
- <sup>39</sup>J.Q. Wang, P. Xiong, G. Xiao, *Phys. Rev. B* **47**, 8341 (1993).
- <sup>40</sup>S.S.P. Parkin, R.F.C. Farrow, T.A. Rabedeau, R.F. Marks, G.R. Harp *et al.*, *Europhys. Lett.* **22**, 455 (1993).
- <sup>41</sup>J.Q. Wang and G. Xiao, *Phys. Rev. B* **49**, 3982 (1994).
- <sup>42</sup>B. Dieny, S.R. Teixeira, B. Rodmacq, C. Cowache, S. Auffret, O. Redon, and J. Pierre, *J. Magn. Magn. Mat.* **130**, 197 (1994).
- <sup>43</sup>R.H. Yu, X.X. Zhang, J. Tejada, J. Zhu, M. Knobel, P. Tiberto, and P. Allia, *J. Appl. Phys.* **78**(8), 5062 (1995).
- <sup>44</sup>R. von Helmolt, J. Wecker, and K. Samwer, *Phys. Stat. Sol. (B)* **182**, K25 (1994).
- <sup>45</sup>P. Allia, F. Ghigo, M. Knobel, P. Tiberto, and F. Vinai, *J. Magn. Magn. Mat.* **157/158**, 319 (1996).
- <sup>46</sup>J. Wecker, R. von Helmolt, L. Schultz, and K. Samwer, *IEEE Trans. Magn.* **29**(6), 3087 (1993).
- <sup>47</sup>R.H. Yu, X.X. Zhang, J. Tejada, M. Knobel, P. Tiberto, and P. Allia, *J. Appl. Phys.* **78**(1), 392 (1995).
- <sup>48</sup>B. Dieny, A. Chamberod, J.B. Genin, B. Rodmacq, S.R. Teixeira, S. Auffret, P. Gerald, O. Redon, J. Pierre, R. Ferrer, and B. Barbara, *J. Magn. Magn. Mater.* **126**, 433 (1996).
- <sup>49</sup>M. Rubinstein, *Phys. Rev. B* **50**, 3830 (1994).

- 
- <sup>50</sup>Y. Asano, A. Oguri, J. Inoue, and S. Maekawa, Phys. Rev. B **49**, 12831 (1994).
- <sup>51</sup>J.H. Kim, J.Q. Xiao, C.L. Chien, and Z. Tesanovic, Solid State Commun. **89**, 157 (1994).
- <sup>52</sup>L. Sheng, Z.D. Wang, D.Y. Xing, and J.-X. Zhu, Phys. Rev. B **53**, 8203 (1996).
- <sup>53</sup>S. Zhang, Appl. Phys. Lett. **61**, 1855 (1992).
- <sup>54</sup>S. Zhang and P.M. Levy, J. Appl. Phys. **73**, 5315 (1993).
- <sup>55</sup>T.A. Rabedeau, M.F. Toney, R.F. Marks, S.S.P. Parkin, R.F.C. Farrow, and G.R. Harp, Phys. Rev. B **48**, 16810 (1993).
- <sup>56</sup>B.J. Hickey, M.A. Howson, S.O. Musa, and N. Wisser, Phys. Rev. B **51**, 667 (1995).
- <sup>57</sup>J.F. Gregg, S.M. Thompson, S.J. Dawson, K. Ounadjela, C.R. Staddon, J. Hamman, C. Fermon, G. Saux, and K. O'Grady, Phys. Rev. B **49**, 1064 (1994).
- <sup>58</sup>M. El-Hilo, K. O'Grady, and R.W. Chantrell, J. Appl. Phys. **76**, 6811 (1994).
- <sup>59</sup>P. Allia, M. Knobel, P. Tiberto, and F. Vinai, Phys. Rev. B **52**(21), 15398 (1995).
- <sup>60</sup>C. Bellouard, B. George, and G. Marchal, J. Phys. Cond. Matter. **6**, 7239 (1994).
- <sup>61</sup> H.J. Blythe and V.M. Fedosyuk, J. Phys. Cond. Matter. **7**, 3461 (1995).
- <sup>62</sup>A. Gavrin, M.H. Kelley, J.Q. Xiao, and C.L. Chien, Appl. Phys. Lett. **66**, 1683 (1995).
- <sup>63</sup>D. Altbir, J. d'Albuquerque e Castro, and P. Vargas, Phys. Rev. B **54**(10), R6823 (1996).
- <sup>64</sup>P. Allia, P. Tiberto, and F. Vinai, J. Appl. Phys. (in press).
- <sup>65</sup>E.P. Wohlfarth, J. Appl. Phys. **29**(3), 595 (1958).
- <sup>66</sup>O. Henkel, Phys. Stat. Sol. **7**, 919 (1964).
- <sup>67</sup>P.E. Kelly, K. O'Grady, P.I. Mayo, and R.W. Chantrell, IEEE Trans. Magn. **25**(5), 3881 (1989).
- <sup>68</sup>M.R. Parker, D. Seale, E. Tsang, J.A. Barnard, S. Hossain, D.A. Richards, and M.L. Watson, J. Appl. Phys. **73**(10), 6408 (1993).
- <sup>69</sup>R.A. McCurie and P. Gaunt, Proc. Intern. Conf. on Magnetism, Nottingham, 780 (1964).
- <sup>70</sup>S. Chikazumi, *Physics of Magnetism* (Ed. Robert E. Kriger Publishing Company, Huntington, New York) (1978).
- <sup>71</sup>M. Fearon, R.W. Chantrell, and E.P. Wohlfarth, J. Magn. Mat. **86**, 197 (1990).
- <sup>72</sup>P. Bissel, R. Chantrell, G. Tomka, J. Knowles, and M. Sharrock, IEEE Trans. Magn. **25**(5), 3650 (1989).
- <sup>73</sup>H.H. Liebermann and C.D. Graham, IEEE Trans. Magn. **MAG-12**, 921 (1976).

- 
- <sup>74</sup>D.E. Polk, U.S. Pat. 3 881 542 (1975).
- <sup>75</sup>H.H. Liebermann, *Amorphous Metallic Alloys* (Ed. F.E. Luborsky, Butterworths, London), 30 (1983).
- <sup>76</sup>M. Matsuura, M. Kikuchi, M. Yagi, and K. Suzuki, *Jap. J. Appl. Phys.* **19**, 1781 (1980).
- <sup>77</sup>E.A. Strange and C.H. Pim, U.S. Pat. 905 758 (1973).
- <sup>78</sup>S. Kavesh, *Metallic Glasses* (Ed. American Society of Metals, Metal Park, Ohio), 5 (1978).
- <sup>79</sup>H.H. Liebermann, *Mater. Sci. Engng.* **43**, 203 (1980).
- <sup>80</sup>C.E. Mobley, *New Trends in Materials Processing* (Ed. American Society of Metals, Metal Park, Ohio), 123 (1976).
- <sup>81</sup>H. Hillmann and H.R. Hilzinger, *Proc. 3rd Int. Conf. Rapidly Quenched Metals* (Ed. Cantor, B, Vol I, The Metals Society, London), 22 (1978).
- <sup>82</sup>F.E. Luborsky and H.H. Liebermann, *Mater. Sci. Engng.* **49**, 257 (1981).
- <sup>83</sup>As amostras foram fabricadas no IEN “Galileo Ferraris”, Torino, Itália conforme Ref. [47].
- <sup>84</sup>P.J. Flanders, *J. Appl. Phys.* **63**(8), 3940 (1988).
- <sup>85</sup>H. Zijlstra, *Rev. Sci. Instrum.* **41**, 1241 (1970).
- <sup>86</sup>R. Reeves, *J. Phys. E* **5**, 547 (1972).
- <sup>87</sup>S. Foner, *IEEE Trans. Magn.* **MAG-17**, 3358 (1981).
- <sup>88</sup>F.S. Tse, I.E. Morse, and R.T. Himble, *Mechanical Vibrations*, 2<sup>nd</sup> ed. (Allyn and Bacon, Boston, 1978), p. 190.
- <sup>89</sup>P.J. Flanders, *Rev. Sci. Instrum.* **61**(2), 839 (1990).
- <sup>90</sup>R.L. Sommer, Tese de Doutorado, UFRGS, Porto Alegre (1992).
- <sup>91</sup>B.J. Hickey, M.A. Howson, S.O. Musa, G.J. Tomka, B.D. Rainford, and N. Wiser, *J. Magn. Magn. Mat.* **147**, 253 (1995).
- <sup>92</sup>R. Gans, *Ann. Phys.* **15**, 28 (1932).
- <sup>93</sup>R.H. Yu, X.X. Zhang, J. Tejada, J. Zhu, and M. Knobel, *J. Appl. Phys.* **79**(4), 1979 (1996).
- <sup>94</sup>L.J. Swartzendruber, *J. Magn. Magn. Mater.* **100**, 573 (1991).
- <sup>95</sup>J. Geshev, O. Popov, V. Masheva, and M. Mikov, *J. Magn. Magn. Mat.* **92**, 185 (1990).
- <sup>96</sup>J. Geshev and M. Mikov, *J. Magn. Magn. Mater.* **104-107**, 1569 (1992).
- <sup>97</sup>J. Wecker, R. von Helmolt, L. Schultz, and K. Samwer, *IEEE Trans. Magn.* **29**(6), 3087 (1993).
- <sup>98</sup>J.R. Childress and C.L. Chien, *J. Appl. Phys.* **70**, 5885 (1991).

---

<sup>99</sup>A. Hütten and G. Thomas, *Ultramicroscopy* **52**, 581 (1993).

<sup>100</sup>A teoria<sup>2,32</sup> prevê, para o sistema de momentos magnéticos aleatoriamente distribuídos, um comportamento quadrático da GMR reduzida ( $\Delta R/R(H=0)_{\text{red}}$ ) em função da magnetização reduzida  $M/M_s$ . Um gráfico pode ser visto na Figura VI-2, página 53.