

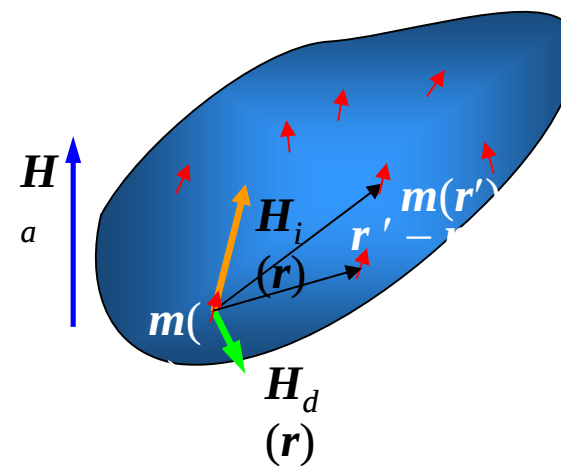
4. Efeitos das interacções dipolares em nanosistemas

A energia de interacção entre dois momentos magnéticos pontuais $\mathbf{m}_1$ e $\mathbf{m}_2$ separados pelo vector de posição $\mathbf{R}$ define-se como



$$U(\mathbf{m}_1, \mathbf{m}_2, \mathbf{R}) = \frac{\mathbf{m}_1 \cdot \mathbf{m}_2}{R^3} - 3 \frac{(\mathbf{m}_1 \cdot \mathbf{R})(\mathbf{m}_2 \cdot \mathbf{R})}{R^5}$$

O efeito mais estudado neste respeito é o *campo desmagnetizante* produzido dentro dum ferromagnético quando sujeito ao campo externo $\mathbf{H}_a$. Neste caso, cada momento elementar no ponto $\mathbf{r}$ dentro de amostra está sentir o campo interno $\mathbf{H}_i$ que é a soma vectorial de $\mathbf{H}_a$ e dos campos dipolares do resto dos momentos $\mathbf{m}(\mathbf{r}')$ nos pontos $\mathbf{r}'$ por todo volume da amostra



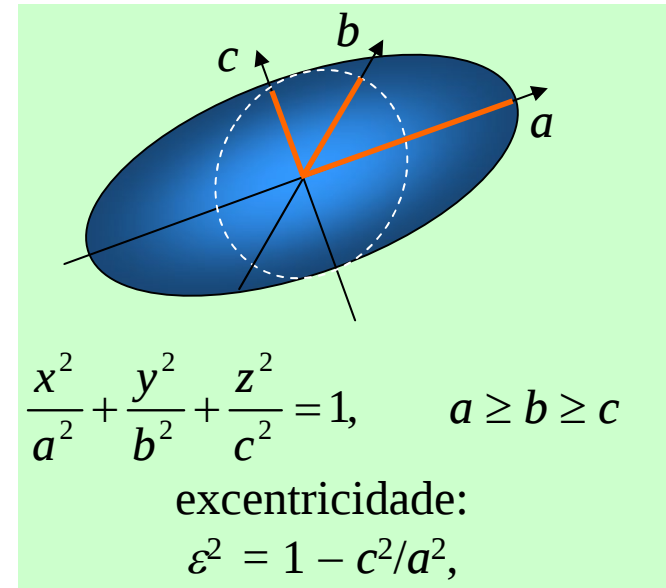
Campo desmagnetizante $\mathbf{H}_d$ é proporcional ao módulo de magnetização $\mathbf{M}$ de material e geralmente contrário à sua direcção.

A situação mais simples corresponde aos corpos magnéticos elipsoidais (uniformemente magnetizados), onde o campo $\mathbf{H}_d(\mathbf{r})$ torna-se independente de $\mathbf{r}$. Neste caso temos:

$$\mathbf{H}_d = \hat{\mathbf{N}}\mathbf{M},$$

$$\hat{\mathbf{N}} = \begin{pmatrix} N_x & 0 & 0 \\ 0 & N_y & 0 \\ 0 & 0 & N_z \end{pmatrix}, \quad \sum_{\alpha} N_{\alpha} = 4\pi,$$

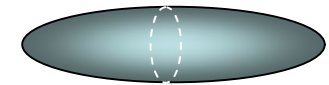
tensor desmagnetizante



As formulas explícitas:

Esferoide prolato:
 $b = c$

$$N_x = 4\pi \frac{1 - \varepsilon^2}{\varepsilon^2} \left(\frac{\operatorname{arctanh} \varepsilon}{\varepsilon} - 1 \right),$$
$$N_y = N_z = \frac{2\pi}{\varepsilon^2} \left(1 - \frac{1 - \varepsilon^2}{\varepsilon} \operatorname{arctanh} \varepsilon \right).$$



Esferoide oblato:
 $a = b$

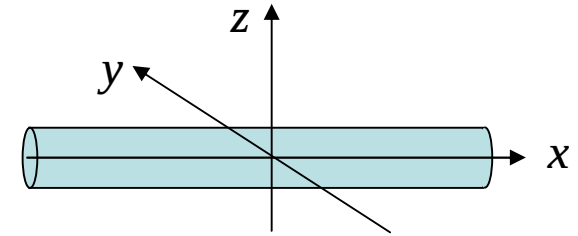
$$N_x = N_y = 2\pi \frac{1 - \varepsilon^2}{\varepsilon^2} \left(\frac{\arcsin \varepsilon}{\varepsilon \sqrt{1 - \varepsilon^2}} - 1 \right),$$
$$N_z = \frac{4\pi}{\varepsilon^2} \left(1 - \frac{\sqrt{1 - \varepsilon^2}}{\varepsilon} \arcsin \varepsilon \right).$$



Os casos de limite

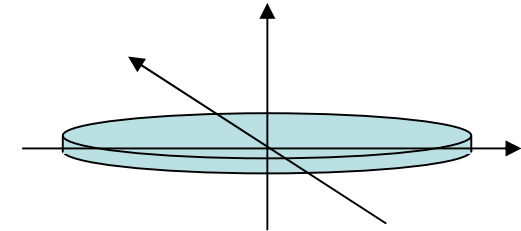
cilindro: $\varepsilon \rightarrow 1$
(prolato)

$$N_x = 0, N_y = N_z = 2\pi.$$



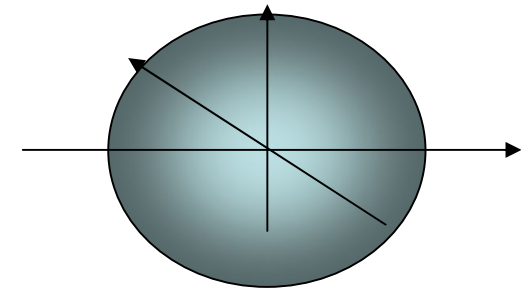
disco: $\varepsilon \rightarrow 1$
(oblato)

$$N_x = N_y = 0, N_z = 4\pi.$$



esfera: $\varepsilon \rightarrow 0$

$$N_x = N_y = N_z = 4\pi / 3.$$



Para o elipsoide geral ($a > b > c$) as componentes de tensor desmagnetizante estão expressas pelas fórmulas mais complicadas, incluindo os integrais elípticos de 1º e 2º tipo.

O campo desmagnetizante nos corpos de forma diferente da elipsoidal já não pode caracterizar-se por um único tensor N , e necessita uso dos métodos numéricos (micromagnéticos).

Os sistemas magnéticos nanoestruturados apresentam generalização e extensão dos conceitos de campo desmagnetizante e tensor desmagnetizante, comparando com os corpos magnéticos maciços.

Sistemas magnéticos granulares

Ressonância ferromagnética das fitas de gravação magnética particuladas

Segundo: U. Netzelmann, Ruhr-Universität Bochum

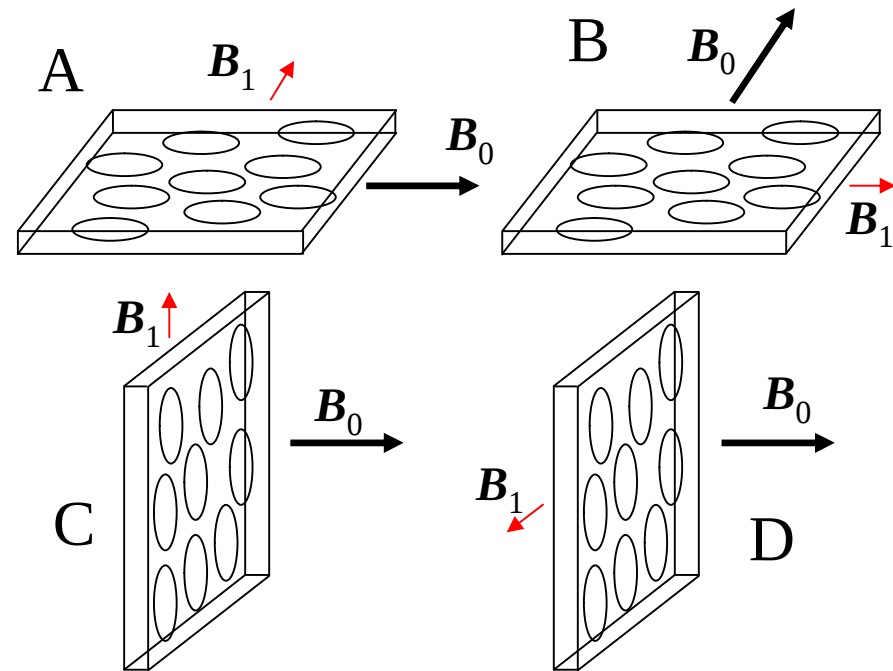
Para ter conta das interacções magnetoestáticas entre as partículas na fita magnética usa-se a forma fenomenológica da densidade da energia magnetoestática efectiva FN como uma combinação dos casos de limite:

- i) de uma partícula isolada com o tensor desmagnetizante N
e
- ii) de um corpo uniformemente magnetizado com a forma de fita e o tensor desmagnetizante N_t .

Se for p a fracção volúmica das partículas magnéticas na fita, o limite i) corresponde ao $p \rightarrow 0$ e o limite ii) ao $p = 1$. Supondo a transição entre estes limites ser linear em p , escreve-se a forma para energia efectiva como

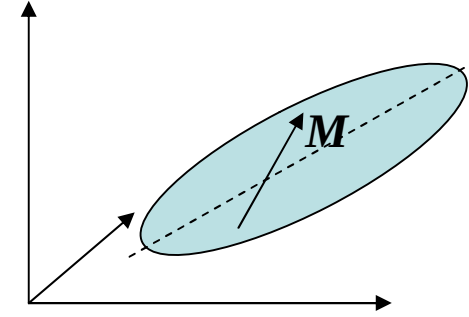
$$F_N = \frac{1}{2\mu_0}(1-p)\mathbf{M} \cdot \hat{\mathbf{N}} \cdot \mathbf{M} + \frac{1}{2\mu_0}p\mathbf{M} \cdot \hat{\mathbf{N}}_t \cdot \mathbf{M}. \quad (\text{por unidade de volume das partículas})$$

Os quatro casos característicos das orientações duma amostra da fita magnética com respeito aos campos magnéticos estático $\mathbf{B}_0$ e o de microondas $\mathbf{B}_1$. A direcção de gravação corresponde à orientação preferida das partículas elipsoidais.



Para o caso i) o tensor desmagnetizante N corresponde à uma partícula elipsoidal inclinada no referencial de laboratório; a energia desmagnetizante desta partícula está dada por:

$$\begin{aligned}
 F_N(p \rightarrow 0) &= \frac{1}{2\mu_0} \mathbf{M} \cdot \hat{N} \cdot \mathbf{M} \\
 &= \frac{1}{2\mu_0} M^2 N_b - \frac{1}{2\mu_0} M^2 (N_b - N_a) \\
 &\quad \times \left[\sin^2 \beta \sin^2 \theta \cos^2(\varphi - \alpha) + \cos^2 \beta \cos^2 \theta \right. \\
 &\quad \left. + \frac{1}{2} \sin 2\beta \sin 2\theta \cos(\varphi - \alpha) \right].
 \end{aligned}$$



Para o caso ii) o tensor desmagnetizante N_t do filme fino tem os valores principais $N_{t,x} = 1$, $N_{t,y} = N_{t,z} = 1$ no referencial de laboratório; a energia desmagnetizante está dada por:

$$F_N(p = 1) = \frac{1}{2\mu_0} M^2 \sin^2 \theta \cos^2 \varphi.$$

Anisotropia de forma nas heteroestruturas magnéticas

Segundo: J. Dubowik*

Institute of Molecular Physics, Polish Academy of Sciences, 1996

São derivadas as expressões gerais para a energia magnética interna e a anisotropia de forma dos corpos heterogêneos. Os corpos heterogêneos de forma arbitrária supõem-se ser densamente pre-enchidos pelas partículas finas da forma arbitrária. Compara-se a aproximação de campo médio com as abordagens anteriores para o problema das interações dipolares em sistemas magnéticos com microestrutura de multicamadas, granular ou colunar ou nos filmes finos com superfície rugosa.

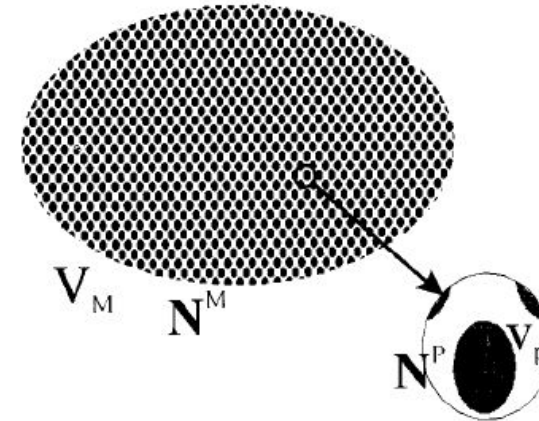


FIG. 1. An ellipsoidal macroscopic heterogeneous body composed of magnetic particles spaced coherently in a form of 3D array. The external shape determines the macroscopic demagnetization tensor N^M . The shape of a single particle determines the microscopic demagnetization tensor N^P .

Filmes granulares

Os filmes granulares compostos das partículas magnéticas pequenas embebidas numa matriz não magnética chamam-se os filmes granulares, ultimamente estudados com respeito ao efeito de magnetoresistência gigante. A magnetização média do filme granular depende da fracção volúmica f ocupada pelas partículas no filme:

$$\langle M \rangle = fM,$$

onde M é a magnetização da partícula individual. Analogamente,

$$\langle M^2 \rangle = fM^2.$$

Assim, obtemos a energia magnética interna como

$$F_D = \frac{1}{2} f \mathbf{M} \cdot \mathbf{N}^M \cdot \mathbf{M} + \frac{1}{2} f(1-f) \mathbf{M} \cdot \mathbf{N}^P \cdot \mathbf{M}.$$

(faltou um factor f na parte de matriz)

Ressonância ferromagnética nos filmes finos granulares

Segundo: G.N. Kakazei, et al. Universidade do Porto, 1999.

Nós partimos da densidade da energia livre magnética por volume unitário do sistema composto (supondo todos os grânulos idênticos):

$$F = -f\mathbf{M}\mathbf{H} + \frac{1}{2}f\mathbf{M}[(1 - f)N_g + fN]\mathbf{M}, \quad (\text{F})$$

onde $\mathbf{M}$ é a magnetização de grânulo, N_g e N são respetivamente os tensores desmagnetizantes dum grânulo e da amostra inteira. O campo interno num grânulo é

$$\mathbf{H}_i = -dF/d\mathbf{M} = \mathbf{H} - [(1 - f)N_g + fN]\mathbf{M}, \quad (\text{H})$$

Depois as dinâmicas de magnetização descrevem-se de modo mais simples pela equação de Landau–Lifshitz (LL) sem amortecimento:

$$\dot{\mathbf{M}} = -\gamma \mathbf{M} \times \mathbf{H}_i$$

com a razão giromagnética γ .

Segundo a equação (H), o campo de FMR H_r para a dada frequência ω é uma função de M (a direcção de $\mathbf{M}$ encontra-se de mínimo de F) e do tensor demagnetizante efectivo.

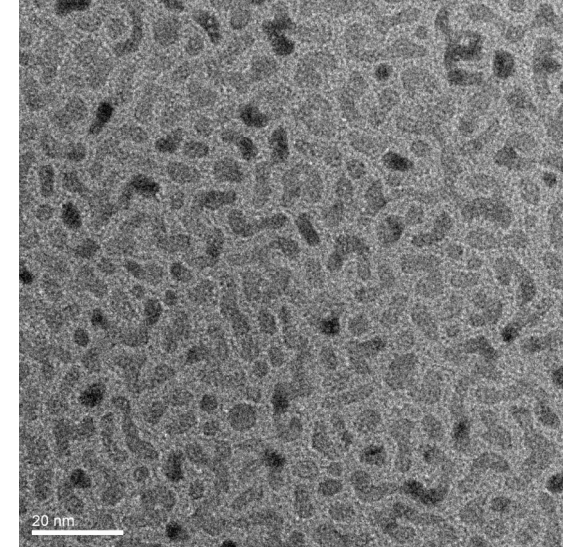
$$\hat{N}_{\text{eff}}(f) = (1 - f)\hat{N}_g + f\hat{N},$$

que dá conta para a forma e concentração dos grânulos. Geralmente, a expressão para a dependência térmica $M(T)$ forma, junta com Eq. (H), o sistema auto-consistente. Em particular, para grânulos esféricos temos

$$M(T) = M_s L(v \hat{M}_s H_i / T),$$

onde $L(x) = \coth x - 1/x$ é a função de Langevin, M_s a magnetização de saturação, e v o volume do grânulo.

Com aumento de f , uns grânulos se agregam em grandes clusters de tipo “vermes”. Quando a distância entre estes clusters torna-se menor do seu tamanho (até sem contacto directo entre eles), eles comportam-se como um contínuo FM com respeito às forças dipolares. È mesmo neste sentido que definimos o ponto de percolação magnética f_p , que pode ser bém para baixo da percolação para as forças de troca directa (ou para condutância eléctrica).



Por cima deste umbral de percolação, $f > f_p$, o composto apresenta geralmente a mistura da fracção granular f_g e da fracção FM, f_{FM} , assim que $f = f_g + f_{FM}$. Portanto as respectivas magnetizações $\mathbf{M}_g$ and $\mathbf{M}_{FM}$ devem considerar-se separadamente, e a Eq. (F) se modifica para:

$$F = -(f_g \mathbf{M}_g + f_{FM} \mathbf{M}_{FM}) \mathbf{H} + \frac{1}{2} [f_g (1 - f_g) \mathbf{M}_g \hat{N}_g \mathbf{M}_g + (f_g \mathbf{M}_g + f_{FM} \mathbf{M}_{FM}) \hat{N} (f_g \mathbf{M}_g + f_{FM} \mathbf{M}_{FM})].$$

Logo também os campos internos para cada fracção são diferentes,

$$\begin{aligned} \mathbf{H}_{i,\text{FM}} &= \mathbf{H} - \hat{N} (f_g \mathbf{M}_g + f_{\text{FM}} \mathbf{M}_{\text{FM}}) \\ \text{e} \\ \mathbf{H}_{i,g} &= \mathbf{H} - (1 - f_g) \hat{N}_g \mathbf{M}_g - \hat{N} (f_g \mathbf{M}_g + f_{\text{FM}} \mathbf{M}_{\text{FM}}). \end{aligned} \quad (\text{H}')$$

Portanto geralmente podem surgir *duas ressonâncias diferentes* resultantes das equações LL acopladas

$$\begin{aligned} \dot{\mathbf{M}}_g &= -\gamma \mathbf{M}_g \times \mathbf{H}_{i,g} \\ \text{e} \\ \dot{\mathbf{M}}_{\text{FM}} &= -\gamma \mathbf{M}_{\text{FM}} \times \mathbf{H}_{i,\text{FM}}. \end{aligned}$$

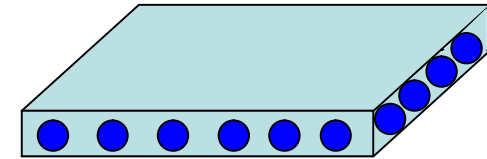
Como se vê desde Eq. (H'), esta situação *não se descreve* com qualquer único tensor efectivo N_{ef} .

O relativo comportamento térmico está bém aproximado pelo

$$\begin{aligned} M_{\text{FN}} &\approx M_s \quad (\text{para } T \text{ não alta a mais}) \\ \text{e} \quad M_g &= M_s L(v M_s H_{i,g} / T) \quad (\text{para os grânulos esféricos}). \end{aligned}$$

Consideramos amostra do filme fino, para a qual os valores principais de N são $(0, 0, 4\pi)$, com três diferentes tipos característicos das estruturas granulares.

(i) Grânulos *esféricos*: $N_g = 4\pi/3$, formados tipicamente nas matrizes metálicas ou na matriz isoladora de SiO_2 . Para $f < f_p$ e $T = 0$ (o caso g_0), os campos FMR perpendicular e paralelo ao filme, $H_{r,\perp}$ and $H_{r,\parallel}$, resultam das formulas clássicas de Kittel



$$H_{r\perp} = H_0 + H_{\text{eff}}, \quad H_{r\parallel} = \sqrt{H_0^2 + H_{\text{eff}}^2}/2 - H_{\text{eff}}/2, \quad (g_0)$$

onde $H_0 = \omega/\gamma$ e o campo efectivo $H_{\text{eff}} = 4\pi fM$.

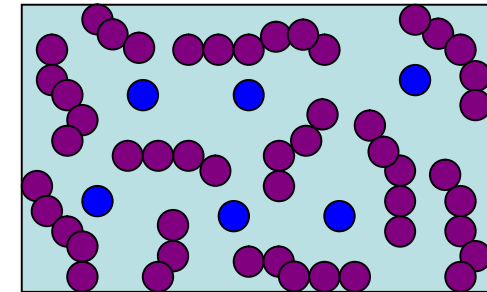
Para $f > f_p$ e $T = 0$ (o caso $g_{\text{FM}0}$), Eq. (K) ainda vale mas com o campo efectivo

$$H_{\text{eff}} = 4\pi(f_g M_g + f_{\text{FM}} M_{\text{FM}}),$$

mas o campo de FMR paralela se desdobra em duas modas:

a) $H_{r,\parallel}$ de Eq. (K), e a adicional

b) $H_{r,\parallel}' = H_0$, cuja força desaparece tanto para $f_{\text{FM}} \rightarrow 0$ como para $f_g \rightarrow 0$.



Os efeitos térmicos, até para $f < f_p$ (o caso gT), descrevem-se pelas diferentes equações de auto-consistência para cada geometria:

$$\begin{aligned}
 H_{i,\perp} &= H_0 - \frac{4\pi}{3}(1-f)M_{\perp}, H_{i,\parallel} \\
 &= \sqrt{H_0^2 + (2\pi f M_{\parallel})^2} - \frac{2\pi}{3}(2+f)M_{\parallel},
 \end{aligned}
 \tag{gT}$$

$$M_{\alpha} = M_s L(v M_s H_{i\alpha} / T), \quad \alpha = \perp, \parallel.$$

Portanto para $T > 0$ os campos efectivos nas formulas de Kittel, Eq. (K), estão essencialmente reduzidas e diferentes:

$$H_{\text{eff},\alpha} = 4\pi f M_{\alpha}$$

Finalmente, para $f > f_p$ e $T > 0$ (o caso $gFMT$), as equações de auto-consistência para a fracção granular em cada geometria são

$$H_{ig,\perp} = H_0 - \frac{4\pi}{3}(1 - f_g)M_{g\perp},$$

$$H_{ig,\parallel} = \sqrt{H_0^2 + 4\pi^2(f_{\text{FM}}M_{\text{FM}\parallel} + f_gM_g^{11})^2} - 2\pi \\ \times \left(f_{\text{FM}}M_{\text{FM}\parallel} + \frac{2 + f_g}{3}M_{g\parallel} \right).$$

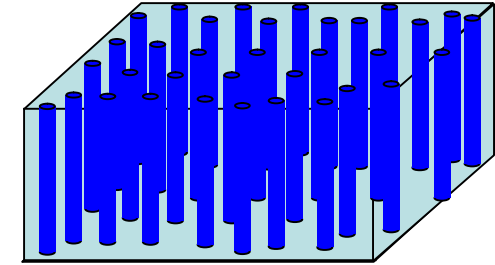
(ii) *Grânulos colunares* (agulhas):

$N_g = (2\pi, 2\pi, 0)$, como se formam na matriz de carbono.

Para o caso g_0 , $H_{r,\perp}$ e $H_{r,\parallel}$ ainda seguem das formulas de Kittel, Eq. (K), com

$$H_{\text{eff}} = 2\pi(3f - 1)M.$$

Este valor está em acordo com o de Dubowik. Notamos que a ressonância perpendicular na estrutura deste tipo para as baixas concentrações ($f < 1/3$) só pode observar-se usando a banda das frequências suficientemente altas, tais que $H_0 > 2\pi(1 - 3f)M$.

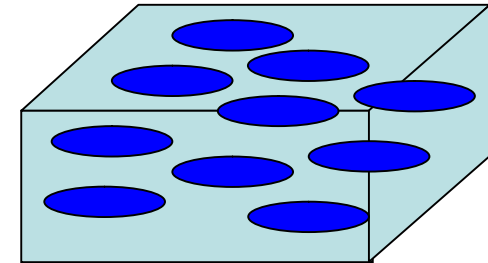


(iii) *Grânulos elipsoidais* alongadas no plano de filme:

$N_g = (1 - 2\varepsilon, \varepsilon, \varepsilon)$, $1/3 < \varepsilon < 1/2$, como se observa nos filmes $\text{Co}_x\text{Cu}_{1-x}$ de coevaporação oblíqua.

Para o caso g_0 , os dois campos FMR *diferentes* no plano de filme, longitudinal e transversal com respeito à orientação de grânulo, são

$$H_{r,\ell} = \sqrt{H_0^2 + (2\pi f M)^2} - 2\pi M(f + \bar{f}),$$



$$H_{r,t} = \sqrt{H_0^2 + [2\pi M(f + \bar{f})]^2} - 2\pi M(f - \bar{f}),$$

$$\bar{f} = (1 - f)(3\varepsilon - 1)$$

$$H_{r,\perp} = \sqrt{H_0^2 + (2\pi \bar{f} M)^2} + 2\pi M(2f + \bar{f}).$$

Estes resultados encontram uma boa correspondência nos dados experimentais para os filmes granulares.

¹⁴ W.-N. Wang, Z.-S. Jiang, and Y.-W. Du, J. Appl. Phys. **78**, 6679 (1995).

¹⁵ J. G. Lin, C. Y. Huang, H. Sang, Y. W. Du, and X. Yan, IEEE Trans. Magn. **34**, 375 (1998).

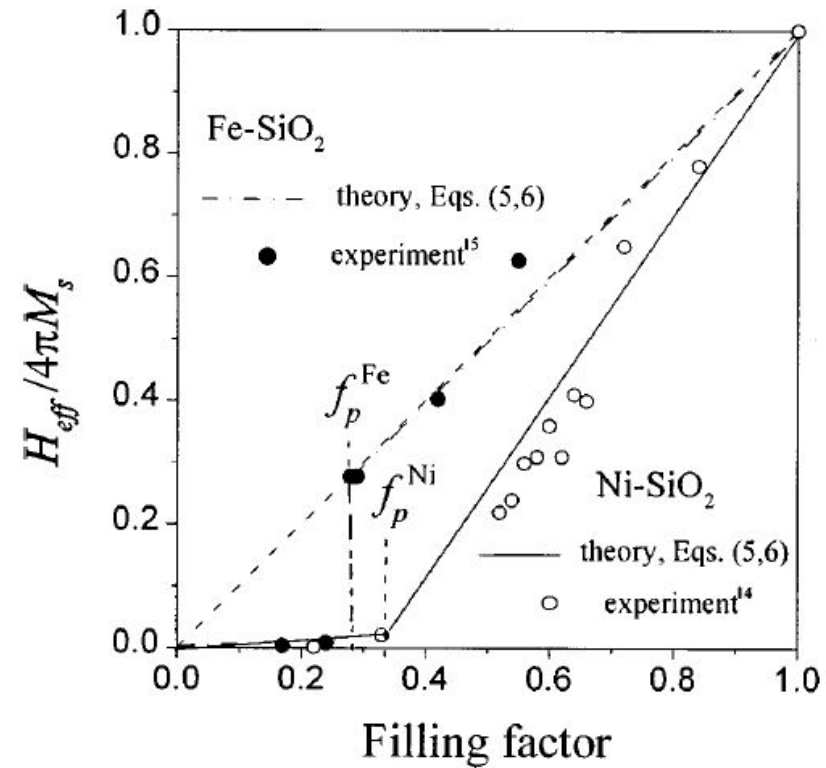


FIG. 1. Dependence of the effective field H_{eff} normalized to the saturation value $4\pi M_s$, for granular Co-Ag films at room temperature on the volumetric filling factor f . The break occurs at the magnetic percolation point $f_p \approx 0.3$.

Comparamos também os nossos dados experimentais para os filmes de $\text{Co}_x\text{Ag}_{1-x}$ com a teoria para a estrutura (i). A quebra característica em $f = f_p$ se ve claramente na dependência de $H_{\text{eff}}(f)$ (Fig. 1) deduzida de modo comum das medidas de $H_r(f)$. Esta encontra-se em acordo excelente com a curva calculada das Eqs. (g0) e (gT). Usamos os parâmetros $H_0 = 3.2$ kOe, $M_s = 1.43$ kOe, $T = 300$ K, $v = 1.2 \times 10^{-20}$ cm³ (para o diametro de 28 Å do grânulo) e assumimos a relação linear entre as concentrações parciais no estado misto:

$$f_g = f_p(1 - f_{\text{FM}}).$$

Esta coexistência das fracções granular e FM no inteiro intervalo $f > f_p$ segue das nossas medidas de magnetização SQUID nos mesmos filmes, fornecendo também a estimativa similar para o tamanho de grânulo para $f < f_p$.

Uma quebra ainda mais forte na dependência de $H_{\text{eff}}(f)$ para $f_p = 0.33$ foi observada em filmes granulares de Ni–SiO₂ para temperatura de ambiente (Fig. 2). Ajuste destes dados com a mesma hypotese linear para f_{FM} e f_g permite estimar o tamanho de grânulos de Ni assim pequenos como ~ 12 Å.

O valor similar foi também estimado dos dados sobre os filmes granulares de Fe–SiO₂ em bom acordo com os resultados directos da microscopia electrónica de transmissão. Mas em contraste aos dois sistemas anteriores, aqui se vê um salto quase descontínuo de $H_{\text{eff}}(f)$ para $f_p = 0.28$ (Fig. 2), sugerindo que a transição de percolação magnética é muito brusca (de tipo da 1ª ordem: f_{FM} cai ao zero para $f < f_p$) neste material.

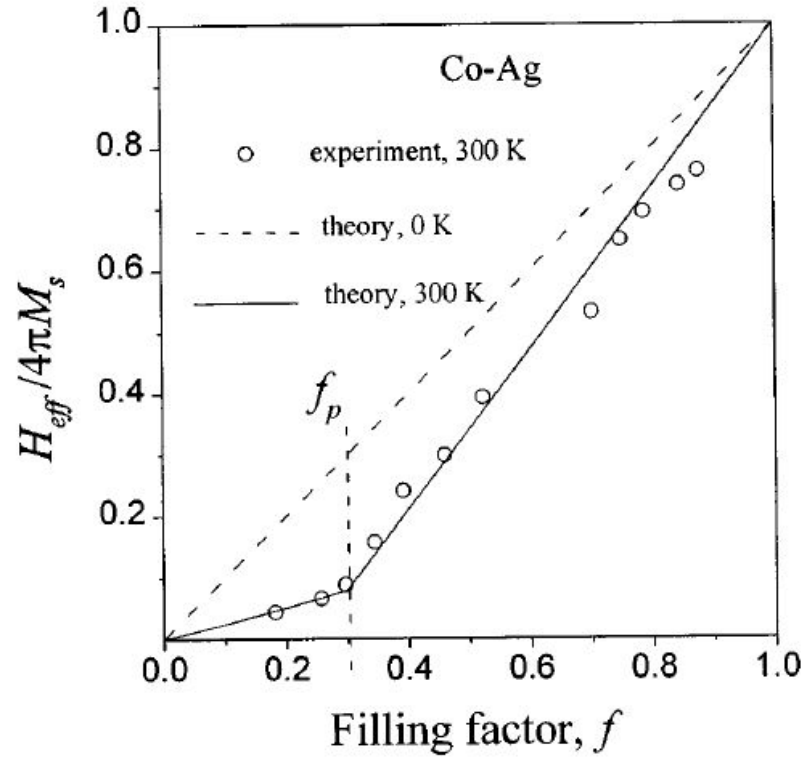
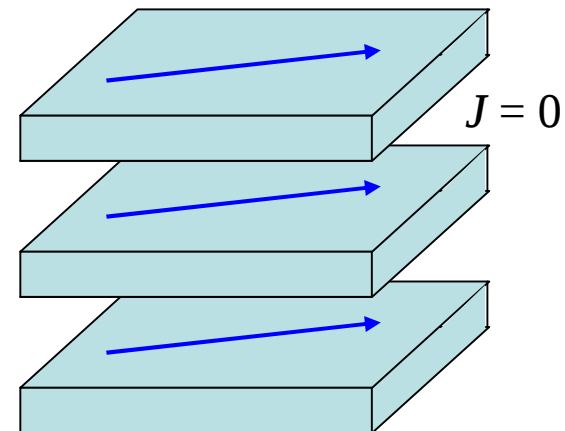
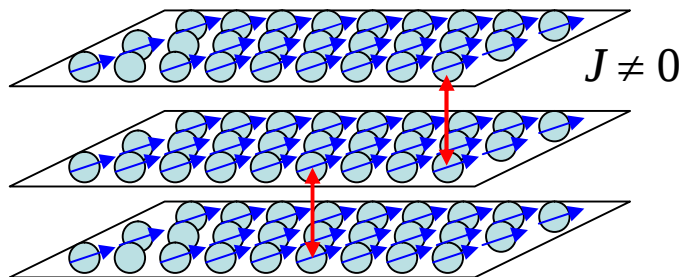


FIG. 2. The room temperature dependencies of $H_{\text{eff}}/4\pi M_s$ on f for thin films with different magnetic granules in the insulating SiO_2 host. While the Ni- SiO_2 system reveals a break at $f_p \approx 0.33$ similar to that for metallic Co-Ag system in Fig. 1, an abrupt jump takes place at $f_p \approx 0.28$ for the Fe- SiO_2 system.

Interacções dipolares em filmes granulares de multicamadas

G.N. Kakazei et al. Universidade do Porto, 2005

Usando as técnicas de FMR estava estudado o acoplamento entre as camadas no sistema granular de multicamadas $(\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3)_n$ com número variável das camadas, $n = 1, \dots, 8$. A diferença principal com os casos de $n = 1$ e $n \leq 3$ consiste em desdobramento notável da linha FMR quando o campo externo é normal às camadas. Este desdobramento explica-se pelo acoplamento dipolar, só possível entre as camadas granulares.



Verificamos que acoplamento dipolar entre dois infinitos e paralelos filmes magnéticos contínuos e uniformemente magnetizado é nulo. Consideremos o campo dipolar $\mathbf{h}$ produzido num ponto de um filme (que pode ser escolhido como origem das coordenadas, $x = y = z = 0$) pelos todos pontos doutro filme com magnetização $\mathbf{M} = (M_x, M_y, M_z)$ e coordenadas $-\infty < x, y < \infty, z = d$. Por exemplo, para a componente x deste campo temos:

$$\begin{aligned} h_x &= M_x \int_{-\infty}^{\infty} dx \int_{-\infty}^{\infty} dy \left[\frac{3x^2}{(x^2 + y^2 + d^2)^{5/2}} - \frac{1}{(x^2 + y^2 + d^2)^{3/2}} \right] \\ &= \frac{M_x}{2d^3} \int_0^{\infty} \frac{d\rho^2}{(\rho^2 + 1)^{5/2}} \int_0^{2\pi} d\varphi [3\rho^2 \cos^2 \varphi - (\rho^2 + 1)] \\ &= \frac{M_x}{2d^3} \int_0^{\infty} \left[\frac{1}{(\rho^2 + 1)^{3/2}} - \frac{3}{(\rho^2 + 1)^{5/2}} \right] d\rho^2 = 0. \end{aligned}$$

O mesmo verifica-se também para h_y e h_z . Portanto acoplamento dipolar entre os planos e assim entre os filmes magnéticos contínuos e uniformemente magnetizados não existe.

Passamos para os filmes granulares modelados pela rede quadrada dos grânulos magnéticos esféricos. Cada grânulo pode ser considerado um dipolo pontual com momento magnético μ . Logo consideramos o campo dipolar na distância z ao normal desta rede, primeiro para μ normal ao seu plano.

$$h^{\perp}(z) = \frac{2\mu}{a^3} \sum_{n,m=-\infty}^{\infty} \frac{(z/a)^2 - n^2}{[n^2 + m^2 + (z/a)^2]^{5/2}}.$$

I. INTRODUCTION

Studies of thin magnetic films by ferromagnetic resonance (FMR)¹ owe much to the simple Kittel formula²

$$\omega^2 = \gamma^2 [H + (N_x - N_z)M_s][H + (N_y - N_z)M_s], \quad (1)$$

where ω is the FMR frequency, γ the gyromagnetic ratio, M_s the saturation magnetization, and N_i are the components of demagnetizing tensor in the coordinate frame with principal z axis along the external field $\mathbf{H}$. However, the internal dipolar fields in the modern nanostructured materials such as magnetic multilayers, granular films, and granular multilayers, do not always fit the classical concept of demagnetizing tensor and hence should be reconsidered for each particular case. This was extensively demonstrated for granular magnetic films.^{3–5} Here we study discontinuous magnetic multilayers and illustrate how their peculiar FMR characteristics can be explained with a proper modification of the Kittel theory, permitting one to evaluate the interlayer dipolar coupling.

II. EXPERIMENT AND RESULTS

Our objects are layered granular metal–insulator films $\text{Al}_2\text{O}_3(3 \text{ nm})/[\text{Co}_{80}\text{Fe}_{20}(1.3 \text{ nm})/\text{Al}_2\text{O}_3(3 \text{ nm})]_n$ with different number of bilayers n (see Ref. 6 for details). Preparation of each granular layer is based on the fact that the metallic

component has much higher surface tension than the insulator, so the metal layer does not wet the oxide and, below some thickness, it breaks up into almost spherical nanoparticles (in our case, with an average diameter $D \approx 3 \text{ nm}$). Initially these films were prepared to study the magnetotransport and transport properties in function of bilayer number,⁷ and the nominal thickness of 1.3 nm of CoFe layer is that where the magnetoresistance has the highest sensitivity to low fields. At room temperature, superparamagnetic behavior of these films in low fields turns to ferromagnetic under strong FMR fields.

Room temperature FMR measurements were done at X band rf $\omega/2\pi = 9.8 \text{ GHz}$ using a standard EPR spectrometer. Angular dependencies of the resonance field H_r were measured at different polar angles θ from 0 ($\mathbf{H} \parallel \mathbf{n}$) to $\pi/2$ ($\mathbf{H} \perp \mathbf{n}$), $\mathbf{n}$ being the normal vector to the film plane. It was found that in the perpendicular geometry ($\mathbf{H} \parallel \mathbf{n}$) the FMR spectra for multilayered samples consist of two peaks separated by $h_c \sim 0.4 \text{ kOe}$ (Fig. 1). Positions of these peaks are almost the same for all the multilayered samples. Also the peak intensity at the higher field remains nearly the same, while the relative intensity at the lower field grows as the number of internal layers. In the single granular layer ($n = 1$), a single FMR peak was found at a field, higher than the higher “multilayered” peak by the same h_c . With growing θ , two “multilayered” peaks start to merge, and in parallel geometry ($\mathbf{H} \perp \mathbf{n}$) only one broad ($\Delta H \sim 1 \text{ kOe}$) peak was observed for *all* the samples. Its position does not depend significantly on the layer number: 1.18 kOe for one layer,

^{a)} Author to whom correspondence should be addressed; electronic mail: ypogorel@fc.up.p

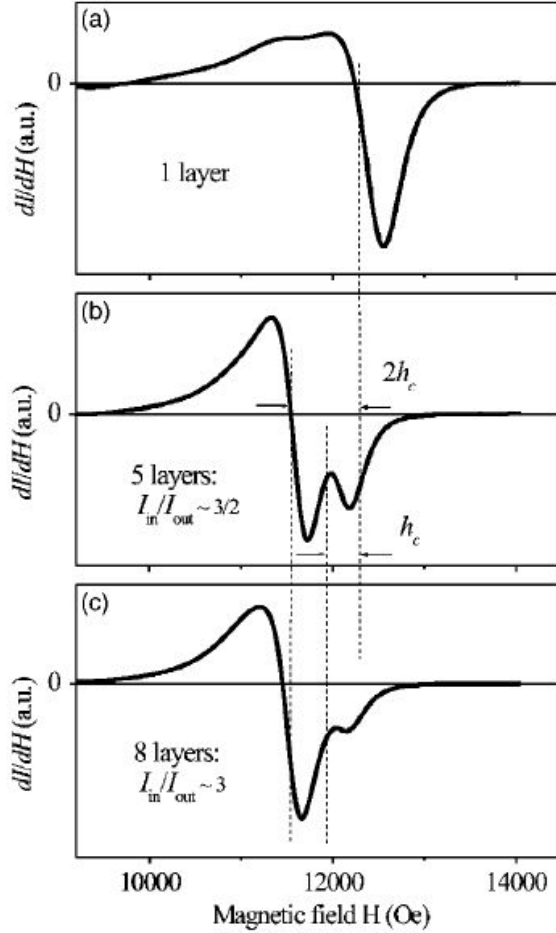


FIG. 1. FMR signal in granular multilayered $\text{Al}_2\text{O}_3(3 \text{ nm})/[\text{Co}_{80}\text{Fe}_{20}(1.3 \text{ nm})/\text{Al}_2\text{O}_3(3 \text{ nm})]_n$ films with different number of layers n . Single absorption line at $n=1$ splits at $n \geq 3$ into two shifted lines whose intensities are roughly proportional to the numbers of outer and inner layers in the stack.

1.2 kOe for five layers, and 1.21 kOe for eight layers.

III. DISCUSSION

Let the magnetic system consist of n parallel layers of granules, each modeled by a square lattice of point-like magnetic dipoles $\mu = \pi D^3 M_s / 6$ with the lattice parameter a and the spacing d between the layers (Fig. 2). All the dipoles are aligned by strong external field but generally experience different internal fields in different layers of the finite stack. The internal field in a granule results from interplay among the external field, dipolar fields from other granules, and demagnetizing field in that same granule. This resembles construction of demagnetizing tensor in a three-dimensional granular sample: $\hat{N}_{\text{eff}} = f\hat{N}_s + (1-f)\hat{N}_g$, where $\hat{N}_s$ and $\hat{N}_g$ are respective

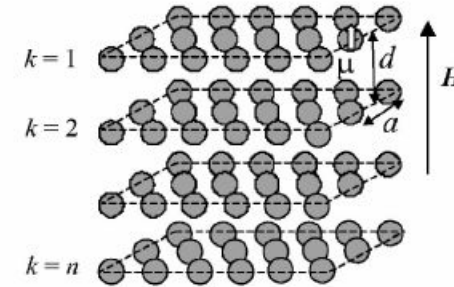


FIG. 2. Model of granular multilayered system as a stack of planar square lattices of identical spherical granules. Magnetic moment μ of each granule is aligned with the external field $\mathbf{H}$ (shown in the perpendicular geometry).

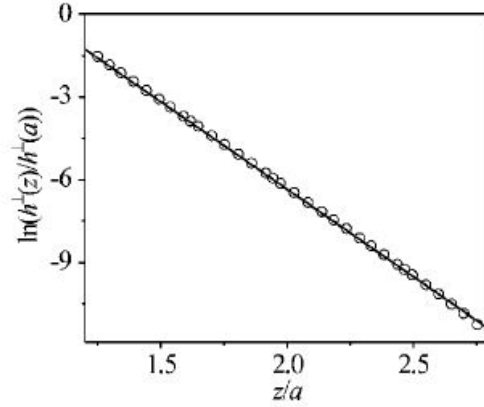


FIG. 3. Logarithm of dipolar field on a granule from a neighbor granular layer at distance z , directly calculated from Eq. (3) (points) and fitted by Eq. (4) (solid line). Its linearity proves that the interlayer dipolar coupling decays exponentially fast.

tensors for sample and granule, and f the volume filling factor.^{4,5} However, the contributions from isotropic $\hat{N}_g$ are irrelevant in Eq. (1), while the tensor $f\hat{N}_s$ for granular layer is found from direct calculation of (convergent) two-dimensional dipolar sums. We note that, by the system symmetry, the dipolar fields are collinear to $\mathbf{H}$ when it points to the principal directions: normal and parallel to layers.

For perpendicular geometry, the dipolar field on a granule in k th layer is

$$h_k^\perp = \sum_{l=1}^{k-1} h^\perp(ld) + \sum_{l=1}^{n-k} h^\perp(ld) + h_0^\perp, \quad (2)$$

where the dipolar field $h^\perp(z)$, produced by granules of another layer at normal distance z from a given one, has the magnitude:

$$h^\perp(z) = 2\mu/a^3 \sum_{n,m=-\infty}^{\infty} (z^2/a^2 - n^2)(n^2 + m^2 + z^2/a^2)^{-5/2}. \quad (3)$$

As seen in Fig. 3, this positive (“magnetizing”) field decays exponentially fast at $z > a$:

$$h^\perp(z) \approx (D/a)^3 M_s \exp(\alpha - \beta z/a),$$

where

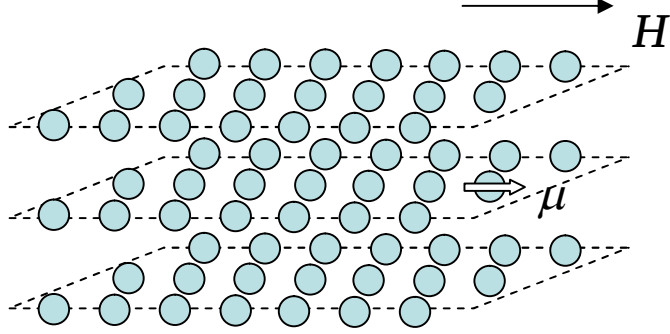
$$\alpha \approx 5.31, \quad \beta \approx 6.35 \quad (4)$$

(if the layers were continuous, one would have $\int_0^\infty dr^2 (z^2 - r^2/2)(r^2 + z^2)^{-5/2} = 0$). Hence, in fact, the sums in Eq. (2) can be restricted only to the nearest neighbor couplings $h_c = h^\perp(d)$ (single for two outer layers $k=1, n$, and double otherwise).

The last term $h_0^\perp$ in Eq. (2) is the dipolar field on a granule, produced by the rest of granules in the same layer:

$$h_0^\perp = -\mu/a^3 \sum_{n^2+m^2 \neq 0} (n^2 + m^2)^{-3/2} \approx -1.506\pi(D/a)^3 M_s. \quad (5)$$

This demagnetization is much weaker than the Kittel value $-4\pi M_s$ in a continuous film (for any $D < a$). Resuming, we have $h_k^\perp = h_0^\perp + h_c$ for two outer layers ($k=1, n$) and $h_k^\perp = h_0^\perp + 2h_c$ otherwise. This difference between inner and outer layers mainly defines the FMR splitting.



For parallel geometry, the dipolar fields on a granule, either from “own” plane or from other planes, are independent of $\mathbf{H}$ orientation in plane and given by

$$h_0^{\parallel} = -\mu/a^3 \sum_{n^2+m^2 \neq 0} l^2(n^2+m^2)^{-5/2} = -h_0^{\perp}/2,$$

$$h^{\parallel}(z) = -\mu/a^3 \sum_{n,m} (n^2 - z^2/a^2)(n^2 + m^2 + z^2/a^2)^{-5/2} \\ = -h^{\perp}(z)/2,$$

so that $h_k^{\parallel} = -h_k^{\perp}/2$. This “magnetizing” field is also unlike zero in-plane demagnetization in a continuous film; it leads to a surprising sum rule for the “sample” demagnetizing tensor $N_{s,x} + N_{s,y} + N_{s,z} = 0$, instead of common $N_x + N_y + N_z = 4\pi$.

We notice that exact vertical alignment of granules in different layers (as in Fig. 2) can only occur in a perfectly ordered system, tailored with such coordination. A numeric analysis shows that the dipolar coupling between uncorrelated layers of identical granules is generally weaker than h_c given by Eqs. (3) and (4), whereas the effects of granule size disorder can also lead to its enhancement. Therefore, in what follows we simply take h_c as a fitting parameter of the theory.

In perpendicular geometry, the coupled Landau–Lifshitz equations, for small x, y components of magnetization in k th layer, $m_{k,xy}$, are

$$\begin{aligned} m_{1,x} &= -\gamma m_{1,y}(H - h_c - 3h_0^{\perp}/2) - \gamma m_{2,y}h_c/2, \\ m_{1,y} &= \gamma m_{1,x}(H - h_c - 3h_0^{\perp}/2) + \gamma m_{2,x}h_c/2, \\ m_{2,x} &= -\gamma m_{2,y}(H - 2h_c - 3h_0^{\perp}/2) - \gamma(m_{1,y} + m_{3,y})h_c/2, \\ m_{2,y} &= \gamma m_{2,x}(H - 2h_c - 3h_0^{\perp}/2) + \gamma(m_{1,x} + m_{3,x})h_c/2, \dots, \\ m_{n,x} &= -\gamma m_{n,y}(H - h_c - 3h_0^{\perp}/2) - \gamma m_{n-1,y}h_c/2, \\ m_{n,y} &= \gamma m_{n,x}(H - h_c - 3h_0^{\perp}/2) + \gamma m_{n-1,x}h_c/2. \end{aligned} \quad (6)$$

With the choice of parameters $a=3.3$ nm, $d=4.3$ nm, $M_s \approx 1.72$ kOe, $\omega/\gamma \approx 3.4$ kOe, we get from Eq. (6) the single layer FMR field: $H_{\perp} = \omega/\gamma + 3h_0^{\perp}/2 \approx 12.3$ kOe, agreeing well with that observed in Fig. 1(a). In multilayers, this value splits into $H_{\perp, \text{out}} \approx H_{\perp} - h_c$ and $H_{\perp, \text{in}} \approx H_{\perp} - 2h_c$ [best fitted to Figs. 1(b) and 1(c) by $h_c \approx 0.36$ kOe] with respective amplitudes roughly proportional to the numbers of outer and inner layers in the stack.

In parallel geometry, an analogue to Eq. (6) gives $H_{\parallel} = \sqrt{(\omega/\gamma)^2 + [3h_0^{\perp}/4]^2} - 3h_0^{\perp}/4 \approx 1.15$ kOe for the single layer (at the same set of parameters), while its splitting in multilayers $\approx h_c/(1 + 3h_0^{\perp}/4H_{\parallel})$ turns only $\sim 1/6$ of the value for perpendicular geometry. This explains the observed single FMR line in this case.

In conclusion, FMR in granular multilayers, described with a proper modification of the Kittel theory for continuous bodies, provides a direct measure of dipolar interlayer coupling, important for the magnetic performance of these systems.