



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

KACIO REINALDO CORREIA SANTOS DE MELLO

**Investigação de fenômenos spintrônicos:** desvendando o fluxo de corrente de spin em camadas de Bi e montagem de epitaxia em fase líquida

Recife

2022

KACIO REINALDO CORREIA SANTOS DE MELLO

**Investigação de fenômenos spintrônicos:** desvendando o fluxo de corrente de spin em camadas de Bi e montagem de epitaxia em fase líquida

**Dissertação de Mestrado** apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Física da UFPE, como parte dos requisitos necessários para a obtenção do Título de Mestre em Física.

**Área de Concentração:** Física da Matéria Condensada e de Materiais

**Orientador:** Antonio Azevedo da Costa

Recife

2022

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

M527i Mello, Kacio Reinaldo Correia Santos de  
Investigação de fenômenos spintrônicos: desvendando o fluxo de corrente de spin em camadas de Bi e montagem de epitaxia em fase líquida / Kacio Reinaldo Correia Santos de Mello. – 2022.  
120 f.: il., fig.

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

1. Física da matéria condensada e de materiais. 2. Corrente de spin. 3. Efeito spin Hall. 4. Classificação binária. I. Costa, Antonio Azevedo da (orientador). II. Título.

530.41 CDD (23. ed.) UFPE- CCEN 2022 - 182

**KACIO REINALDO CORREIA SANTOS DE MELLO**

**INVESTIGAÇÃO DE FENÔMENOS SPINTRÔNICOS:  
DESVENDANDO O FLUXO DE CORRENTE DE SPIN EM CAMADAS DE Bi E  
MONTAGEM DE EPITAXIA EM FASE LÍQUIDA**

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

Aprovada em: 26/10/2022.

**BANCA EXAMINADORA**

---

Prof. Antonio Azevedo da Costa  
Orientador  
Universidade Federal de Pernambuco

---

Prof. Ernesto Carneiro Pessoa Raposo  
Examinador Interno  
Universidade Federal de Pernambuco

---

Prof. Roberto Lázaro Rodríguez Suárez  
Examinador Externo  
Pontificia Universidad Católica de Chile

*Dedico esta dissertação à minha mãe. Dona Ivete, a senhora é uma rainha!*

## **AGRADECIMENTOS**

A Universidade Federal de Pernambuco que me proporcionou ensino público, gratuito e de qualidade.

Ao Programa de Pós-graduação em Física da UFPE e todos os professores que contribuíram com minha formação.

À Fundação de Amparo a Ciência e Tecnologia de PE (FACEPE) pela concessão da bolsa de estudo de Mestrado e as outras agências de fomento brasileiras (CAPES, CNPq, FINEP) pelo apoio financeiro ao laboratório

Ao meu orientador Antonio Azevedo, pelos seis anos de orientação (desde a graduação) e por dividir comigo seus conhecimentos, dedicando seu tempo e paciência a este trabalho.

Aos laboratórios de mecânica e eletrônica do Departamento de Física pela confecção dos materiais utilizados nesta dissertação.

A todos os integrantes do grupo de magnetismo da UFPE (NUMAG) pelas proveitosas discussões e amizade. Obrigado a todos!

Aos meus terapeutas Luciano Viana e Flávia Tavares e a minha amiga Mirta por cuidarem da minha saúde quando eu mais precisei.

Aos amigos, pelos momentos de reflexão e lazer em períodos tão turbulentos.

Aos meus familiares, em especial minha mãe Ivete José e ao meu pai Roberto Correia, pelo apoio e amor que me fizeram seguir em frente.

A minha companheira Karol Barros, pelo apoio e suporte emocional durante o meu mestrado.

E a todos que contribuíram direta ou indiretamente com este trabalho, fico grato!

## RESUMO

Neste trabalho investigamos heteroestruturas de YIG/Bi e YIG/Bi/HM, com YIG = Granada de Ítrio e Ferro e HM sendo Pt ou W, onde verificamos que as camadas de bismuto possuem uma conversão spin-carga desprezível. Com a técnica de bombeamento de spins (spin pumping) descobrimos que a intensidade da corrente elétrica produzida no HM decai com o aumento da espessura do Bi. Desse modo, baseado num modelo estocástico não linear de difusão de spin, é proposto que o Bi atue como um classificador binário devido a sua forte resposta diamagnética. O artigo publicado por Di Yue *et al.* [1] neste mesmo período contendo resultados similares obtidos com a técnica de spin Seebeck, contradizem alguns trabalhos anteriores e contribuíram para endossar e nortear as conclusões aqui obtidas. Paralelamente, fabricamos um sistema de epitaxia em fase líquida (LPE) para produção de granadas de ferro e ítrio (YIG). Nesta dissertação apresentamos todas as etapas da construção do LPE, com exceção do controle da temperatura, que vão desde a fabricação do forno ao desenvolvimento de um sistema lógico de automação de motores e sensores. Também mostramos as ferramentas necessárias para operação do LPE que foram confeccionadas durante este trabalho. Ademais, comentamos sobre os desafios que surgiram durante as etapas e o que foi feito para solucioná-los.

**Palavras-chaves:** corrente de spin; efeito spin Hall; classificação binária; difusão de spin não linear; epitaxia em fase líquida; granada de ferro e ítrio.

## ABSTRACT

In this work we investigate YIG/Bi and YIG/Bi/HM heterostructures, with YIG = Yttrium Iron Garnet and HM being Pt or W, where we verify that the bismuth layers has a negligible spin-charge conversion. With the spin pumping technique, we found that the intensity of the electric current produced in the HM decreases with increasing Bi thickness. Thus, based on a nonlinear stochastic model of spin diffusion, it is proposed that Bi acts as a binary response due to its strong diamagnetic. The publication of the article by Di Yue et al. [1] in this same period showing similar data acquired with the Seebeck spin technique and contesting many results of previous works, contributed to endorse and guide the conclusions obtained here. In parallel, we manufactured a liquid-phase epitaxy (LPE) system for the production of yttrium iron garnet films (YIG). In this dissertation we present all the stages of the LPE construction, with the exception of temperature control, which range from the manufacture of the furnace to the development of a logic system for the automation of motors and sensors. We also show the tools necessary for the operation of the LPE and that were made during this work. In addition, we comment on the challenges that arose during the process and what was done to solve them.

**Keywords:** spin current; spin Hall effect; binary classification; nonlinear spin diffusion; liquid phase epitaxy; yttrium iron garnet.

## LISTA DE ILUSTRAÇÕES

<p>Figura 1 – (a) Efeito Hall clássico. Elétrons são desviados pela força de Lorentz para as extremidades do material criando uma diferença de potencial elétrico. (b) Efeito spin Hall. O espalhamento dos elétrons pela interação spin-órbita cria um acúmulo de spins polarizados, também conhecido como densidade de corrente de spin, na direção perpendicular a densidade de corrente de carga. . . . .</p>	28
<p>Figura 2 – Ilustração de (a) corrente não polarizada, (b) corrente polarizada por spin, (c) corrente totalmente polarizada e (d) corrente de spin pura. . . . .</p>	29
<p>Figura 3 – Ilustração do (a) efeito spin Hall (SHE), em que os elétrons de um fluxo de corrente de carga <math>\vec{J}_C</math> (em verde) são separados por polarização dos spins originando uma corrente de spin <math>\vec{J}_S</math> (em laranja) na direção perpendicular e (b) do efeito spin Hall inverso (ISHE), em que elétrons com polarizações opostas fluem em sentidos contrários originando uma corrente de carga <math>\vec{J}_C</math> na direção perpendicular a <math>\vec{J}_S</math>. . . . .</p>	30
<p>Figura 4 – (a) Uma ilustração esquemática do efeito Seebeck convencional. Quando um gradiente de temperatura <math>\vec{\nabla}T</math> é aplicado a um condutor, um campo elétrico <math>\vec{E}</math> (tensão elétrica <math>V</math>) é gerado ao longo da direção <math>\vec{\nabla}T</math>. (b) Uma ilustração esquemática do SSE. Quando <math>\vec{\nabla}T</math> é aplicado a um ferromagneto, uma voltagem de spin é gerada através da dinâmica de magnetização (<math>\vec{M}</math>), que bombeia uma corrente de spin <math>\vec{J}_s</math> em um metal paramagnético adjacente. No metal paramagnético, esta corrente de spin é convertida em um campo elétrico <math>\vec{E}_{ISHE}</math> devido ao ISHE. . . . .</p>	32
<p>Figura 5 – Esquema da técnica de LSSE. . . . .</p>	34
<p>Figura 6 – (a) Os spins descompensados de uma nuvem de elétrons dão origem a um momento dipolo líquido <math>\vec{\mu}</math> que se alinha ao campo magnético externo <math>\vec{H}</math>. (b) Quando perturbado por um campo de micro-ondas <math>\vec{h}</math> o momento dipolo <math>\vec{\mu}</math> precessiona com frequência angular <math>\vec{\omega}_0</math> em torno do campo <math>\vec{H}</math>. . . . .</p>	36
<p>Figura 7 – (a) Representação geométrica da precessão do spin em torno do campo magnético <math>\vec{H}</math>. . . . .</p>	37
<p>Figura 8 – Níveis de energia na ressonância do spin do elétron. . . . .</p>	38
<p>Figura 9 – Magnetização precessionando sob efeito de um campo magnético a) sem efeitos de perda e b) com efeitos de perda. . . . .</p>	39
<p>Figura 10 – Esquema de funcionamento do sputtering. . . . .</p>	41
<p>Figura 11 – a) Ilustração do vetor magnetização de um meio macroscópico sob efeito de um campo externo <math>\vec{H}</math>. A magnetização <math>\vec{M}</math> precessiona em torno do campo <math>\vec{H}</math> formando um ângulo <math>\theta</math> com o eixo <math>\hat{z}</math>. b) A componente da magnetização transversal ao campo magnético e dependente do tempo é <math>m(t) = m_x(t)\hat{x} + m_y(t)\hat{y}</math>. . . . .</p>	43
<p>Figura 12 – Curva lorentziana correspondente à potência absorvida no FMR e sua derivada, como é medida pelo <i>lock-in</i>. . . . .</p>	46

Figura 13 – Varredura de campo FMR em YIG(40 nm) em função do campo $H$ . As distâncias entre os dois picos corresponde a largura de linha $\Delta H$ do YIG. . . . .	47
Figura 14 – Diagrama da montagem do espectrômetro de FMR. A amostra fica situada no fundo da cavidade, representada na montagem pelo ponto vermelho. . . . .	48
Figura 15 – Esquema ilustrando o processo de spin pumping e ISHE em bicamadas FM/NM. $V_{ISHE}$ , $\vec{J}_s$ , $\vec{\sigma}$ e $\vec{J}_c$ denotam a tensão do sinal ISHE, direção espacial da corrente de spin, vetor de polarização de spin e direção da corrente de carga, respectivamente. . . . .	49
Figura 16 – Esquema da configuração utilizada para medida da tensão DC produzida durante o processo de spin pumping. . . . .	51
Figura 17 – Sinais de SP medidos na camada superior de W em função do campo aplicado. Todas as curvas de absorção foram compensadas pelo valor do campo de ressonância $H_R$ . . . . .	52
Figura 18 – Tipos de técnicas de deposição por LPE: a) Tipping, b) Dipping e c) Sliding boat. . . . .	54
Figura 19 – Esquema da configuração Dipping real para o crescimento de filmes por LPE: I- controle do deslocamento e rotação da haste; II- forno de aquecimento; III- controle da temperatura. 1- elemento de aquecimento; 2- isolamento térmico; 3- tubo suporte de cerâmica 4- bloco de suporte de tijolo refratário 5- cadinho de platina; 6- melt; 7- tampa do cadinho de platina; 8- substrato; 9- anel de quartzo; 10- tridente porta substrato de platina; 11- Tampa do forno de tijolo refratário; 12- haste de cerâmica para suporte do substrato; 13- haste de cerâmica para saída dos termopares; 14- exaustor. . . . .	55
Figura 20 – a) Tipos de cadinhos usados no LPE: platina (esq.) e cerâmica (dir.) e b) cadinho após fabricação do melt em temperatura ambiente. . . . .	57
Figura 21 – Driver de motor de passo DRV8825. À esquerda as conexões lógicas, de baixa tensão, feitas com o microcontrolador e à direita as conexões feitas com o motor, de tensão mais elevada. . . . .	58
Figura 22 – a) desenho do acionador do sensor de barreira, as medidas estão em centímetro e b) acionamento durante o funcionamento. . . . .	58
Figura 23 – a) Placa de circuito impresso (PCI) usada para controle do LPE. Por consumir mais energia, o driver de motor de passo do motor da rosca sem fim precisa de um dissipador de cobre (circulado na figura). b) Desenho das trilhas e conexões da PCI e c) interface vista pelo usuário durante a operação. . . . .	59
Figura 24 – Suporte de alumínio responsável por conectar o forno ao sistema de exaustão e servir de apoio para tampa do forno. . . . .	60

- Figura 25 – Etapas de fixação do fio resistivo no tubo cerâmico. a) Espiras resistivas enroladas no tubo de alumina e separadas por distâncias fixas por espaçadores cerâmicos, os fios que se estendem para esquerda são as extremidades das bobinas de cada zona, b) tubo após a aplicação da primeira camada de cimento refratário, vê-se o autor a esquerda e o orientador (Antonio Azevedo) a direita, c) tubo durante a aplicação da segunda camada de cimento refratário e d) tubo após a aplicação da segunda camada de cimento refratário. . . . . 61
- Figura 26 – Aplicação da manta térmica após fixação das espiras. a) Manta térmica amarrada ao tubo por um fio de Kanthal, b) posicionamento do tubo no local de funcionamento do LPE (o uso de luvas e óculos de proteção é importante durante toda esta etapa) e c) preenchimento do espaço entre o tubo e a carcaça do forno com mais isolamento térmico. . . . . 62
- Figura 27 – Conexão das espiras do forno a fonte de alimentação e teste de funcionamento. a) As espiras utilizam a própria carcaça do forno para dissipar o calor excedente. b) Primeiro teste de funcionamento após ligação das espiras a fonte de alimentação. Os dígitos maiores (superiores) nos displays correspondem ao valor real (medidos pelo termopares) enquanto que os menores (inferiores) correspondem ao valor teórico (calculados a partir da medida inicial, ao ligar o forno, em função da rampa de aquecimento definida). c) Tubo de alumina incandescente devido o aquecimento. . . . . 62
- Figura 28 – a) Mão biônica comercial adaptada para remoção do cadinho, b) gancho de aço para remoção da tampa do cadinho, c) demonstração do uso da mão biônica para remoção do cadinho (as ventosas originais foram substituídas por garras fabricadas para o diâmetro do forno e do cadinho) e d) tampa de platina (sup. esq), tampa de platina com alça (sup. dir.) e fio de platina (inf.). . . . . 64
- Figura 29 – a) Peças de tijolo refratário usadas como suporte para o cadinho, b) tampa do forno e c) tampa do forno no suporte de alumínio fabricado para este fim. . . . . 64
- Figura 30 – a) Anéis de quartzo (sup. esq.) e aço (inf. dir.) usados para prender o substrato ao tridente. A coloração escura no anel de aço indica a presença de oxidação, que é um contaminante neste caso. b) Demonstração do conjunto tridente-anel-substrato. e c) desenho da peça cilíndrica usada para conectar a haste do substrato ao eixo do motor. Através dos parafusos desenhados neste esquema é possível corrigir o movimento cônico na extremidade de uma haste desalinhada. 65

Figura 31 – Dissipador de cobre usado para manter o driver de motor de passo da rosca sem fim com temperatura inferior aos 40 °C. . . . .	66
Figura 32 – Esquema da técnica SP. . . . .	69
Figura 33 – FMR por varredura de campo de filmes de YIG(40 nm) (preto) e bicamadas YIG(40 nm)/Pt(6 nm) (vermelho) e YIG(40 nm)/Bi(6 nm) (azul). As larguras de linha aumentam devido à injeção de momento angular de spin do YIG para a camada HM. . . . .	69
Figura 34 – As Figuras (a)-(c) exibem os sinais de corrente SP ( $I_{SP}$ ) medidos em YIG/Bi(8 nm) em função da potência de RF incidente para três posições angulares, conforme mostrado na inserção de (a). Os sinais SP medidos não podem ser explicados pela equação $\vec{J}_C = (2e/\hbar)\theta_{SH}(\vec{J}_S \times \vec{\sigma})$ , confirmando assim que é devido ao OSE. A inserção de (b) exhibe $I_{SP}$ para YIG/Pt, que é exatamente explicado por esta equação. . . . .	70
Figura 35 – Figuras (a)-(e) exibem os sinais SP medidos na camada superior de Pt em função do campo aplicado. Todas as curvas de absorção foram centradas no valor do campo de ressonância $H_R$ . Os símbolos vermelhos em (e) foram deslocados para melhor visualização. . . .	71
Figura 36 – As figuras (a)-(c) exibem os sinais SP medidos na camada superior de Pt para cinco valores de potência de RF. Todas as curvas de absorção foram compensadas pelo valor do campo de ressonância $H_R$ . As inserções (a)-(c) mostram a dependência linear do sinal SP em função da potência de RF. . . . .	72
Figura 37 – As figuras (a)-(d) exibem os sinais SP medidos na camada superior de W em função (a)-(b) do campo aplicado e (c)-(d) da potência de RF. Todas as curvas de absorção foram centradas no valor do campo de ressonância $H_R$ . As inserções (c)-(d) mostram a dependência linear do sinal SP em função da potência de RF. . . . .	73
Figura 38 – A figura (a) exhibe os sinais SP medidos na camada superior da Pt em função da espessura ( $t_{Bi}$ ) do Bi. Os círculos vermelhos em (b) exibem os valores de pico da corrente SP mostrada em (a) e a linha sólida foi obtida com o melhor ajuste numérico usando a Equação 5.4. . . . .	74

Figura 39 – Fluxograma do processo de classificação binária na heteroestrutura YIG/Bi/Pt. Os spins são bombeados por SP para a camada de Bi e submetidos a um campo magnético uniforme, que gera uma textura de magnetização oposta à direção do campo. A interação de troca entre os momentos magnéticos dos elétrons do Bi e as partículas de spin, $\vec{\mu}_{Bi}$ e $\vec{\mu}_{SP}$ , respectivamente, atua como um mecanismo de relaxação, que depende da temperatura do sistema. Para $0 < t_{Bi} < 8nm$ , parte dos spins relaxará para a rede dando origem ao sinal OSE, enquanto os spins que não relaxarem serão injetados através da interface Bi/Pt produzindo o sinal SP. . . . .	77
Figura 40 – As figuras exibem (a) FMR por varredura de campo e (b) o sinal de SP medido na camada superior do Bi em YIG(6 microns)/Bi(6 nm). Todas as curvas de absorção foram centralizadas no valor do campo de ressonância $H_R$ . Nesta escala vê-se o aumento da largura linha no sinal de SP devido a contribuição térmica dos modos magnetostáticos do YIG. . . . .	79
Figura 41 – A figura exhibe (a) os sinais SP medidos na camada superior de Bi em função do campo aplicado em YIG(40 nm)/Bi(15 nm). Os círculos pretos em (b) exibem os valores de pico da corrente SP mostrada na inserção de (b). Vê-se que a linha sólida do fit da exponencial, em azul, se ajusta melhor aos dados que o fit da reta, em vermelho, indicando uma dependência não linear do sinal SP em função da potência de RF. . . . .	80
Figura 42 – Esquema das amostras de NiFe/Ag/Bi sob ressonância. O campo de radiofrequência (RF) está ao longo de y e o campo DC ao longo de x. $J_S$ é a corrente de spin DC vertical injetada nos estados da interface Ag/Bi e convertida em uma corrente de carga DC horizontal $I_C$ pelo IREE. . . . .	81
Figura 43 – As Figuras exibem (a) os sinais SP medidos na camada superior de Py em função do campo aplicado em Py(15 nm)/Ag(15 nm), em preto, Py(15 nm)/Bi(10 nm), em vermelho e Py(15 nm)/Bi(10 nm)/Ag(15 nm), em azul e as varreduras de campo FMR em (b) Bi(10 nm)/Py(15 nm) e (c) Bi(10 nm)/Ag(15 nm)/Py(15 nm). Na escala das Figuras (b)-(c) vê-se o aumento da largura de linha responsável pelo alargamento do sinal vermelho em (a). . . . .	82

Figura 44 – A figura (a) exibe os sinais de tensão medidos na superfície do Bi em função da corrente elétrica aplicada. A dependência linear indica que o filme é contínuo. Os círculos pretos em (b) exibem os valores de resistência em função da espessura (t) do Bi e a linha sólida é a que melhor se ajusta seguindo a tendência logarítmica da Equação 5.6.	83
Figura 45 – A Figura (a) exibe o esquema das tiras de Py e Pt sobre YIG. O sinal deve ser máximo para $\vec{H}$ aplicado ao longo do eixo da tira [010] e mínimo na direção perpendicular [100] e (b) medidas de SSE em YIG/Py(12 nm), em preto e YIG/Pt(12nm), em vermelho, ao longo do eixo [100]. O aumento no sinal do Py está associado ao acoplamento da magnetização do Py com a do YIG.	84
Figura 46 – Termovoltagens transversais em função do campo magnético aplicado no plano medido em (a) Pt(3 nm)/YIG/GGG e Pt(3 nm)/MgO(3 nm)/YIG/GGG, onde a inserção mostra os resultados em W(3 nm)/YIG/GGG, (b) Bi(15 nm)/YIG/GGG e Bi(15 nm)/MgO(3 nm)/YIG/GGG, e (c) Bi(5 nm)/ YIG/GGG, Bi(8 nm)/YIG/GGG, Bi(15 nm)/YIG/GGG e Bi(60 nm)/YIG/GGG, onde a inserção mostra um gráfico ampliado das termovoltagens em Bi(5 nm)/YIG/GGG.	112
Figura 47 – Termovoltagens transversais em função do campo magnético aplicado no plano medido em (a) Bi(5 nm)/Ag(2 nm)/YIG, Bi(15 nm)/Ag(2 nm)/YIG, e Bi(60 nm)/Ag(2 nm)/YIG, onde a inserção mostra um gráfico ampliado das termovoltagens em Bi(5 nm)/Ag(2 nm)/YIG e b) Bi(8 nm)/Cu(2 nm)/YIG e Bi(15 nm)/Cu(2 nm)/YIG.	113
Figura 48 – Termovoltagens transversais em função do campo magnético aplicado no plano medido (a) em Bi(8 nm)/YIG <sub>slab</sub> com a linha tracejada azul como o ajuste linear aos dados de alto campo. (b) As termovoltagens transversais residuais em Bi(8 nm)/YIG <sub>slab</sub> após a linha reta azul em (a) ter sido subtraída. Termovoltagens transversais em função do campo magnético aplicado no plano medido (c) em Bi(8 nm)/YIG <sub>slab</sub> e Bi(8 nm)/MgO(3 nm)/YIG <sub>slab</sub> , (d) em Bi(8 nm)/Ag(3 nm)/YIG <sub>slab</sub> e Bi(8 nm)/Ag(3 nm)/MgO(3 nm)/ YIG <sub>slab</sub> e (e) em (b) Bi(15 nm)/Cu(3 nm)/YIG <sub>slab</sub> e Bi(15 nm)/Cu(3 nm)/MgO(3 nm)/YIG <sub>slab</sub> .	114
Figura 49 – Termovoltagens transversais em função do campo magnético aplicado no plano medido (d) em Bi(30 nm)/SiOx/Si, (e) em Bi(30 nm)/SiOx/Si após aproximação com YIG <sub>slab</sub> , d) em Ag(5 nm)/Bi(10 nm)/YIG <sub>slab</sub> e (e) em Bi(10 nm)/Ag(5 nm)/YIG <sub>slab</sub> .	115

Figura 50 – Termovoltagens transversais em função do campo magnético aplicado no plano medido (f) em W(3 nm)/Bi(2 nm)/YIG <sub>slab</sub> , W(3 nm)/Bi(4 nm)/YIG <sub>slab</sub> , W(3 nm) )/Bi(8 nm)/YIG <sub>slab</sub> , e Pt(3 nm)/Bi(4 nm)/YIG <sub>slab</sub> (escalonada por um fator de 20) e (b) em Pt(3 nm)/Bi(1 nm)/Ag(1 nm)/YIG <sub>slab</sub> , Pt(3 nm)/Bi(2 nm)/Ag(1 nm)/YIG <sub>slab</sub> e Pt(3 nm)/ Bi(2 nm)/Ag(2 nm)/YIG <sub>slab</sub> . . . . .	115
Figura 51 – (a) Padrões de XRD fora do plano (varreduras $\omega$ - $2\theta$ ) do filme YIG crescido em um substrato GGG. O espectro de XRD detalhando a posição dos picos do filme YIG e do substrato GGG é mostrado na inserção. (b) Padrões de XRD de filme Bi crescido em substrato GGG (111). (c) Padrão GIXRD da amostra GGG/Bi (390 nm) detalhando as posições dos picos da camada Bi. (d) padrão GIXRD do GGG/Bi (390 nm)/Ti (20 nm) detalhando as posições dos picos do Bi e do Ti.	119
Figura 52 – (a) Medidas da resistência em função do tempo para um filme de Bi(8nm) depositado em GGG. A medição foi realizada à temperatura ambiente. A Figura (b) mostra a curva I-V linear típica que ocorre para $t < 1300$ min. A Figura (c) ilustra o comportamento não linear do I-V que ocorre para $t > 1300$ min. . . . .	120

## LISTA DE ABREVIATURAS E SIGLAS

2DEG	Gás de Elétrons em duas dimensões (2 Dimensional Electron Gas)
AFM	Microscopia de Força Atômica
ANE	Efeito Nernst Anômalo
FD	Fermi-Dirac
FI	Ferrimagneto
FM	Ferromagneto
FMR	Ressonância Ferromagnética
FS	Fuch e Sondheimer
GIXRD	Difração de Raios X de Incidência Rasante
GMR	Magnetorresistência Gigante
HE	Efeito Hall Clássico
HM	Metal Pesado
ISHE	Efeito Spin Hall Inverso (Inverse Spin Hall Effect)
LLG	Landau-Lifshitz-Gilbert
LPE	Epitaxia em Fase Líquida
LSSE	Efeito Spin Seebeck Longitudinal
MBE	Epitaxia por Feixe Molecular
MEV	Microscopia Eletrônica de Varredura
MOCVD	Deposição de Vapor Químico Metalorgânico
NM	Metal Normal
NUMAG	Núcleo de Pesquisa em Magnetismo e Materiais Magnéticos
ONE	Efeito Nernst Ordinário
OSE	Efeito Seebeck Ordinário
Py	Permalloy

RF	Rádio Frequência
SHE	Efeito Spin Hall (Spin Hall Effect)
SOC	Acoplamento Spin-Órbita (Spin Orbit Coupling)
SP	Spin Pumping
SSE	Efeito Spin Seebeck
TI	Isolante topológico
TSSE	Efeito Spin Seebeck Transversal
XRD	Difração de Raios X
YIG	Granada de Ítrio e Ferro (Yttrium Iron Garnet)

## LISTA DE SÍMBOLOS

$\mu_0$	Permeabilidade Magnética no Vácuo
$\mu_B$	Magneton de Bohr
$\omega_L$	Frequência de Larmor
$\omega_0$	Frequência de Ressonância
$\gamma$	Fator Giromagnético
$\eta$	Coeficiente de amortecimento
$\Gamma$	Taxa de relaxação
$\zeta$	Parâmetro de Spin-Órbita
$\hbar$	Constante Reduzida de Planck
$g$	Fator g de Landé
$\vec{B}$	Campo Indução Magnética
$\vec{E}$	Campo Elétrico
$\vec{H}$	Campo Magnético
$\vec{J}_C$	Densidade de Corrente de Carga
$\vec{J}_S$	Densidade de Corrente de Spin
$\hat{H}$	Operador Hamiltoniano
$\hat{H}_D$	Operador Hamiltoniano de Dirac
$\theta_{SH}$	Ângulo Spin Hall
$\vec{J}$	Vetor Momento Angular Total
$\vec{S}$	Vetor Momento Angular de Spin
$m_s$	Número Quântico Magnético de Spin
$\vec{\mu}$	Momento Magnético
$\vec{k}$	Vetor de Onda
$\vec{r}$	Vetor Posição

$\vec{p}$	Vetor Momento Linear
$ \psi\rangle$	Vetor de estado no espaço de Hilbert
$\psi$	Função de onda
$\vec{\sigma}$	Vetor composto pelas Matrizes de Pauli
$\sigma_i$	Matrizes de Pauli
$\hat{\sigma}$	Polarização da Corrente de Spin
$\vec{h}$	Campo de Micro-ondas
$\omega$	Frequência de Micro-ondas
$P$	Potência de Micro-ondas
$\lambda_{SD}$	Comprimento de difusão do Spin

## SUMÁRIO

<b>1</b>	<b>INTRODUÇÃO</b>	<b>21</b>
1.1	MOTIVAÇÃO	22
1.2	OBJETIVOS	23
<b>2</b>	<b>FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA</b>	<b>25</b>
2.1	ACOPLAMENTO SPIN-ÓRBITA	25
2.2	EFEITO SPIN HALL (SHE)	27
2.2.1	<b>Corrente de carga e spin</b>	29
2.2.2	<b>Efeito Spin Hall Inverso (ISHE)</b>	30
2.3	EFEITO SPIN SEEBECK (SSE)	31
2.4	RESSONÂNCIA FERROMAGNÉTICA (FMR)	35
2.4.1	<b>Dinâmica da magnetização</b>	35
<b>3</b>	<b>TÉCNICAS EXPERIMENTAIS</b>	<b>41</b>
3.1	DEPOSIÇÃO POR EVAPORAÇÃO CATÓDICA (SPUTTERING)	41
3.2	EXPERIMENTO DE RESSONÂNCIA FERROMAGNÉTICA	42
3.2.1	<b>Tensor susceptibilidade magnética</b>	43
3.2.2	<b>Potência absorvida e sinal detectado no FMR</b>	45
3.2.3	<b>Montagem do experimento de FMR</b>	47
3.3	EFEITO SPIN PUMPING (SP)	48
<b>4</b>	<b>MONTAGEM DE EPITAXIA EM FASE LÍQUIDA</b>	<b>53</b>
4.1	TÉCNICAS DE DEPOSIÇÃO POR LPE	53
4.2	REPRODUÇÃO DA TÉCNICA DIPPING	54
4.3	CONSTRUÇÃO DO SISTEMA DE LPE	57
4.3.1	<b>Automação</b>	57
4.3.2	<b>Forno</b>	59
4.3.3	<b>Acessórios e utilitários</b>	62
<b>5</b>	<b>RESULTADOS E DISCUSSÕES</b>	<b>67</b>
5.1	NOSSAS INVESTIGAÇÕES: YIG(40 nm)/Bi	68
5.1.1	<b>Medidas de FMR e SP</b>	69
5.1.2	<b>YIG/Bi/Pt</b>	71
5.1.3	<b>YIG/Bi/W</b>	71
5.1.4	<b>Interpretação</b>	72
5.2	OUTROS RESULTADOS	78
5.2.1	<b>Bi em YIG espesso</b>	78

5.2.2	<b>Regime de excitação não linear</b> . . . . .	78
5.2.3	<b>Interface Bi/Ag</b> . . . . .	80
5.2.4	<b>Resistividade em Si/Bi</b> . . . . .	81
5.2.5	<b>Efeitos térmicos em YIG/Py(12) e YIG/Pt(12)</b> . . . . .	83
6	<b>CONCLUSÕES E PERSPECTIVAS</b> . . . . .	85
	<b>REFERÊNCIAS</b> . . . . .	87
	<b>APÊNDICE A – PROGRAMA DE AUTOMAÇÃO DO LPE</b> . . . . .	98
	<b>APÊNDICE B – NEGLIGIBLE SPIN–CHARGE CONVERSION IN BI FILMS AND BI/AG(CU) BILAYERS [1] - REVISÃO DA LITERATURA</b> . . . . .	111
	<b>APÊNDICE C – DETALHES EXPERIMENTAIS E CARACTERIZAÇÃO DAS AMOSTRAS</b> . . . . .	117

## 1 INTRODUÇÃO

Com a popularização dos computadores quânticos, do big data<sup>1</sup> e da IOT's<sup>2</sup> a procura de novos mecanismos capazes aumentar a velocidade de processamento de informações, armazenar um grande volume de dados e reduzir ao máximo as dimensões dos componentes tornou-se uma demanda natural. A descoberta da magnetorresistência gigante, que concedeu o prêmio Nobel aos físicos Albert Fert e Peter Grünberg em 2007 [2], já revolucionou a indústria de disco rígido uma vez com as cabeças de leituras de magnetorresistência gigante, agora, as memórias não voláteis (MRAM) tendem a substituir a memória flash, usadas atualmente nos discos rígidos do tipo SSD e em mídias removíveis. Apesar da eletrônica ainda ser o meio mais convencional de transferência de informação no meio digital, com o avanço das pesquisas na área de spintrônica a tendência é de que a carga do elétron seja substituída cada vez mais pelas propriedades magnéticas do material, sobretudo pelo spin.

A era da spintrônica, termo usado para designar um eletrônica baseada na manipulação do spin do elétron, foi iniciada entre os anos 80 e 90 após a descoberta de diversos fenômenos relacionados ao transporte eletrônico com o spin do elétron. Embora a fabricação de filmes finos magnéticos tivesse sido iniciada em 1857 com M. Faraday, foi a partir da década de 1950 que começaram as primeiras pesquisas em escala nanométrica com potenciais aplicações tecnológicas. A vantagem da utilização de filmes finos em pesquisas em spintrônica reside nos fenômenos magnéticos em interfaces, que são inexistentes em materiais volumétricos [3, 4]. Inicialmente, as técnicas de fabricação e caracterização de amostras eram muito escassas e limitadas mas com os avanços das técnicas de produção de alto vácuo, dos espectrômetros de raios-x, da microscopia de varredura e do crescimento considerável da capacidade computacional, novos fenômenos envolvendo transporte de spins foram descobertos e as pesquisas permanecem em ascensão até os dias atuais.

A possibilidade de se fabricar camadas com dimensões atômicas e formar heteroestruturas sanduichando camadas de diferentes materiais, levou à descoberta de fenômenos inéditos [2, 5–8]. Estes efeitos foram importantes para o desenvolvimento da spintrônica por propiciar mecanismos de relacionar o spin com a carga do elétrons e com isso, foi-se descobrindo novos efeitos com manifestações macroscópicas que hoje são fundamentais para compreensão de propriedades dinâmicas de spin.

Dos fenômenos revelados nos últimos tempos, que auxiliam na investigação de propriedades magnéticas em filmes finos se destacam: o efeito spin Hall (direto

<sup>1</sup> Ciência que analisa quantidades gigantescas de dados.

<sup>2</sup> Internet das coisas - conceito que se refere à interconexão digital de objetos cotidianos com a internet.

e inverso), o efeito spin pumping, o efeito spin seebeck e o efeito Rashba (e o efeito Rashba-Eldelstein inverso). Já entre os métodos de fabricação estão o aprimoramento da técnica de evaporação catódica (sputtering), da litografia, da epitaxia por Feixe Molecular (MBE) e da deposição de Vapor Químico Metalorgânico (MOCVD). Algumas técnicas maduras ganharam ainda mais força durante este período, como é o caso da técnica de epitaxia em fase líquida (LPE), que já bem consolidada na indústria de semicondutores durante 50 anos [9], tem se mostrado essencial na fabricação de filmes finos monocristalinos de granadas de ítrio e ferro (YIG), um excelente isolante ferrimagnético<sup>3</sup>.

Embora muito tenha sido descoberto e aprimorado em spintrônica nas últimas décadas, ainda há muito a ser explorado. Atualmente, muitos estudos buscam compreender as propriedades dos isolantes topológicos (TIs), dos materiais bidimensionais e dos férmions de Majorana e Skyrmions [10, 11]. Entender estes fenômenos físicos tem sido a diretriz básica para o desenvolvimento de aplicações tecnológicas inimagináveis para o futuro.

Nesta dissertação, foram investigados processos de difusão e conversão de correntes de spin e carga em heteroestruturas do tipo YIG/Bi/HM, onde HM = Pt ou W. Os materiais foram fabricados com a técnica de deposição por evaporação catódica e caracterizados por meio das técnicas de ressonância ferromagnética, spin pumping e spin Seebeck. Além disso, foi desenvolvido um sistema de epitaxia em fase líquida para fabricação de filmes de YIG, um ferrimagneto amplamente utilizado nas pesquisas aqui descritas.

## 1.1 MOTIVAÇÃO

A inspiração para a produção desta dissertação aconteceu por dois motivos: 1) entender o processo de conversão de corrente de spin em corrente de carga em camadas de bismuto e 2) fabricar filmes de YIG e garantir autonomia do grupo de pesquisa para com o fornecimento deste material.

Como será discutido no capítulo 5, existe uma grande controvérsia acerca do bismuto ser ou não um bom conversor de corrente spin-carga. Após diversas

<sup>3</sup> O ordenamento ferrimagnético pode ser pensado como uma combinação dos ordenamentos ferromagnético e antiferromagnético. Os ferrimagnetos, possuem semelhança com os ferromagnetos, pois exibem uma magnetização espontânea na ausência de campo aplicado e possuem histerese abaixo de sua temperatura de Curie,  $T_c$ . Além disso, se comportam como paramagnetos acima da temperatura de Curie. Por outro lado, possuem semelhanças com os antiferromagnetos, pois os momentos magnéticos dos ferrimagnetos se alinham antiparalelamente uns aos outros, com a diferença de que o momento magnético líquido é diferente de zero. Os materiais ferrimagnéticos são assim diferenciados dos materiais ferromagnéticos e antiferromagnéticos pelo arranjo de seus momentos magnéticos e pela dependência das propriedades magnéticas resultantes da temperatura, que dependem dos tipos de elementos no material, sua estrutura cristalina e processamento microestrutural. Os ferrimagnetos podem ser isolantes e condutores.

publicações atribuírem ao bismuto um aumento nos sinais de spin pumping ou spin Seebeck, tentamos reproduzir os resultados, porém não houve sucesso. Posteriormente, descobriu-se que o uso de um ferromagneto, em especial a liga metálica permalloy ( $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$ ), poderia gerar contribuições espúrias de tensão durante o processo de ressonância produzindo um ganho de sinal que foi conferido ao bismuto. Com isso, a pesquisa foi realizada substituindo o permalloy pelo YIG, que por ser um isolante, não produz tensão devido a processos de retificação de spin. Neste mesmo período, foi publicado um artigo [1] onde foi relatado que filmes de bismuto possuíam conversão spin-carga desprezível. No manuscrito, os autores usaram o efeito SSE e contestaram os resultados de vários trabalhos anteriores e reacenderam a discussão sobre o papel do bismuto na conversão spin-carga. Dada a grande importância desta publicação para o entendimento dos fenômenos que aqui serão apresentados, é apresentado um resumo contendo os principais resultados desse trabalho no Apêndice B.

Adquirir filmes de granada de ferro e ítrio (YIG), não é uma tarefa simples. Filmes de boa qualidade são raros, de alto custo e fundamentais nas pesquisas em spintrônica. Contudo, a técnica empregada na fabricação de filmes monocristalinos deste material é relativamente simples e de baixo valor orçamentário. Foi com esse propósito que foi iniciada a construção do sistema de epitaxia em fase líquida (LPE) do tipo dipping (mergulho, em português). A montagem passou por diversas etapas e inúmeros testes que levaram à obtenção do modelo apresentado no Capítulo 4. Devido às complexidades e os imprevistos que surgiram durante a construção, não houve tempo suficiente para fabricação e caracterização de filmes de YIG, contudo foi atestado o pleno funcionamento do equipamento e o mesmo está pronto para produção do material.

## 1.2 OBJETIVOS

O objetivo geral deste trabalho, é 1) investigar a conversão de corrente de spin em carga em heteroestruturas do tipo FI/Bi e FI/Bi/HM, em que foi usado o YIG como o FI (ferrimagneto) e a platina ou tungstênio como o HM (*heavy metal*, metal pesado, em português) e 2) montar um sistema de epitaxia em fase líquida (LPE).

Para isso, foi realizada a fabricação das heteroestruturas com diversas espessuras por meio da técnica de sputtering DC, a análise da forma do sinal, da largura de linha e do campo de ressonância por meio da técnica de ressonância ferromagnética (FMR) e o estudo da intensidade do sinal no experimento de spin pumping ao variar parâmetros como espessura das camadas e da potência de micro ondas incidente. A garantia de que os fenômenos relatados são produtos ou não da conversão spin-carga é obtida com a comparação dos resultados dos dados adquiridos com os referenciais teóricos, que descrevem, por exemplo, o comportamento das manifestações analisadas

segundo equações e resultados experimentais bem estabelecidos. A finalidade do segundo objetivo é a fabricação de filmes de YIG e não foram predefinidos objetivos específicos. Entretanto, vários desafios surgiram durante todo o processo que requeriam uma solução para a continuidade do projeto. Estes desafios estão listados no Capítulo 4 bem como o método empregado para resolução do problema.

## 2 FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA

Neste capítulo são discutidos alguns temas que servem de base para o entendimento dos fenômenos físicos abordados nesta dissertação. No acoplamento spin-órbita (Seção 2.1), tema central em spintrônica, é obtida uma expressão através da equação de Dirac que descreve a interação spin-órbita e evidencia a importância do emprego de metais pesados em pesquisas na área. Em seguida (Seção 2.2) é apresentada uma breve revisão acerca dos efeitos spin Hall, iniciada pela comparação entre os efeitos clássico e quântico. Na sequência descrevemos as corrente de carga e de spin envolvidas para então relacionar o efeito spin hall com o seu inverso, cuja aplicação foi uma das principais fontes de aquisição de dados desta pesquisa. No tópico seguinte (Seção 2.3) é abordado o efeito spin Seebeck, em que também é realizada uma comparação entre o comportamento clássico e o quântico. Comenta-se ainda sobre o desenvolvimento das teorias utilizadas para obtenção de uma expressão para densidade de corrente de spin produzida por uma aplicação de um gradiente de temperatura e sobre o surgimento de outros efeitos térmicos que podem surgir no material. Por fim, na Seção 3, discute-se sobre a precessão da magnetização de um material presente em um campo magnético estático causada por uma perturbação de um campo de micro-ondas.

### 2.1 ACOPLAMENTO SPIN-ÓRBITA

O acoplamento spin-órbita (SOC Spin-Orbit Coupling), é um efeito quântico relativístico que não possui um análogo clássico e descreve a interação entre o momento angular de spin do elétron com o seu movimento orbital. Existem algumas maneiras de se obter uma expressão para o SOC, uma delas é através do tratamento relativístico da equação de Schrödinger para o elétron, desenvolvido por Dirac. A equação de Dirac é usada para descrever o comportamento de partículas relativísticas de spin 1/2, o qual não pode ser desenvolvido com o hamiltoniano de Schrödinger. No hamiltoniano proposto por Dirac  $\hat{H}_D$ , é considerado que a inversão de paridade é simétrica para todas as partículas de spin 1/2 e por isso as coordenadas espaço temporais aparecem de forma equivalente [12]. Assim, a equação de Dirac pode ser escrita como:

$$i\hbar \frac{\partial \Psi(\vec{r}, t)}{\partial t} = \hat{H}_D \Psi(\vec{r}, t) = [c\vec{\alpha} \cdot \vec{p} + \beta mc^2] \Psi(\vec{r}, t) \quad (2.1)$$

em que:

$$\hat{H}_D = c\vec{\alpha} \cdot \vec{p} + \beta mc^2 \quad (2.2)$$

é o hamiltoniano de Dirac, onde  $\alpha$  e  $\beta$  são coeficientes a serem determinados,  $c$  é a velocidade da luz e  $m$  a massa da partícula. Impondo que a relação energia momento é do tipo  $E^2 = p^2c^2 + m^2c^4$ , obtém-se as matrizes de Dirac (ou matrizes gama)[13]:

$$\beta = \begin{bmatrix} \vec{1} & 0 \\ 0 & -\vec{1} \end{bmatrix} \text{ e } \alpha = \begin{bmatrix} 0 & \vec{\sigma} \\ \vec{\sigma} & 0 \end{bmatrix}$$

em que

$$\sigma_x = \begin{bmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{bmatrix}, \quad \sigma_y = \begin{bmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{bmatrix}, \quad \sigma_z = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix}$$

são as matrizes de Pauli e

$$\vec{1} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix}$$

é a matriz identidade.

Supondo um elétron sob efeito de um campo eletromagnético externo descrito pelo potencial vetorial  $\vec{A}$  e o potencial escalar  $\phi$ , seguindo a formulação Lagrangiana, o momento linear sofre uma transformação de calibre do tipo  $\vec{p} \rightarrow \vec{p} - (e/c)\vec{A}$ . Adicionando o efeito do potencial elétrico  $e\phi$  na Equação 2.1 a equação de Dirac pode ser expressa por:

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} = \left[ c\vec{\alpha} \cdot \left( \vec{p} - \frac{e}{c}\vec{A} \right) + \beta mc^2 + e\phi \right] \Psi \quad (2.3)$$

No limite não relativístico, em que a energia derivada dos fenômenos magnéticos é muito menor que  $mc^2$ , a Equação 2.3 pode ser expandida em série de potências, onde até a primeira ordem temos [14]:

$$H = \frac{1}{2m} \left( \vec{p} - \frac{e}{c}\vec{A} \right)^2 + e\phi - \frac{e\hbar}{2mc} \vec{\sigma} \cdot \vec{E} \times \vec{p} \quad (2.4)$$

O último termo de 2.4 é responsável pela interação spin órbita. Outros termos irrelevantes (nulos em um campo elétrico uniforme ou de magnitude desprezível) foram omitidos. Sendo o potencial  $V(r)$  esfericamente simétrico, o produto  $\vec{\sigma} \cdot \vec{E} \times \vec{p}$  pode ser reescrito como:

$$\vec{\sigma} \cdot \vec{E} \times \vec{p} = -\frac{1}{r} \frac{\partial V}{\partial r} \vec{\sigma} \cdot \vec{r} \times \vec{p} = -\frac{\hbar}{r} \frac{\partial V}{\partial r} \vec{\sigma} \cdot \vec{l} \quad (2.5)$$

onde  $\hbar\vec{l} = \vec{r} \times \vec{p}$ . Portanto, o termo de spin órbita pode ser reduzido a:

$$\frac{e\hbar^2}{4m^2c^2} \frac{1}{r} \frac{\partial V}{\partial r} \vec{\sigma} \cdot \vec{l} = \zeta \vec{\sigma} \cdot \vec{l} \quad (2.6)$$

em que  $\zeta = \frac{e\hbar^2}{4m^2c^2} \frac{1}{r} \frac{\partial V}{\partial r}$  é chamado de parâmetro de spin-órbita.

Considerando que a energia potencial é do tipo colombiana e conseqüentemente proporcional ao número atômico do material, verifica-se que o SOC é maior em metais pesados. Materiais como Platina (Pt), Tântalo (W), Tungstênio (W) e Bismuto (Bi), principal objeto de estudo deste trabalho, são bastante utilizados na spintrônica devido à forte interação spin-órbita.

## 2.2 EFEITOS SPIN HALL (SHE)

O efeito de spin Hall se origina na interação spin-órbita dos elétrons de condução em metais e semicondutores, que possibilita a interconversão de correntes de carga e de spin [15, 16]. A descoberta de que uma corrente elétrica poderia induzir uma orientação nos spins de materiais com forte SOC foi feita por Dyakonov e Perel em 1971 [17, 18]. Contudo a importância deste efeito só foi compreendida 28 anos depois por Hirsch que propôs o termo Spin Hall Effect (SHE) publicando um famoso artigo com mesmo nome [19]. A observação experimental em semicondutores foi realizada nos anos de 2004 e 2005 por Kato et al. [20] e Wunderlich et al [21]. Assim como as descobertas dos efeitos hall (ordinário e anômalo) feitas por Edwin Hall [22, 23] foram de grande importância para o estudo de semicondutores e para física do estado sólido [24], o efeito spin hall despertou um crescente interesse da comunidade científica para compreensão dos conceitos básicos e as possíveis aplicações que podem ser desenvolvidas na área de spintrônica.

No efeito Hall clássico (HE), quando uma corrente elétrica  $\vec{I}$  atravessa um material magnético inserido em um campo magnético  $\vec{B}$ , ocorre uma deflexão dos elétrons que são acumulados numa direção perpendicular a  $\vec{B}$  e a  $\vec{I}$  (Figura 1a). Esta acumulação foi descoberta por Edwin Hall em 1879 [22] e pode ser explicada pela força de Lorentz (2.7)

$$\vec{F} = -e(\vec{v} \times \vec{B}), \quad (2.7)$$

em que  $e$  é o módulo da carga do elétron e  $\vec{v}$  é o vetor velocidade.

O sentido da deflexão para a superfície onde ocorrerá a acumulação determinará o sinal da carga dos portadores, ou o tipo do semicondutor, que pode ser N ou P a depender da sua tendência a doar ou receber elétrons. A densidade de carga

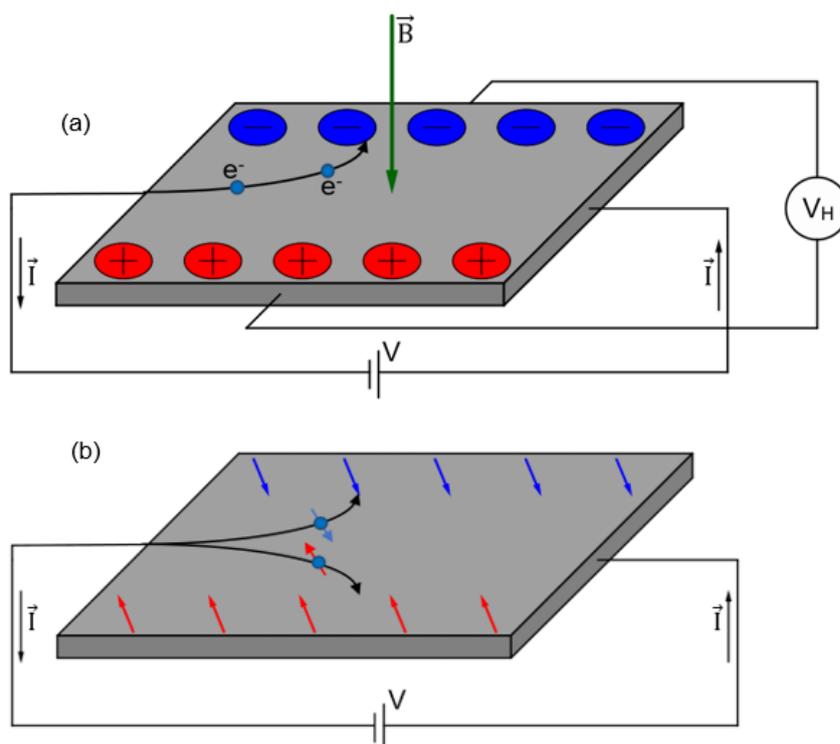
acumulada  $n$  em um portador de espessura  $t$ , pode ser medida diretamente da diferença de potencial, chamada de tensão hall  $V_H$ , que pode ser expressa como,

$$V_H = \frac{IB}{net}. \quad (2.8)$$

Uma outra grandeza interessante relacionada ao efeito Hall é o coeficiente Hall, que também pode ser medido na amostra e é dado por:

$$R_H = -\frac{1}{ne}. \quad (2.9)$$

Figura 1 – (a) Efeito Hall clássico. Elétrons são desviados pela força de Lorentz para as extremidades do material criando uma diferença de potencial elétrico. (b) Efeito spin Hall. O espalhamento dos elétrons pela interação spin-órbita cria um acúmulo de spins polarizados, também conhecido como densidade de corrente de spin, na direção perpendicular a densidade de corrente de carga.



Fonte: o autor (2022).

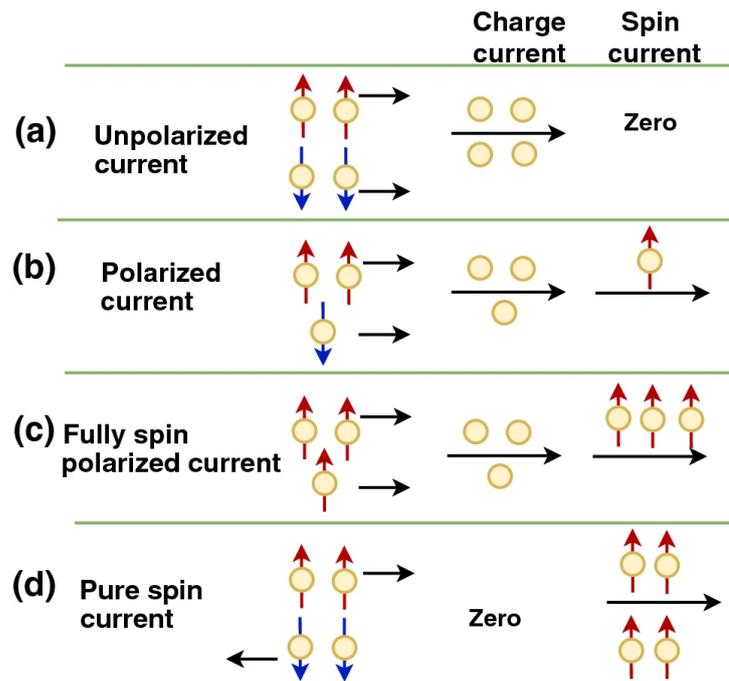
A principal diferença entre o efeito Hall clássico (HE) e o efeito spin Hall (SHE), é que enquanto que no HE a deflexão depende do sinal da carga inserida, no SHE as cargas acumuladas são separadas mediante a polarização dos spins (Figura 1b). Uma diferença importante entre os dois efeitos é que no SHE os spins podem ser manipulados mesmo que não haja campo magnético externo, o que torna esta uma das descobertas mais importantes para a spintrônica atualmente. No SHE, a quantidade de carga e a superfície onde haverá acumulação dos elétrons dependerá não apenas das

características do material como também da forma que o fluxo de elétrons é constituído, como será discutido a seguir.

### 2.2.1 Corrente de carga e spin

Existem basicamente 4 formas de descrever um fluxo de elétrons: a) corrente de carga pura ou não polarizada, quando uma mesma quantidade de elétrons com polarizações opostas flui no mesmo sentido (Figura 2a), b) corrente polarizada por spin, quando uma quantidade distinta de elétrons com polaridades opostas flui no mesmo sentido (Figura 2b), c) corrente totalmente polarizada, quando uma quantidade de elétrons com mesma polarização flui no mesmo sentido (Figura 2c) e d) corrente spin pura, quando uma mesma quantidade de elétrons com polarizações opostas flui em sentidos opostos (Figura 2d).

Figura 2 – Ilustração de (a) corrente não polarizada, (b) corrente polarizada por spin, (c) corrente totalmente polarizada e (d) corrente de spin pura.



Fonte: retirado de [25].

Podemos expressar os 3 primeiros casos, em que a corrente de carga não é nula, por:

$$\vec{J}_C = \vec{J}_\uparrow + \vec{J}_\downarrow \quad (2.10)$$

onde  $\vec{J}_\uparrow$  e  $\vec{J}_\downarrow$  são as densidades de corrente de carga com spin up e down, respectivamente. Uma corrente de carga pura é obtida quando o valor de  $|\vec{J}_C|$  é máximo, que ocorre quando  $|\vec{J}_\uparrow| = |\vec{J}_\downarrow|$ , como representado na Figura 2a.

Os 3 últimos casos, em que a corrente de spin é diferente de zero, pode ser dado por:

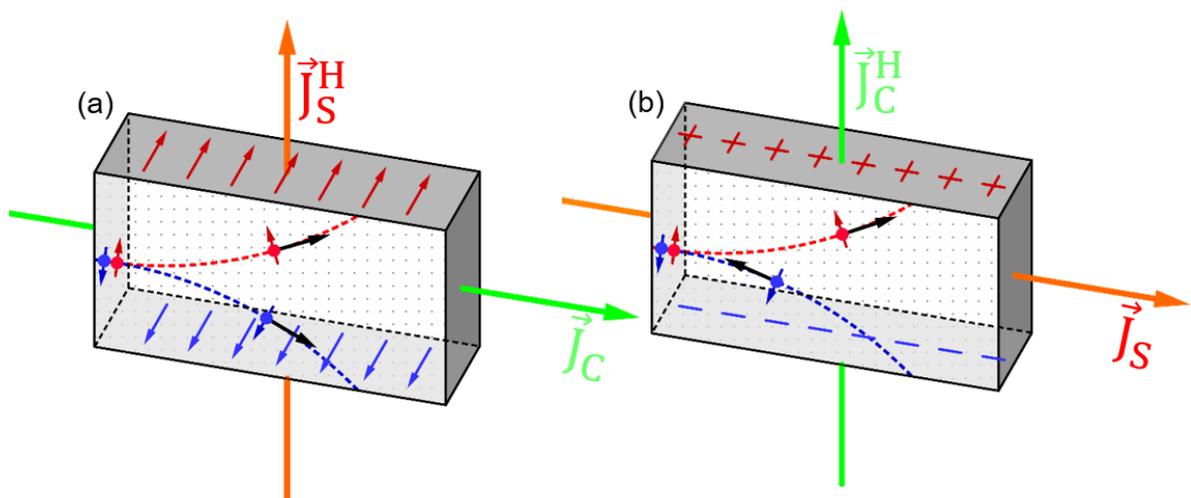
$$\vec{J}_S = \vec{J}_\uparrow - \vec{J}_\downarrow \quad (2.11)$$

onde obtemos uma corrente de spin pura (valor máximo de  $|\vec{J}_S|$ ) quando  $|\vec{J}_\uparrow| = -|\vec{J}_\downarrow|$ , i.e. quando os elétrons com polaridades opostas se movem em sentidos opostos como mostra a Figura 2d. As mesmas condições são obtidas para uma corrente de spin pura quando  $|\vec{J}_C| = 0$  na Equação 2.10 e para uma corrente de carga pura quando  $|\vec{J}_S| = 0$  na Equação 2.11, como esperado.

### 2.2.2 Efeito Spin Hall Inverso (ISHE)

Ao contrário do efeito Hall clássico, onde só existe a corrente de carga envolvida, o efeito spin Hall permite inversão, isto é, é possível não só gerar corrente de spin  $\vec{J}_S$  injetando uma corrente de carga  $\vec{J}_C$  (Figura 3a) como também o oposto, corrente de carga via corrente de spin (Figura 3b). A primeira evidência do efeito inverso foi feita por Azevedo, A *et al.* [26] em 2005, contudo a explicação definitiva do fenômeno foi dada apenas um ano depois por Saitoh *et al.* [27] que verificou que o efeito medido era devido ao efeito hall inverso (ISHE).

Figura 3 – Ilustração do (a) efeito spin Hall (SHE), em que os elétrons de um fluxo de corrente de carga  $\vec{J}_C$  (em verde) são separados por polarização dos spins originando uma corrente de spin  $\vec{J}_S$  (em laranja) na direção perpendicular e (b) do efeito spin Hall inverso (ISHE), em que elétrons com polarizações opostas fluem em sentidos contrários originando uma corrente de carga  $\vec{J}_C$  na direção perpendicular a  $\vec{J}_S$ .



Fonte: o autor (2022).

Em seu trabalho [27], Saitoh verificou que a corrente de carga gerada era proporcional ao produto vetorial da corrente de spin com o vetor polarização da corrente

de spin  $\hat{\sigma}$ , isto é:

$$\vec{J}_C \propto \vec{J}_S \times \hat{\sigma}. \quad (2.12)$$

Posteriormente, em 2008, Saburo Takahashi e Sadamichi Maekawa deduziram [28] as relações entre as correntes transversal de spin e de carga no SHE (Equação 2.13) e no ISHE (Equação 2.14), considerando os efeitos da interação spin-órbita e os espalhamentos que ocorrem no transporte da carga em metais não magnéticos. Com isso verificou-se não só que as expressões são muito semelhantes como também determinou-se as constantes de proporcionalidade em função do material. O produto vetorial da equação 2.13 mostra que a corrente de carga  $\vec{J}_C$  induz uma corrente de spin na direção perpendicular a  $\vec{J}_S^H$ , como ocorre no efeito SHE (Figura 3a). O recíproco é válido para equação 2.14 no efeito ISHE, em que  $\vec{J}_C^H$  produz  $\vec{J}_S$  (Figura 3b). As expressões que caracterizam o SHE e o ISHE são respectivamente dadas por

$$\vec{J}_S^H = \frac{2e}{\hbar} \theta_{SH} (\hat{\sigma} \times \vec{J}_C) \quad (2.13)$$

$$\vec{J}_C^H = \frac{2e}{\hbar} \theta_{SH} (\hat{\sigma} \times \vec{J}_S). \quad (2.14)$$

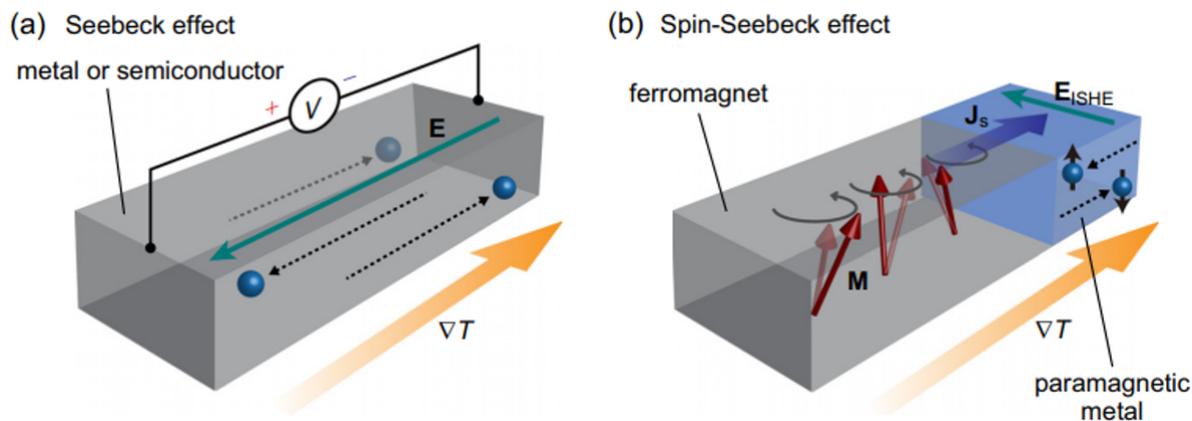
onde,  $\hbar$  é a constante de Planck reduzida e  $\theta_{SH}$  é o ângulo spin Hall, que é uma forma de quantificar a eficiência do processo de conversão de corrente spin-carga. O valor de  $|\theta_{SH}|$  é representado entre dois limites:  $0 \leq |\theta_{SH}| \leq 1$ , se nenhum dos portadores de carga for defletido lateralmente  $|\theta_{SH}| = 0$ , enquanto se todos forem defletidos  $|\theta_{SH}| = 1$ . Como o SOC cresce com o número atômico Z [29], muitos (mas não todos) metais pesados (por exemplo, Ta, W e Pt) têm grandes valores de  $\theta_{SH}$ . Na prática, com o efeito ISHE é possível obter informações de características do material, através de medidas de tensão feita por um nanovoltímetro, a qual pode ser transformada em corrente de carga se conhecida a resistência da amostra. Uma das formas mais comuns de produzir uma corrente de spin pura usada a ser convertida por ISHE em corrente de carga é através do bombeamento de spin (Spin Pumping), cuja excitação ocorre por varredura do campo magnético na frequência de ressonância ou por aplicação de um gradiente de temperatura, como será abordado no tópico seguinte.

### 2.3 EFEITOS SPIN SEEBECK (SSE)

O efeito Seebeck, descoberto na década de 1820, é essencialmente a geração de uma tensão elétrica por um gradiente de temperatura aplicado a um condutor ou semicondutor (figura 4a). Neste efeito, uma das extremidades do condutor é aquecida fazendo com que os elétrons desta região aumentem a energia cinética e se difundam

para a extremidade mais fria, produzindo uma diferença de potencial entre as extremidades. No efeito Seebeck inverso, mais conhecido como efeito Peltier, um fluxo de corrente elétrica produz uma diferença de temperatura entre as extremidades de um material condutor. O efeito spin Seebeck (SSE), descoberto em 2008 por Uchida *et al.* [30], também representa a geração de uma corrente de spin devido à aplicação de um gradiente de temperatura em um material magnético, esta corrente de spin pode ser injetada em um metal não magnético e transformada em corrente elétrica transversal, pelo ISHE (figura 4b). A aplicação de um gradiente térmico em metais ou isolantes magnéticos resulta em efeitos diferentes. Em metais FM, a aplicação de um  $\vec{\nabla}T$  gera uma tensão devido ao efeito Nernst anômalo (ANE), que pode se combinar com o ISHE devido ao SSE. Em isolantes magnéticos não existe ANE, e portanto são os materiais para se estudar o SSE. Após as observações de Uchida, vários trabalhos foram publicados [31–36], originando a área da caloritrônica de spin.

Figura 4 – (a) Uma ilustração esquemática do efeito Seebeck convencional. Quando um gradiente de temperatura  $\vec{\nabla}T$  é aplicado a um condutor, um campo elétrico  $\vec{E}$  (tensão elétrica  $V$ ) é gerado ao longo da direção  $\vec{\nabla}T$ . (b) Uma ilustração esquemática do SSE. Quando  $\vec{\nabla}T$  é aplicado a um ferromagneto, uma voltagem de spin é gerada através da dinâmica de magnetização ( $\vec{M}$ ), que bombeia uma corrente de spin  $\vec{J}_s$  em um metal paramagnético adjacente. No metal paramagnético, esta corrente de spin é convertida em um campo elétrico  $\vec{E}_{ISHE}$  devido ao ISHE.



Fonte: retirado de [37].

A detecção do SSE pode ser feita indiretamente, medindo-se a tensão ISHE que se estabelece em um metal não-magnético, colocado em contato com o material magnético. Os materiais magnéticos mais usados são, preferencialmente, os isolantes magnéticos (ferrimagnetos), ferromagnetos ou antiferromagnetos, ou magnéticos (tendo o cuidado de eliminar o ANE) [36, 38, 39]. Os materiais não-magnéticos mais usados para a detecção do SSE pela medida elétrica do ISHE, são aqueles com forte interação spin-órbita (Pt, Ta, W, etc.) ou sistema de gases de elétrons 2D.

Quando uma bicamada FM/HM é submetida a um gradiente de temperatura fora do plano ( $\vec{\nabla}_z T$ ), ela injeta uma corrente de spin perpendicular,  $\vec{J}_s \parallel \vec{\nabla}_z T$  do FM

para o HM, devido ao efeito spin Seebeck longitudinal (LSSE), que dá origem a um campo elétrico  $\vec{E}_{ISHE} \propto (\vec{J}_S \times \vec{\sigma})$  ao longo do plano do HM, onde  $\vec{\sigma} \parallel \vec{M}_{Py}$ . O efeito spin Seebeck pode ser: a) transversal (TSSE), se a corrente de spin injetada no NM for perpendicular a  $\vec{\nabla}T$ , ou b) longitudinal (LSSE), se a corrente injetada no NM for paralela a  $\vec{\nabla}T$ . O tipo SSE utilizado vai depender do arranjo experimental das camadas [31–35]. Neste trabalho nos limitaremos ao LSSE, por ser de maior interesse para as pesquisas científicas e suas aplicações.

Primordialmente, o efeito SSE foi interpretado por duas teorias distintas: a teoria de espalhamento, desenvolvida por Xiao *et al.* [40] e a teoria de resposta linear, usada por Adachi *et al.* [41]. Embora fossem diferente, ambas explicações convergiam para uma mesma equação, em que a corrente produzida  $\langle I_Z \rangle$  é proporcional a diferença entre temperatura dos mágnons no ferromagneto  $T_{FM}^m$  e a temperatura dos elétrons no metal normal  $T_{NM}$ , que recebe a injeção de  $\langle I_Z \rangle$

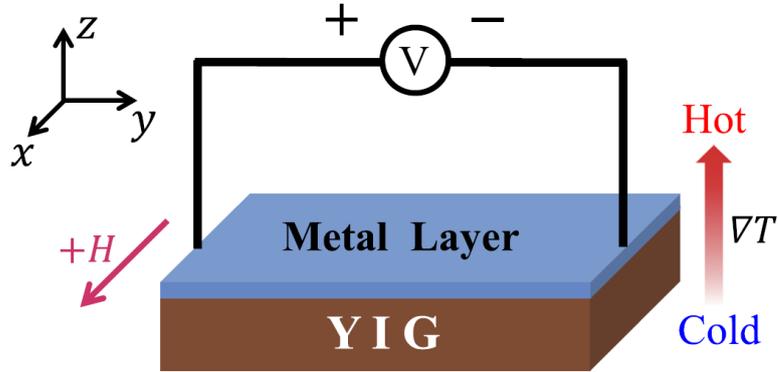
$$\langle I_Z \rangle \propto (T_{FM}^m - T_{NM}) \quad (2.15)$$

onde a proporcionalidade é corrigida por um parâmetro denominado por um dos autores de "coeficiente de spin Seebeck interfacial" e que depende de grandezas como razão giromagnética, magnetização de saturação, constante de Boltzmann e de um volume de coerência magnética. Contudo, os dados obtidos pelos autores eram discrepantes quando comparado com os resultados experimentais além de levarem a obtenção de parâmetros não-físicos. Inclusive, tal proposta é muito simplificada do ponto de vista físico por não depender das características físicas do material, como comprimento, largura, espessura, etc.

Uma explicação mais realística para o SSE foi proposta em 2014 por Rezende *et al.* [42, 43]. A principal diferença em relação as propostas anteriores, é que no modelo de Rezende *et al.*, considera-se que a corrente de spin gerada pelo gradiente de temperatura é originada por um fluxo de mágnons presentes no volume do material e não na interface com o NM, como era sugerido. Assim, ao incidir na interface a corrente de spin penetra no NM e pode ser transformada em corrente de carga por meio do efeito ISHE. Usando a solução da equação de transporte de Boltzmann, os autores obtiveram uma expressão para a corrente de spin produzida no bulk de um isolante magnético (ou ferrimagneto - FI) por um fluxo de mágnons gerado por um gradiente de temperatura. Os cálculos realizados no trabalho em questão basearam-se na estatística de Bose-Einstein e isto foi fundamental para concordância com os resultados experimentais. Em seu trabalho, Rezende *et al.* se restringiu a configuração longitudinal (LSSE) onde foi utilizado o ferrimagneto (FI) YIG como protótipo para produção de corrente de spin de bulk. Desse modo, utilizando a bicamada FI/NM, foi aplicado um gradiente de temperatura  $\vec{\nabla}T$  perpendicular ao plano do filme e um campo

magnético  $\vec{H}$  paralelo à interface (Figura 5).

Figura 5 – Esquema da técnica de LSSE.



Fonte: retirado de [1].

Neste caso, a corrente de spin acompanha o gradiente térmico na direção  $y$  e a densidade de corrente de spin do bulk na interface é dada por [43]:

$$\vec{J}_S^z = -C_S \rho g_{eff}^{\uparrow\downarrow} \vec{\nabla} T \quad (2.16)$$

em que  $C_S$  é um coeficiente que depende das características do material, da temperatura e da magnitude do campo magnético aplicado e o  $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$ , denominado condutância mista de spin efetiva, é um fator que caracteriza a eficiência do transporte de spin em interfaces do tipo FM/HM, ou FI/HM neste caso, e depende da condutância de spin, da resistividade e do comprimento de difusão de spin da camada do HM. O índice  $\rho$  representa o efeito da espessura finita da camada do FI sendo expresso por [43]:

$$\rho = \frac{\cosh(t_{FI}/l_m) - 1}{\sinh(t_{FI}/l_m)} \quad (2.17)$$

onde  $t_{FI}$  e  $l_m$  é a espessura do FI e o comprimento de difusão de mágnons, respectivamente. Ainda segundo Rezende *et al.*, a corrente de spin é transmitida por mágnons, com vetor de onda  $\vec{k}$  e energia  $\hbar\omega_k$ , em que  $\omega_k$  é a frequência angular da onda de spin.

Além do efeito spin Seebeck, dois outros efeitos podem ser gerados ao aplicar um gradiente de temperatura o que requer atenção durante a análise dos resultados. São estes: o efeito Nernst ordinário (ONE) e o efeito Nernst anômalo (ANE). No ONE, que é a contrapartida do efeito Hall comum, um campo elétrico transversal ( $\vec{E}_{ONE}$ ) é gerado perpendicular ao gradiente de temperatura ( $\vec{\nabla}T$ ) e ao campo magnético aplicado ( $\vec{B}$ ), onde  $\vec{E}_{ONE} \propto \vec{\nabla}T \times \vec{B}$ . Enquanto no ANE, que é a contrapartida do efeito Hall anômalo, um campo elétrico transversal ( $\vec{E}_{ANE}$ ) é gerado perpendicular tanto a  $\vec{\nabla}T$  quanto à magnetização ( $\vec{M}$ ), onde  $\vec{E}_{ANE} \propto \vec{\nabla}T \times \vec{M}$ . Ao contrário do ONE, o ANE aumenta rapidamente em campo magnético baixo. Note que,  $\vec{E}_{ISHE}$  é

criado apenas no HM,  $\vec{E}_{ONE}$  é criado tanto no FM quanto no HM, e  $\vec{E}_{ANE}$  é apenas no FM (metal). Além disso, em qualquer experimento de SP acionado termicamente em metais ou semicondutores, o efeito Seebeck comum (OSE) deve ser levado em consideração. O OSE dá origem a uma força eletromotriz paralela a  $\vec{\nabla}T$ , que não depende do campo magnético aplicado e pode ser significativa em materiais com grande coeficiente Seebeck, como Bi. Todos esses efeitos se sobrepõem, dificultando a análise do sinal resultante em FM/HM (bicamadas metálicas) sob um gradiente de temperatura [44].

A maioria destas dificuldades pode ser eliminada com o emprego de um isolante ferrimagnético (FI) como injetor de corrente de spin [45, 46]. Em estruturas de bicamada YIG/HM, por exemplo, as contribuições de ANE são excluídas do YIG ( $Y_3Fe_5O_{12}$ ), o que significa que as únicas contribuições para a tensão podem ser ONE, ISHE e OSE geradas na camada HM. Como apresentaremos no Capítulo 5, as bicamadas YIG/Bi são sistemas muito peculiares nos quais a conversão spin-carga é desprezível e existe apenas uma contribuição espúria devido ao OSE.

## 2.4 RESSONÂNCIA FERROMAGNÉTICA (FMR)

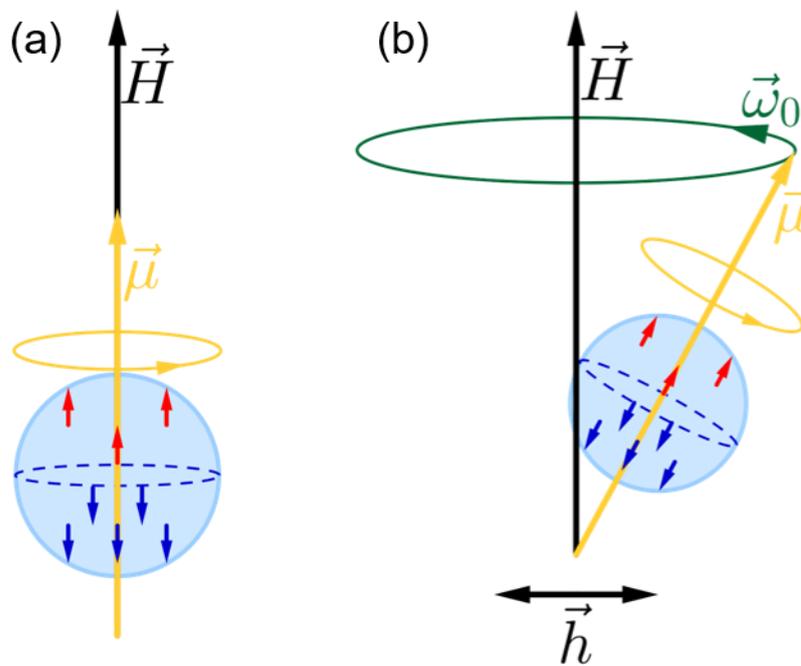
### 2.4.1 Dinâmica da magnetização

O processo de ressonância da magnetização em um material ferromagnético pode ser entendido como um movimento coerente dos momentos magnéticos atômicos em torno de um campo magnético externo e sua interpretação pode ser entendida de forma semiclássica. Os ferromagnetos possuem uma magnetização espontânea originada da orientação dos momentos magnéticos, que são produzidos, principalmente, pela forma em que os spins dos elétrons são arranjados, que na presença de um campo magnético podem aparecer nos estados *up* ou *down*. Em um material com a camada eletrônica completa o momento dipolo total  $\vec{\mu}$  é nulo, pois para cada elétron com spin *up* haverá um correspondente com spin *down*. Mas quando esta camada não é totalmente preenchida, como é o caso dos ferromagnetos, os spins ocupam a camada primeiro em um mesmo estado, *up* ou *down*, para em seguida ocupar com o estado oposto seguindo a regra de Hund e como não há elétrons suficientes para completar a camada (i.e. há elétrons livres) haverá mais spins em um estado do que no outro, o que produz um momento dipolo total  $\vec{\mu} \neq 0$ .

Quando submetido a um campo magnético, os momentos dipolos de um ferromagneto se orientam na direção de equilíbrio, gerando um momento dipolo líquido  $\vec{\mu}$  paralelo a  $\vec{H}$  e antiparalelo ao momento angular de spin  $\vec{S}$  (Figura 6a). Caso sofra um deslocamento causado por uma perturbação externa  $\vec{h}$ , como a de um campo de micro-ondas por exemplo, o momento magnético  $\vec{\mu}$  iniciará um movimento de precessão em torno da direção do campo aplicado com frequência angular  $\vec{\omega}_0$ , como mostra a

Figura 6b.

Figura 6 – (a) Os spins descompensados de uma nuvem de elétrons dão origem a um momento dipolo líquido  $\vec{\mu}$  que se alinha ao campo magnético externo  $\vec{H}$ . (b) Quando perturbado por um campo de micro-ondas  $\vec{h}$  o momento dipolo  $\vec{\mu}$  precessiona com frequência angular  $\vec{\omega}_0$  em torno do campo  $\vec{H}$ .



Fonte: o autor (2022).

O deslocamento resultante da perturbação pode ser representado pelo torque que o campo magnético  $\vec{H}$  exerce sobre  $\vec{\mu}$ , ou seja:

$$\vec{\tau} = \vec{\mu} \times \mu_0 \vec{H}. \quad (2.18)$$

A Equação 2.18 está expressa no sistema gaussiano de unidades. Sendo o torque proporcional à derivada temporal do momento angular total, desconsiderando o momento angular orbital atribuído ao elétron, temos que o momento angular associado é igual a  $\hbar \vec{S}$ , assim:

$$\vec{\tau} = \frac{d\hbar \vec{S}}{dt}. \quad (2.19)$$

Uma vez que o o momento magnético  $\vec{\mu}$  está relacionado ao momento angular por:

$$\vec{\mu} = -g\mu_B \vec{S} \quad (2.20)$$

em que  $g$  é o fator de Landé e  $\mu_B$  o magnetón de Bohr, a equação de movimento de  $\vec{S}$  em torno de um campo magnético estático, é obtida combinando as equações 2.18,

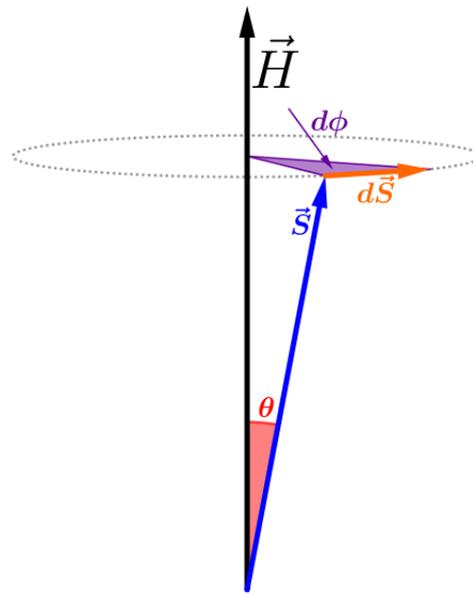
2.19 e 2.20 onde obtemos:

$$\frac{d\vec{S}}{dt} = -\gamma\vec{S} \times \vec{B} \quad (2.21)$$

onde a constante de proporcionalidade  $\gamma$  é chamada de razão giromagnética e é dada por:

$$\gamma = \frac{g\mu_B}{\hbar} \quad (2.22)$$

Figura 7 – (a) Representação geométrica da precessão do spin em torno do campo magnético  $\vec{H}$ .



Fonte: o autor (2022).

A frequência de precessão do spin em torno do campo  $\vec{B}$  é conhecida como frequência de Larmor ( $\omega_L$ ) e pode ser obtida analisando a geometria básica do movimento. Da Figura 7 é fácil ver que que  $d\vec{S} = |\vec{S}|\sin\theta d\phi$  então, da Equação 2.21, a frequência precessional pode ser dada por:

$$\omega = -\frac{d\phi}{dt} = -\left|\frac{d\phi}{d\vec{S}}\right| \cdot \left|\frac{d\vec{S}}{dt}\right| = \frac{1}{|\vec{S}|\sin\theta} \cdot (-\gamma|\vec{S}|H\sin\theta) \quad (2.23)$$

$$\therefore \omega_L = \gamma H$$

Este resultado também pode ser obtido através da mecânica quântica. Escrevendo a energia de Zeeman como:

$$E_{Zeeman} = -\vec{\mu} \cdot \vec{H}. \quad (2.24)$$

Definindo  $\vec{H}$  na direção  $\hat{z}$ , temos que a projeção de  $\vec{S}$  em  $\vec{H}$  permite que o produto escalar de 2.24 seja expresso por:

$$\vec{\mu} \cdot \vec{H} = g\mu_B S_Z H = g\mu_B m_s H. \quad (2.25)$$

em que  $m_s$  é o número quântico magnético de spin. Como os valores de  $m_s$  são discretos (múltiplos de  $\pm\hbar/2$ ), temos que a diferença de energia entre o estado fundamental e o primeiro estado excitado é igual a:

$$\Delta E = g\mu_B H \quad (2.26)$$

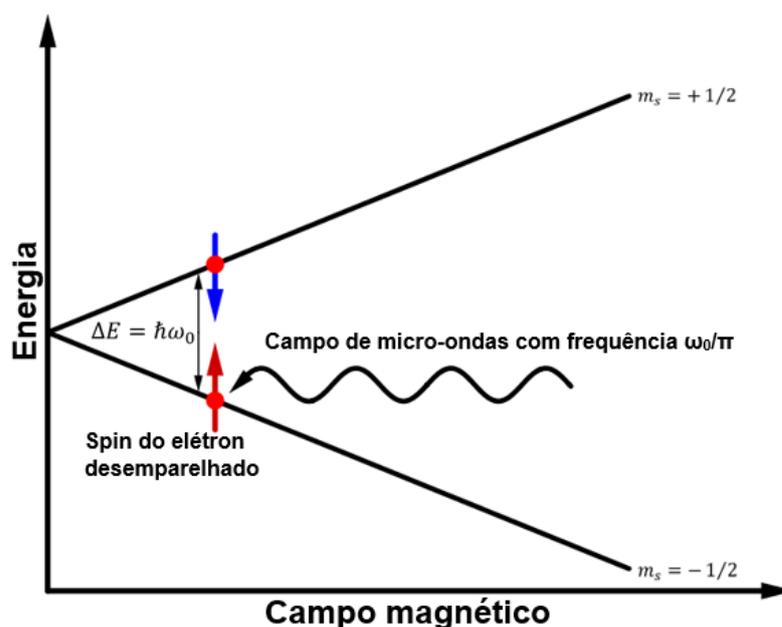
Supondo que esta transição seja causada por uma excitação de um campo de micro-ondas com frequência  $\omega/2\pi$ , então a energia da onda pode ser expressa por:

$$\Delta E = \hbar\omega \quad (2.27)$$

Esta energia é absorvida pelo elétron quando  $\omega \approx \omega_0$  (Figura 8), isto é, quando a frequência da onda perturbadora se aproxima da frequência de Larmor. Portanto combinando as equações 2.26 e 2.27 também concluímos que:

$$\omega_0 = \gamma H \quad (2.28)$$

Figura 8 – Níveis de energia na ressonância do spin do elétron.



Fonte: o autor (2022).

Para que seja possível realizar medidas no experimento de ressonância ferromagnética é necessário utilizar uma grandeza macroscópica característica do material. Como um material magnético é composto por um grande número de momentos magnéticos interagentes, considera-se um único vetor resultante denominado magnetização  $\vec{M}$ , definido como a soma de todos os momentos magnéticos por unidade de volume:

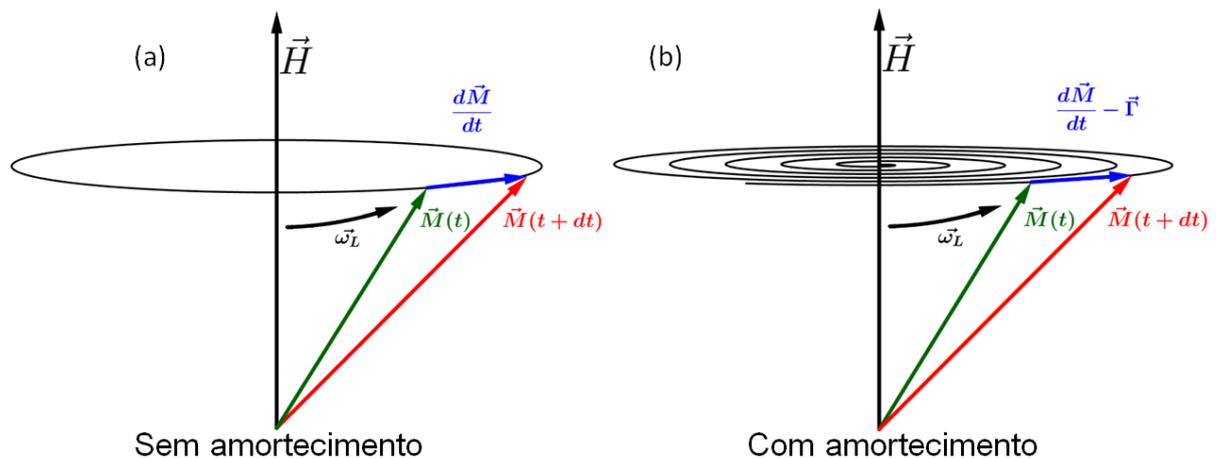
$$\vec{M} = \frac{1}{V} \sum_i \vec{\mu}_i$$

portanto a Equação, a equação 2.21 pode ser modificada para:

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = -\gamma \vec{M} \times \vec{H} \quad (2.29)$$

A Equação 2.29 descreve a dinâmica da precessão da magnetização em torno vetor campo magnético quando não há mecanismos de relaxação (Figura 9a). A solução dessa equação para um  $\vec{H} = H\hat{z}$  constante é formada por uma combinação de senos e cossenos e a frequência de ressonância, ocorre quando ela se aproxima da frequência de Larmor, i.e  $\omega_0 \approx \omega_L = \gamma \vec{H}$ . Para alguns materiais como o YIG, o valor para o fator de Landé é o valor para o elétron livre, isto é,  $g = 2$ . Neste caso, da Equação 2.22 temos que  $\gamma = 2\pi \times 2.8 \text{ GHz/kOe}$ , donde nota-se que a frequência de ressonância é de alguns gigahertz quando temos o campo de alguns kOe.

Figura 9 – Magnetização precessionando sob efeito de um campo magnético a) sem efeitos de perda e b) com efeitos de perda.



Fonte: o autor (2022)

Em um caso real, a oscilação gerada pelo movimento precessão do spin estará sujeita a fontes de amortecimento, que fazem com que a amplitude do movimento de  $\vec{M}$  em torno de  $\vec{H}$  reduza com o tempo até que  $\vec{M} \parallel \vec{H}$  (Figura 9b). Nesse cenário, é introduzido um termo de relaxação  $\vec{\Gamma}$  na Equação 2.29 que é responsável por deslocar

a magnetização  $\vec{M}$  para direção de equilíbrio [47]. Existem duas equações que são frequentemente utilizadas para estudar fenômenos de relaxação no sistema: a equação de Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG), em que o termo de torque não representa apenas a relaxação magnética como também pode contribuir para a precessão da magnetização, e a equação de Bloch-Bloembergen, onde são considerados diferentes os tempos de relaxação longitudinal e transversal de  $\vec{M}$  em relação a direção de aplicação de  $\vec{H}$ . Esta última é válida para ressonâncias nucleares e para materiais magnéticos isolantes (como o YIG) com acoplamento spin-órbita pequeno enquanto que a primeira (LLG) é comumente usada apenas para o estudo de materiais magnéticos metálicos.

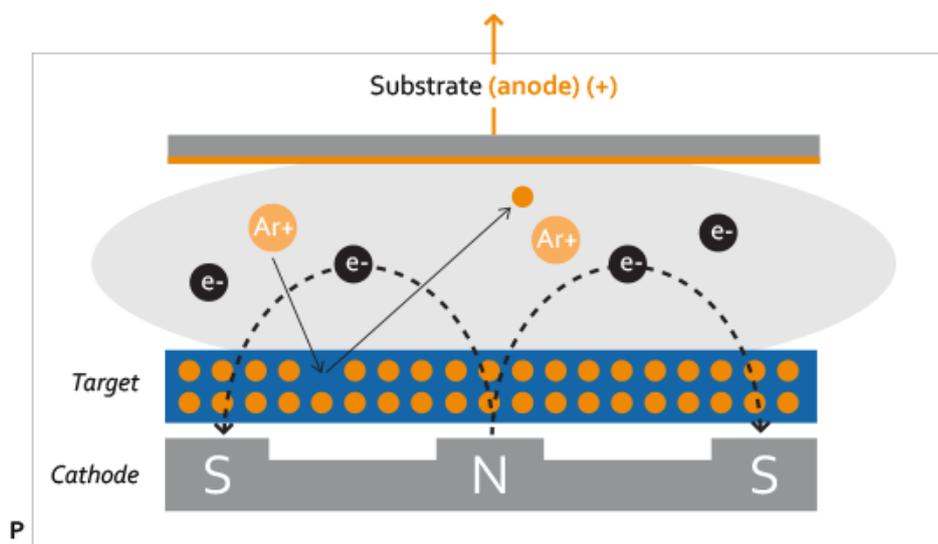
### 3 TÉCNICAS EXPERIMENTAIS

Neste capítulo serão apresentadas as principais técnicas experimentais usadas nesta dissertação. Na Seção 3.1 é mostrada a técnica de deposição por evaporação catódica (sputtering), usada para fabricação das heteroestruturas, em seguida (Seção 3.2) é apresentado o experimento de ressonância ferromagnética (FMR) e seus princípios básicos, dando continuidade ao discutido na Seção e por fim (Seção 3.2) descreve-se o efeito spin pumping, principal técnica utilizada no desenvolvimento dessa dissertação.

#### 3.1 DEPOSIÇÃO POR EVAPORAÇÃO CATÓDICA (SPUTTERING)

Descoberta por Groove em 1952 [48], a técnica de deposição por evaporação catódica, ou sputtering, é a mais utilizada na fabricação de filmes finos e na indústria de semicondutores. Neste processo, os átomos da superfície de um material alvo, o qual se deseja depositar, são arrancados devido à colisão de íons positivamente carregados, sendo depositados em um substrato e produzindo filmes da ordem de nanômetros a depender do material.

Figura 10 – Esquema de funcionamento do sputtering.



Fonte: retirado de [49].

Todo processo acontece em uma câmara conectada a um sistema de bombas de alto vácuo que inicialmente produz uma atmosfera com pressão da ordem de  $10^{-7}$  Torr (*pressão de base*), de forma a garantir que resíduos indesejáveis sejam removidos. Para reduzir a umidade e aumentar o vácuo, a câmara é aquecida a  $100\text{ }^{\circ}\text{C}$  enquanto faz o vácuo, caso isso não altere as propriedades do material objeto de investigação. Após

obter a pressão de base desejada, é injetado um gás nobre de alta pureza, usualmente Argônio (Ar), elevando a pressão para  $10^{-3}$  Torr (*pressão de trabalho*). Os íons de Argônio ( $\text{Ar}^+$ ) são acelerados contra superfície do material alvo ao aplicar uma tensão entre 400V e 500V produzida por uma fonte de tensão conectada aos eletrodos que pode ser de corrente contínua (DC), geralmente utilizada para deposição de filmes metálicos, ou de radiofrequência (RF), para deposição de isolantes (Figura 10). Este processo pode ser visualmente observado através da formação de um plasma roxo (no caso do Argônio) garantindo que os átomos estão sendo direcionados para o ânodo.

Para garantir que a superfície do alvo esteja livre de contaminações (oxidação, umidade, orgânicos, etc.) realiza-se um pré-sputtering por alguns minutos. Nesse processo o substrato fica protegido por um obturador. Para depositar o filme definitivo sobre o substrato, abre-se o obturador e a deposição é realizada no tempo apropriado para se obter a espessura desejada. O cálculo da espessura do filme é baseado nas taxas de deposição do material que foram medidas com o uso de perfilômetro ou microscopia eletrônica de varredura (MEV), no caso de isolantes. Dessa forma, é determinado o tempo que o obturador ficará aberto, permitindo que o material alvo alcance o substrato, até a conclusão da fabricação da camada com a espessura desejada (*sputtering*).

A fim de manter o controle das deposições, são registrados alguns parâmetros relevantes como taxa de deposição, pressão de base e de trabalho, tensão, corrente e potência do plasma, fluxo de Argônio, dentre outros. O equipamento utilizado no NUMAG para deposição por sputtering dispõe de 9 posições para os substratos que tipicamente possuem 2mm x 1,5mm permitindo que vários ocupem uma mesma posição, caso se deseje fabricar filmes finos e multicamadas de um mesmo material. Além disso pode ser ajustado uma angulação polar entre o prato e o substrato, isto é interessante pois a deposição por sputtering oblíquo pode modificar algumas características do material [50]. O sistema também possui 3 magnétrons DC e um RF, que permite que sejam depositados até quatro materiais por vez.

### 3.2 EXPERIMENTO DE RESSONÂNCIA FERROMAGNÉTICA

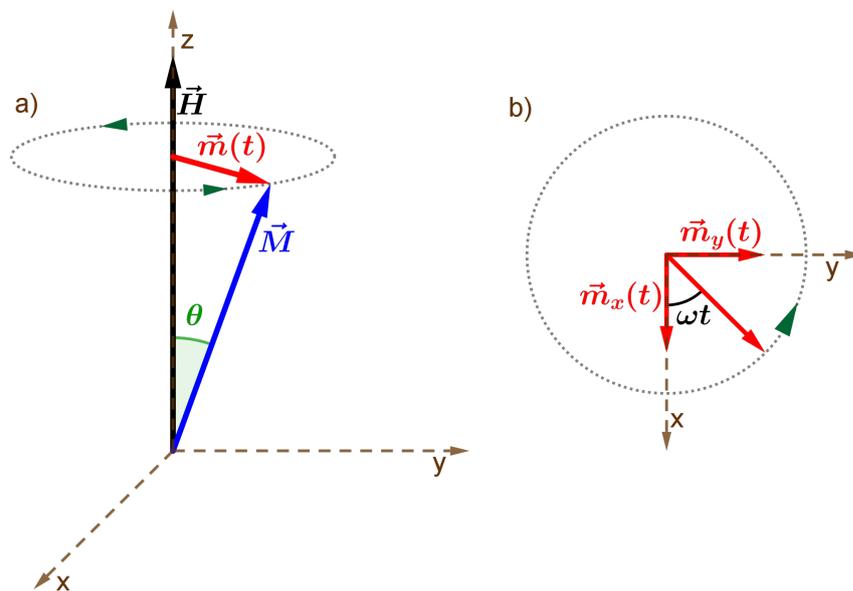
O experimento de ressonância ferromagnética (FMR) é a técnica mais usual para a investigação de propriedades magnéticas fundamentais em filmes finos como magnetização, anisotropias e processos de relaxação [51]. As medidas experimentais das linhas de absorção em Fe, Ni e Co foram realizadas pela primeira vez por Griffiths [52], serviram de base para Charles Kittel e Van Vleck generalizar a teoria da absorção na ressonância ferromagnética, que possibilita a obtenção de parâmetros físicos importantes, tais como: magnetização de saturação, anisotropias e relaxação magnética [53–55]. Desde então, a técnica de ressonância ferromagnética tornou-se

uma das mais importantes ferramentas para investigação de materiais ferromagnéticos e ferrimagnéticos.

### 3.2.1 Tensor susceptibilidade magnética

O experimento de FMR consiste, basicamente, em 1) aplicar simultaneamente um campo magnético DC ( $\vec{H}_0$ ) e um campo de rf ( $\vec{h}(t)$ ), perpendiculares entre si, numa amostra ferromagnética e 2) observar as linhas de absorção ressonantes devido ao movimento de precessão dos spins eletrônicos na amostra. Quando a frequência de radiação está próxima da frequência do modo uniforme, o campo de micro-ondas induz um movimento de precessão nos spins e a amostra absorve a energia da radiação incidente. Como observado nos trabalhos pioneiros de Griffiths [52] e Kittel [53], as frequências de FMR em metais ferromagnéticos, são muito maiores do que a frequência de precessão de Larmor para um spin isolado.

Figura 11 – a) Ilustração do vetor magnetização de um meio macroscópico sob efeito de um campo externo  $\vec{H}$ . A magnetização  $\vec{M}$  precessiona em torno do campo  $\vec{H}$  formando um ângulo  $\theta$  com o eixo  $\hat{z}$ . b) A componente da magnetização transversal ao campo magnético e dependente do tempo é  $m(t) = m_x(t)\hat{x} + m_y(t)\hat{y}$ .



Fonte: o autor.

Considerando  $\vec{H}_0 \parallel \hat{z}$  e  $\vec{H}_0 \perp \vec{h}(t)$ , podemos escrever os campos magnéticos estático e de micro-ondas, respectivamente como:

$$\begin{aligned} \vec{H}_0 &= H_0 \hat{z} \\ \vec{h}(t) &= (h_x \hat{x} + h_y \hat{y}) e^{-i\omega t}, \end{aligned} \quad (3.1)$$

em que  $h_x, h_y \ll H_0$  visto que nos experimentos de FMR a intensidade do campo magnetostático supera ao do campo de micro-ondas em 3 ou 4 ordens de grandeza. Analogamente, podemos escrever as magnetizações como:

$$\begin{aligned}\vec{M} &= \vec{m}(t) + M_0 \hat{z} \\ \vec{m}(t) &= (m_x \hat{x} + m_y \hat{y}) e^{-i\omega t}\end{aligned}\tag{3.2}$$

em que  $m_x, m_y \ll M_0$ . Assim, combinando as expressões 3.1 e 3.2 com a equação de movimento (Equação 2.29), após linearizar as expressões obtemos:

$$\begin{aligned}i\omega m_x &= \gamma M_0 h_y - \gamma H_0 m_y \\ i\omega m_y &= -\gamma M_0 h_x + \gamma H_0 m_x\end{aligned}\tag{3.3}$$

Considerando que  $\vec{m}(t) = \overleftrightarrow{\chi} \vec{h}(t)$ , onde  $\overleftrightarrow{\chi}$  é o tensor susceptibilidade, cuja matriz é dada por:

$$\overleftrightarrow{\chi} = \begin{bmatrix} \chi_{xx} & \chi_{xy} \\ \chi_{yx} & \chi_{yy} \end{bmatrix}\tag{3.4}$$

é possível mostrar que as equações 3.3 e 3.4 são relacionadas por:

$$\begin{aligned}\chi_{xx} = \chi_{yy} &= \frac{\omega_m \omega_0}{\omega_0^2 - \omega^2} \\ \chi_{xy} = -\chi_{yx} &= \frac{i\omega_m \omega}{\omega_0^2 - \omega^2}\end{aligned}\tag{3.5}$$

em que  $\omega_0 = \gamma H_0$  e  $\omega_m = \gamma M_0$ . A ressonância do sistema ocorre quando  $\omega \cong \omega_0$  fazendo com que a amplitude de precessão de M aumente repentinamente e que parte da energia magnética seja dissipada na rede cristalina devido à interação spin-órbita nos átomos. A relaxação também pode ocorrer diretamente com a redistribuição de energia entre o modo uniforme e outros modos de ondas de spin. Esses processos ocorrem em materiais com interação spin-órbita pequena como o YIG. Isto resulta em um amortecimento, ou relaxação do movimento da magnetização, que tende a restaurar a magnetização para posição de equilíbrio, como mostrado na Figura 9b. Dessa forma, fenomenologicamente, é introduzido um termo de relaxação na equação de Landau-Lisfitz modificando-a para equação de Landau-Lisfitz-Gilbert ou equação de Bloch-Bloembergen, como comentado no fim do capítulo anterior. Com  $\omega_0 \rightarrow \omega_0 - i\Gamma/2$ ,

onde  $\Gamma$  é a taxa de relaxação, os elementos do tensor de susceptibilidade modificado podem ser escritos como:

$$\begin{aligned}\chi_{xx} = \chi_{yy} &= \frac{\omega_m \omega_0}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega_0} \\ \chi_{xy} = -\chi_{yx} &= \frac{i\omega_m \omega}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega_0}\end{aligned}\quad (3.6)$$

### 3.2.2 Potência absorvida e sinal detectado no FMR

Assumindo que o campo de micro-ondas na amostra tenha apenas a componente  $h_x$ , é possível mostrar que a potência absorvida é dada por [47]:

$$P(\omega) = \frac{1}{2}\omega\chi''_{xx}h_x^2, \quad (3.7)$$

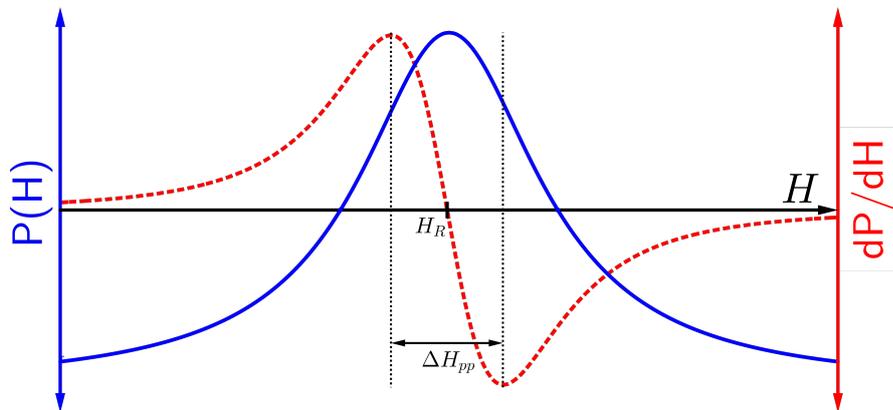
em que  $\chi''_{xx}$  é a parte imaginária de  $\chi_{xx}$  em 3.6. A curva de absorção tem o formato de uma lorentziana (curva azul na Figura 12) com pico em  $\omega = \omega_0$ , i.e. a ressonância ocorre quando o campo magnetostático se aproxima do campo de ressonância  $H_R$  da amostra. Como a absorção das ondas de micro-ondas em filmes finos é muito pequena, comparando com o obtido em amostras mais espessas, faz-se necessário o emprego de técnicas de processamento de sinais de baixa amplitude. Logo, é comum a utilização de um amplificador *Lock-in* para detecção do sinal. Nesse caso, aplica-se uma modulação no campo magnético estático  $H_0$  com uma frequência senoidal bem definida, que permite que apenas o sinal absorvido, que é proporcional a frequência de modulação, seja filtrado e amplificado. No *Lock-in*, o sinal é medido como a derivada da potência absorvida em relação ao campo magnetostático que é proporcional à derivada da parte imaginária de  $\chi_{xx}$ , ou seja  $dP/dH \propto d\chi''_{xx}/dH$ . Portanto, a curva exibida durante o processo de ressonância é similar ao da curva em vermelho na Figura 12.

A modulação aplicada no campo magnetostático, que serve de referência em frequência e fase para a detecção *Lock-in*, consiste na aplicação de um campo magnético oscilante de baixa intensidade  $h_m$  e baixa frequência  $\omega_{mod}$ , isto é  $h_m \ll H_0$  e  $\omega_{mod} \ll \omega$ . Nesse caso, o campo magnético efetivo  $\vec{H}$  aplicado na direção  $\hat{z}$  é dado por:

$$\vec{H} = [H_0 + h_m \cos(\omega_{mod})]\hat{z} \quad (3.8)$$

Com a aplicação da modulação, a tensão medida no detector  $V(H)$ , que é proporcional à potência absorvida pela amostra, passa a ser dependente do tempo permitindo que o *Lock-in* filtre apenas os sinais de  $V(H)$  com frequências específicas,

Figura 12 – Curva lorentziana correspondente à potência absorvida no FMR e sua derivada, como é medida pelo *lock-in*.



Fonte: o autor (2022).

são elas  $\omega_m$  e  $2\omega_m$ . Desse modo, a expressão para o sinal obtido pode ser encontrada com a expansão de  $V(H)$  em série de Taylor para  $H$  em torno de  $H_0$ :

$$V(H) = V(H_0) + \frac{dV(H)}{dH} \Big|_{H_0} (H - H_0) + \frac{1}{2} \frac{d^2V(H)}{dH^2} \Big|_{H_0} (H - H_0)^2 + \dots \quad (3.9)$$

$$V(H) \approx V(H_0) + \frac{dV(H)}{dH} \Big|_{H_0} h_m \cos(\omega_m t) + \frac{1}{2} \frac{d^2V(H)}{dH^2} \Big|_{H_0} [h_m \cos(\omega_m t)]^2$$

escolhendo apenas o primeiro harmônico na detecção do *Lock-in* temos:

$$V(H) = h_m \frac{dV(H)}{dH} \Big|_{H_0} \propto h_m \frac{d}{dH} \langle P \rangle \Big|_{H_0} = -h_m \omega h^2 \frac{d}{dH} \langle \chi''(H) \rangle \Big|_{H_0}$$

Portanto, sendo  $V(H) \propto dP/dH$ , a tensão medida no detector é dada por:

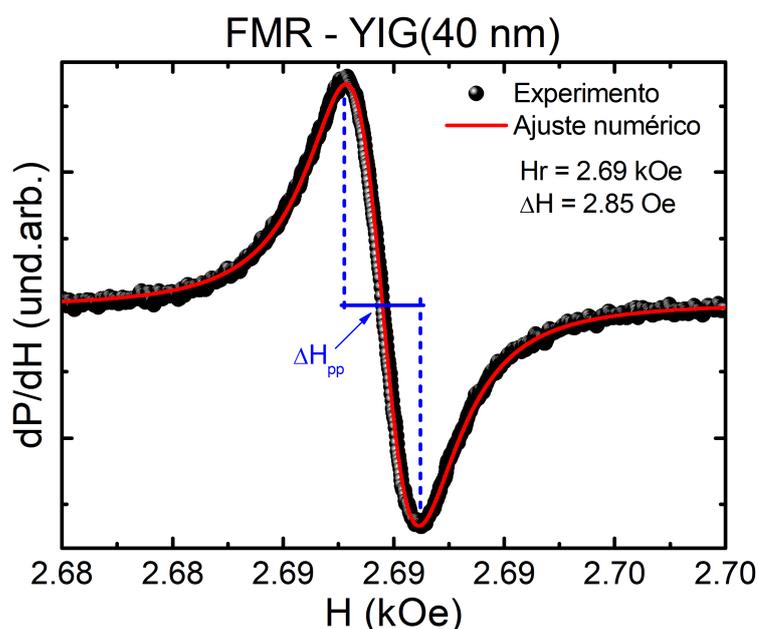
$$V(H) = h_m h^2 \omega M_0 \left[ \frac{(H_0 - H_R) \Delta H}{[(\Delta H)^2 + (H_0 - H_R)^2]^2} \right] \quad (3.10)$$

Da Equação 3.10 é possível extrair os valores experimentais do campo de ressonância  $H_R$  e da largura de linha do material. O valor da largura linha medido experimentalmente ( $\Delta H_{pp}$ ) corresponde a distância pico-a-pico do sinal de fmr medido pelo lock-in (Figura 12) e se relaciona com o  $\Delta H$  da expressão 3.10 por:

$$\Delta H_{pp} = \frac{2}{\sqrt{3}} \Delta H \quad (3.11)$$

Os valores de  $H_R$  e  $\Delta H_{pp}$  obtidos por meio do ajuste numérico da Equação 3.10 às curvas experimentais, como o exemplificado na medida de FMR em um filme de YIG na Figura 13, são de grande importância na investigação de fenômenos envolvendo correntes de spin, pois é através deles que são coletadas informações sobre campos de anisotropias, interação entre camadas, efeitos de interface e processos de relaxação da magnetização.

Figura 13 – Varredura de campo FMR em YIG(40 nm) em função do campo  $H$ . As distâncias entre os dois picos corresponde a largura de linha  $\Delta H$  do YIG.



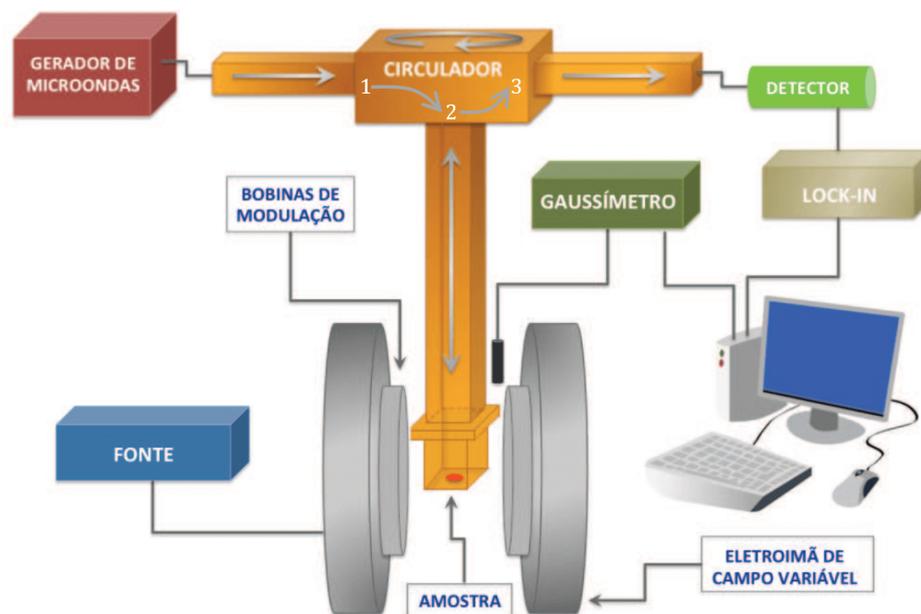
Fonte: o autor (2022).

### 3.2.3 Montagem do experimento de FMR

A Figura 14 mostra um desenho esquemático do espectrômetro de FMR usado nas investigações deste trabalho. A radiação emitida pelo gerador de micro-ondas com frequência entre 8 e 12 GHz segue para um circulador e é direcionada para uma cavidade ressonante, onde a amostra está localizada. Esta cavidade, cuja frequência de ressonância na banda X (8 a 12 GHz) de micro-ondas transmitida, tem sua reflexão alterada quando a amostra absorve a energia eletromagnética incidente. Após a absorção, a radiação refletida pela cavidade ressonante volta para o circulador e segue para o diodo detector, onde a forma da absorção da amostra é medida, enviada ao *Lock-in* e visualizada em tempo real no monitor. O eletroímã que gera o campo magnético DC é alimentado por uma fonte de corrente de alta precisão, podendo atingir campos da ordem de 9kOe. A modulação do campo DC é obtida por um par de bobinas, na configuração Helmholtz, com frequência de 1,2 kHz e amplitude da ordem de 1 Oe. O

valor do campo DC é medido por meio de um gaussímetro cuja saída está conectada a um computador via interface GPIB.

Figura 14 – Diagrama da montagem do espectrômetro de FMR. A amostra fica situada no fundo da cavidade, representada na montagem pelo ponto vermelho.



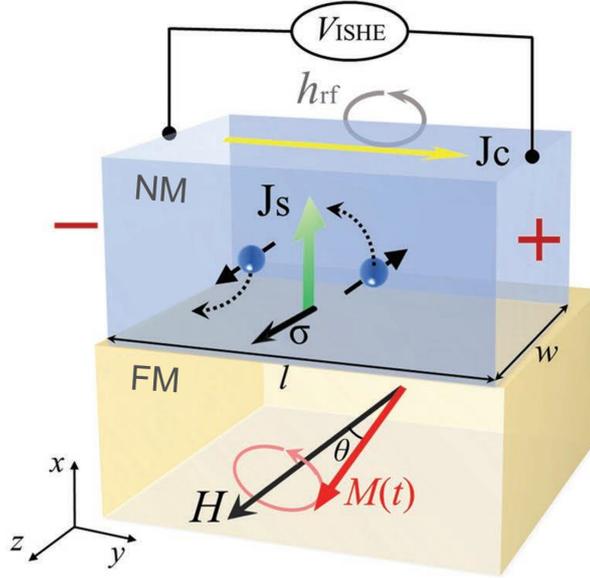
Fonte: adaptado de [56].

Neste trabalho, foi usada uma cavidade ressonante retangular com um fator de qualidade próximo de 2000 e frequência de ressonância de 9.4 GHz operando no modo TE<sub>102</sub>. Para que os campos DC e de rf fossem aplicados no plano da amostra e perpendiculares entre si, a superfície contendo a amostra foi inserida no fundo da cavidade através de um orifício de 5mm. Nessa região, o campo magnético de rf incidente é máximo e pode ser considerado uniforme ao longo da heteroestrutura investigada. Por outro lado, o campo elétrico de rf é nulo, o que é importante para evitar efeitos de indução elétrica nas medidas de tensão de spin pumping.

### 3.3 EFEITO SPIN PUMPING (SP)

Proposto em 2002 por Tserkovnyak, Brataas e Bauer [57], o efeito spin pumping ocorre quando o movimento de precessão (gerado pelo torque exercido pelo campo externo  $\vec{h}_{rf}$ ) da magnetização de um material ferromagnético (FM), por meio de transferência do momento angular, injeta uma corrente pura de spin  $\vec{J}_S$  em um metal normal (NM) adjacente. A corrente de spin pode ser convertida em corrente de carga transversal  $\vec{J}_C$  mediante o efeito ISHE gerando uma diferença de potencial  $V_{ISHE}$ , como mostra a Figura 15. Esse processo de transferência de momento angular resulta em uma acumulação de spins na interface FM/NM que aumenta a relaxação da magnetização do FM.

Figura 15 – Esquema ilustrando o processo de spin pumping e ISHE em bicamadas FM/NM.  $V_{ISHE}$ ,  $\vec{J}_s$ ,  $\vec{\sigma}$  e  $\vec{J}_c$  denotam a tensão do sinal ISHE, direção espacial da corrente de spin, vetor de polarização de spin e direção da corrente de carga, respectivamente.



Fonte: adaptado de [58].

O formalismo matemático para a corrente  $\vec{I}_s^{pump}$  injetada no NM pode ser descrito através da teoria quântica de espalhamento dependente do spin e do tempo, onde [59]:

$$\vec{I}_s^{pump} = \frac{\hbar}{4\pi} \left( A_r \hat{m} \times \frac{d\hat{m}}{dt} - A_i \frac{d\hat{m}}{dt} \right). \quad (3.12)$$

em que  $\vec{I}_s^{pump}$  tem dimensão de momento angular/(área x tempo),  $\hat{m} = \vec{M}(t)/M_0$  é o vetor unitário na direção da magnetização e  $A = A_r$  e  $A_i$  são os parâmetros de espalhamento da interface, explicitados por [57]:

$$A_r = \frac{1}{2} \sum_{m,n} \left( \left| r_{mn}^{\uparrow} - r_{mn}^{\downarrow} \right|^2 + \left| t_{mn}^{\uparrow} - t_{mn}^{\downarrow} \right|^2 \right), \quad (3.13)$$

$$A_i = \text{Im} \left\{ \sum_{m,n} \left( r_{mn}^{\uparrow} (r_{mn}^{\downarrow})^* + t_{mn}^{\uparrow} (t_{mn}^{\downarrow})^* \right) \right\}$$

em que  $r_{mn}^{\uparrow}$  ( $r_{mn}^{\downarrow}$ ) e  $t_{mn}^{\uparrow}$  ( $t_{mn}^{\downarrow}$ ) são respectivamente os coeficientes de reflexão e transmissão para elétrons com spin *up* (spin *down*) para dentro do NM e os sub-índices  $m$  e  $n$  caracterizam os modos transversais da energia de Fermi do filme metálico. A relação dos coeficientes de 3.13 com o coeficiente de spin pumping  $A$  para filmes

ferromagnéticos pode ser dada por [60]:

$$A = A_r + iA_i = g^{\uparrow\downarrow} - t^{\uparrow\downarrow} = \sum_{m,n} \left( \delta_{mn} - r_{mn}^{\uparrow} \left( r_{mn}^{\downarrow} \right)^* \right) - \sum_{m,n} t_{mn}^{\uparrow} \left( t_{mn}^{\downarrow} \right)^* \quad (3.14)$$

em que  $g^{\uparrow\downarrow}$  é a condutância mista de spin e  $t^{\uparrow\downarrow}$  é o coeficiente de transmissão. Para o caso em que a espessura do filme ferromagnético é maior que o comprimento de coerência do spin  $\lambda_{spin} = \pi/(k_{\uparrow} - k_{\downarrow})$  (de alguns Å para metais de transição como Co, Fe e Ni [60]), onde  $k_{\uparrow}$  ( $k_{\downarrow}$ ) é igual ao comprimento de onda de fermi para elétrons com spin *up* (*down*),  $t^{\uparrow\downarrow}$  é nulo e a corrente de spin pode ser escrita como [61]:

$$\vec{I}_s^{pump} = \frac{\hbar}{4\pi} g_r^{\uparrow\downarrow} \left( \hat{m} \times \frac{d\hat{m}}{dt} \right) = p \frac{\hbar \omega_{rf}}{4\pi} g_r^{\uparrow\downarrow} \left( \frac{h_{rf}}{\Delta H} \right)^2 L(H - H_R) \quad (3.15)$$

em que  $g_r^{\uparrow\downarrow}$  é a condutância mista efetiva (parte real de  $g^{\uparrow\downarrow}$ ),  $p$  é o fator de elipticidade da precessão da magnetização,  $h_{rf}$  e  $\omega_{rf}$  é a intensidade e a frequência do campo de micro-ondas respectivamente,  $\Delta H$  é a largura de linha do FM e  $L(H - H_R)$  é a curva lorentziana referente à forma de absorção de micro-ondas durante o processo de FMR. Vale salientar que  $g_r^{\uparrow\downarrow}$  possui dimensão de inverso de área,  $\hat{m} = \vec{M}/M_0$  é adimensional e  $\hbar$  possui dimensão de momento angular, portanto a Equação 3.15 tem unidade de torque/área.

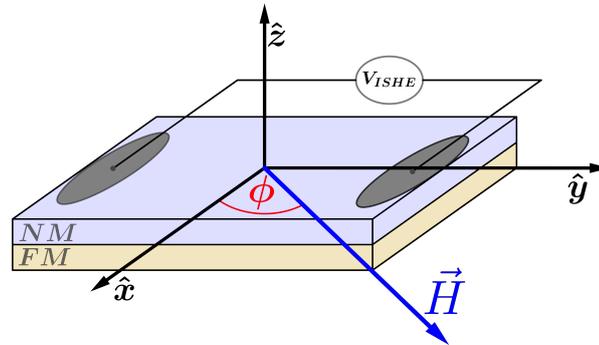
Em uma situação ideal, toda corrente bombeada para uma camada de um NM seria convertida em corrente de carga por meio do ISHE, supondo que o NM seja um bom absorvedor de spins. Entretanto, em um contexto real, parte da corrente bombeada  $\vec{I}_S^{pump}$  é refletida ( $\vec{I}_S^{ref}$ ) e volta para o FM. Nesse caso, a corrente transmitida efetiva  $\vec{I}_S$  é dada pela diferença  $\vec{I}_S = \vec{I}_S^{pump} - \vec{I}_S^{ref}$  sendo detectada através do ISHE por [59, 62]:

$$I_{ISHE} = \frac{V_{ISHE}}{R_{NM}} = \theta_{SH} \frac{e\omega p}{2\pi} w \frac{\lambda_{SD}}{t_{NM}} \left( \frac{h_{rf}}{\Delta H} \right)^2 \tanh \left( \frac{t_{NM}}{2\lambda_{SD}} \right) L(H - H_R) \cos(\phi) \quad (3.16)$$

em que  $e$  é a carga do elétron,  $\theta_{SH}$  é o ângulo spin Hall,  $\lambda_{SD}$  é o comprimento de difusão do spin,  $t_{NM}$  é a espessura do NM,  $w$  é a largura do filme,  $\omega$  é a frequência de RF que gera a ressonância e  $\cos(\phi)$  (Figura 16) é a dependência angular da direção de medida da corrente de carga com relação ao vetor  $\vec{J}_s \times \hat{\sigma}$  do efeito ISHE (Equação 2.14). A Equação 3.16 relaciona a corrente  $I_{ISHE}$  medida experimental com  $g_r^{\uparrow\downarrow}$  e  $\theta_{SH}$  que representam a transferência de momento angular de spin e a eficiência do processo de conversão spin-carga na interface FM/NM, respectivamente. Entre os NM mais utilizados em experimentos de spin-pumping se destacam os seguintes metais pesados: Platina (Pt), Tântalo (Ta) e Tungstênio (W), por possuírem ângulos spin Hall

de grande magnitude (da ordem de 0.085 para Pt e de -0.36 para o W) e por serem bons absorvedores de spin.

Figura 16 – Esquema da configuração utilizada para medida da tensão DC produzida durante o processo de spin pumping.

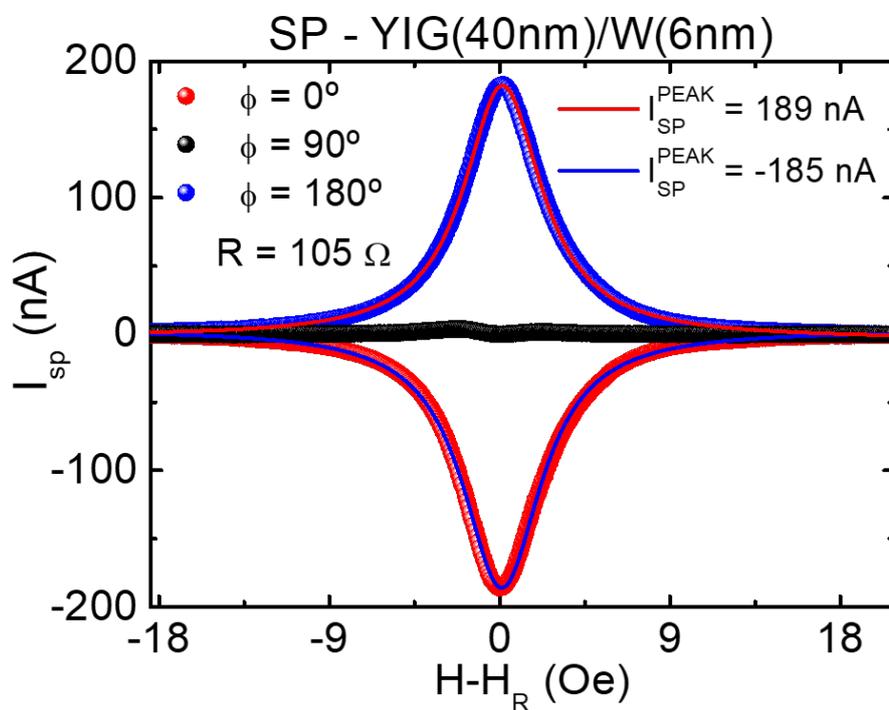


Fonte: o autor [58].

O ajuste numérico da Equação 3.16 fornece informações importantes sobre algumas características do material, tais como: 1) a qualidade da eficiência na conversão spin-carga (bons conversores tendem a ter um pico maior no sinal de SP  $I_{SP}^{PEAK}$  quando comparado com outros materiais sobre as mesmas condições), 2) a orientação relativa do sinal do ângulo de spin Hall, como será abordado no Capítulo 5, Pt e W possuem oposição de sinal em  $\theta_{SH}$  o que produz uma inversão no sinal de SP e na histerese do efeito spin Seebeck, que também é medido através do ISHE e 3) a validade da conversão spin-carga, como também será tratado no abordado no Capítulo 5, sinais que não obedecem a equação do ISHE (Equação 2.14) não são originadas de correntes de spin e portanto não podem ser atribuídos ao spin pumping.

A Figura 17 mostra medidas de SP em YIG(40nm)/W(6nm) com o campo aplicado no plano da amostra. Os sinais são medidos por um nano voltímetro na forma de tensão  $V_{ISHE}$  e transformados em corrente elétrica  $I_{SP}$  por meio da divisão pela resistência da amostra, que neste caso foi de  $105 \Omega$ . Tanto as medições de  $V_{ISHE}$  como de resistência das amostras deste trabalho, foram realizadas através de contatos elétricos de fios de alumínio ou cobre fixados nas extremidades da camada mais externa da amostra com tinta de prata. O sinal negativo em  $\phi = 0^\circ$  indica um ângulo spin Hall negativo, se tomado o sinal para cima em  $\phi = 0^\circ$  (como acontece na Pt) como referência positiva. Também nota-se da inversão dos sinais em  $\phi = 0^\circ$  e  $\phi = 180^\circ$  e do resultado desprezível em  $\phi = 90^\circ$ , que a medida obedece à Equação 2.14 e logo é produto da conversão spin-carga pelo efeito spin Hall inverso. O fit da Equação 3.16 com os pontos experimentais revelam um pico de corrente de -185 nA e 189 nA, o que é um indicativo que o W é um bom absorvedor de spins. Como será discutido no Capítulo 5, alguns elementos ser transparentes a uma corrente, mesmo possuindo interação spin órbita intensa. Como veremos, a técnica de spin pumping e o efeito

Figura 17 – Sinais de SP medidos na camada superior de W em função do campo aplicado. Todas as curvas de absorção foram compensadas pelo valor do campo de ressonância  $H_R$ .



Fonte: o autor (2022).

spin Hall inverso são ferramentas importantes na investigação de vários fenômenos envolvendo corrente de spin.

## 4 MONTAGEM DE EPITAXIA EM FASE LÍQUIDA

A epitaxia em fase líquida (LPE) é uma técnica de crescimento realizada a partir de uma solução (solvente + soluto) em alta temperatura, obtida pela fusão de compostos químicos (melt), para a deposição posterior de uma fina camada cristalina única epitaxial em um substrato cristalino. A utilização deste método tem sido aplicada em muitos compostos, mas as principais aplicações são para o desenvolvimento de dispositivos semicondutores e granadas magnéticas de ferro e terras raras. Dentre as principais vantagens para utilização do LPE estão 1) a produção de materiais extremamente puros, 2) a grande variedade de dopantes disponíveis com LPE (tornando-a uma excelente ferramenta para estudos fundamentais de dopagem), 3) o baixíssimo custo dos equipamentos e de operação (comparada com outras técnicas, tais como "Epitaxia por Feixe Molecular (MBE) e Deposição de Vapor Químico Metalorgânico (MOCVD)) e 4) a alta taxa de crescimento, cerca de 10 a 100 vezes maior do que MBE e MOCVD. O principal objetivo da construção do equipamento relatado neste trabalho foi a fabricação da granada de ítrio e ferro (YIG), um material magnético isolante de extrema importância para os estudos de spintrônica.

### 4.1 TÉCNICAS DE DEPOSIÇÃO POR LPE

Existem vários métodos para colocar o substrato em contato com a solução preparada para o crescimento epitaxial e para separá-los ao término da formação da camada epitaxial. Estas técnicas são classificadas como tipping (imersão), dipping (mergulho) e sliding-boat (barco flutuante) e elas diferem essencialmente pela maneira de colocar o substrato em contato com a solução.

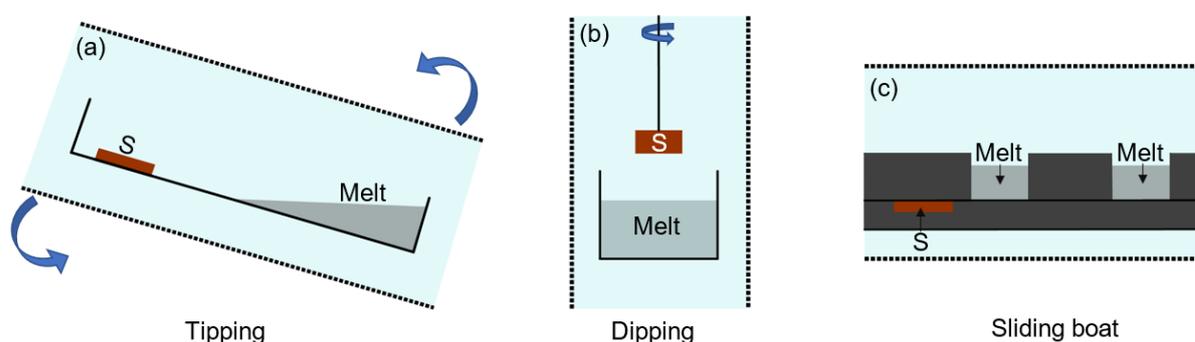
No sistema Tipping (Figura 18a), existe um aparelho basculante que permite que o melt seja separado do substrato através da inclinação do forno. Inicialmente o melt é equilibrado na extremidade oposta à posição do substrato. Após a preparação, a temperatura é reduzida e o forno é inclinado de forma a fazer com que a solução escorra sobre o substrato iniciando o crescimento da camada. Após a fabricação da camada com a espessura desejada, o forno é inclinado de volta para a posição inicial e a solução excedente é removida do substrato. Este tipo de método foi o primeiro sistema de LPE utilizado para o crescimento de semicondutores III-V ([63]) mas como a remoção da solução não é muito confiável, pois o sistema está sujeito a contaminações, e só é permitido o crescimento de uma única camada por vez, esta técnica passou a ser substituída por outras.

Na técnica Dipping (Figura 18b), o substrato é montado em um suporte fixado

na extremidade de uma haste que permite que o substrato seja elevado e rotacionado na posição vertical. As camadas são crescidas através da imersão do substrato no melt. Os mecanismos de rotação da haste servem para controlar a convecção dos átomos de soluto no melt durante o crescimento e também para remover o excesso da solução por centrifugação após o término do crescimento da camada.

A técnica Sliding boat (Figura 18c) é bastante útil para o crescimento de estruturas multicamadas e por isso é amplamente utilizada na fabricação de semicondutores compostos. Nesse modelo, o substrato é posicionado em uma cavidade deslizante (barco deslizante de grafite) e os melts de crescimento são armazenados em poços na seção superior, também deslizante, de modo que as soluções são colocadas sobre o substrato durante o crescimento. A dificuldade crítica da aplicação desta técnica é no ajuste adequado da folga entre os poços dos diferentes melts e o substrato. Caso a lacuna seja muito grande, pode ocorrer uma retenção da fusão, causando uma mistura entre as soluções e caso seja muito pequena, as camadas crescidas podem ser arranhadas quando o substrato for movido. O comprimento típico das lacunas são de 25 a 100  $\mu\text{m}$  tornando a espessura das camadas limitadas a este intervalo.

Figura 18 – Tipos de técnicas de deposição por LPE: a) Tipping, b) Dipping e c) Sliding boat.



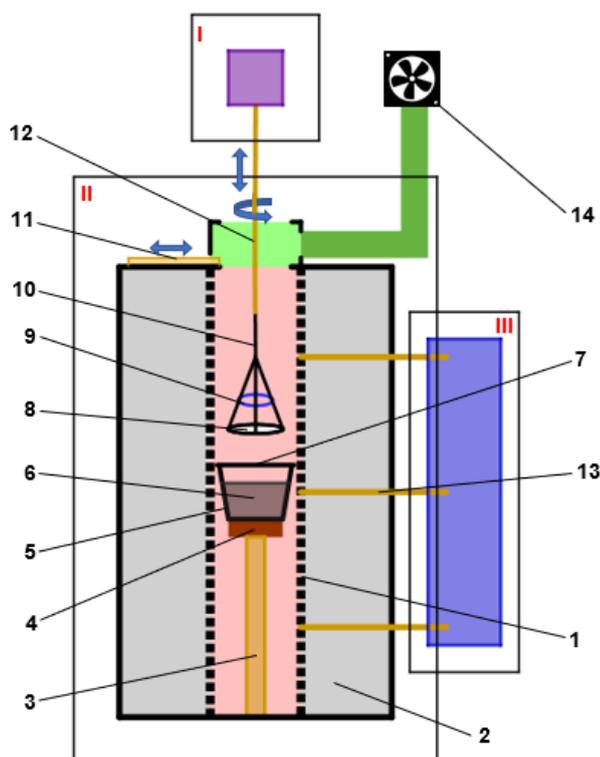
Fonte: o autor (2022).

## 4.2 REPRODUÇÃO DA TÉCNICA DIPPING

Como nosso principal objetivo aqui é a fabricação de filmes finos de YIG ( $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ ), optamos pela montagem do LPE no tipo Dipping devido à sua simplicidade, praticidade e qualidade dos resultados. A Figura 19 mostra um desenho esquemático do sistema de LPE confeccionado.

Como mencionado no tópico anterior, na técnica Dipping o filme é fabricado através da imersão do substrato na solução. O processo de preparação da solução, também chamada de melt, consiste na combinação dos óxidos de ferro e ítrio com uma solução de PbO e óxido de boro. Esta mistura é transferida para um cadinho de platina ou cerâmica (Figura 20a) que é colocado no centro do forno onde será

Figura 19 – Esquema da configuração Dipping real para o crescimento de filmes por LPE: I- controle do deslocamento e rotação da haste; II- forno de aquecimento; III- controle da temperatura. 1- elemento de aquecimento; 2- isolamento térmico; 3- tubo suporte de cerâmica 4- bloco de suporte de tijolo refratário 5- cadinho de platina; 6- melt; 7- tampa do cadinho de platina; 8- substrato; 9- anel de quartzo; 10- tridente porta substrato de platina; 11- Tampa do forno de tijolo refratário; 12- haste de cerâmica para suporte do substrato; 13- haste de cerâmica para saída dos termopares; 14- exaustor.



Fonte: o autor (2022).

aquecido até cerca de 1000°C. Em temperatura ambiente, o melt é sólido, escuro e opaco com alguns pontos brilhantes (Figura 20b) mas acima de uma certa temperatura ele adquire uma superfície espelhada. Um bom indicativo da qualidade do melt é a reflexão da superfície, quanto melhor ela for, melhor será o resultado. Para isso, o melt deve ser misturado com certa regularidade por cerca de 2 ou 3 dias até que este aspecto seja obtido. Para evitar contaminações, tanto o cadinho como o forno possuem tampas específicas, resistentes a altas temperaturas, que são removidas apenas durante o manejo do melt ou crescimento do filme. Além disso é importante que haja um sistema de exaustão funcionando durante todo período de operação evitando assim o espalhamento de gases tóxicos no ambiente. Terminada a produção do melt, o filme está pronto para ser crescido.

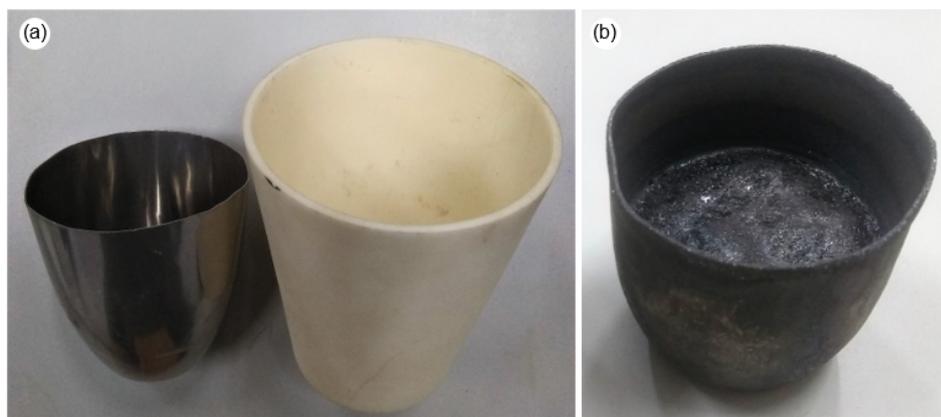
O princípio de funcionamento do processo de crescimento é muito simples e com o substrato bem posicionado no porta substrato, o forno e o cadinho destampados e o exaustor ligado, o procedimento pode ser iniciado. São 4 os parâmetros a serem definidos para o crescimento: 1) Warming time, 2) Growth rate, 3) Growth time e 4) Spin

off time. Todo controle de tempo, velocidade de elevação e rotação é feito através de uma placa de circuito que possui um microcontrolador, dois drivers de motor de passo e um display para exibição do menu. No Warming time (tempo de aquecimento) é definido o tempo, de 0 a 1 min, em que o substrato deve ficar parado antes de entrar no melt, para homogenizar a sua temperatura. No Growth rate (velocidade de crescimento) é definida a frequência de rotação de 0 a 200 rpm do substrato dentro do melt durante o crescimento. No Growth time (tempo de crescimento) é escolhido o tempo de 0 a 10 min que o substrato rotacionará dentro do melt com a frequência selecionada no growth rate. Por fim no Spin off time (tempo de spin-off), é fixado o tempo de centrifugação logo após sua saída do filme do melt.

As ações do programa ocorrem em 3 posições fixadas por sensores de barreira infravermelho, são elas: 1) Top, 2) Middle e 3) Bottom. A posição Top é aquela em que o substrato está fora do forno numa posição confortável para retirar ou colocar o substrato e é nesta posição onde a atividade começa e termina. A posição Middle é localizada acima do melt porém dentro do cadinho. É nela que o substrato fará uma pausa antes de entrar no melt para uniformizar a temperatura e para remover os excessos durante a centrifugação, após sair do melt, que serão lançados nas paredes do cadinho. A posição Bottom é a única que está localizada dentro do melt e é nela onde o crescimento do filme ocorre. O sistema de LPE deste trabalho possui ainda 2 funções extras: Calibration e Repair. Na função Calibration é possível ajustar a altura dos sensores de barreira na guia retangular presente ao lado da rosca sem fim. Já a função Repair é responsável por trazer o substrato de volta a posição Top em caso de interrupção do programa durante o processo. Ambas funções não fazem parte da rotina usual de fabricação dos filmes mas são importantes para resolver situações causadas por imprevistos.

Definidos todos parâmetros, o processo de crescimento é iniciado selecionando a função "Run" no menu. Feito isso, o substrato descerá com velocidade constante até a posição middle, onde ficará parado por um tempo definido no Warming time para em seguida iniciar a rotação com frequência definida no growth rate e descer até a posição bottom onde será realizado o crescimento do filme durante o tempo definido no growth time. Após isso o substrato deve retornar à posição middle para centrifugação. Neste processo a frequência é incrementada de 200 à 800 rpm, onde deve permanecer por um tempo definido na função spin off time, e após decrementada até o repouso. Por fim, o filme deve retornar a posição top saindo totalmente do forno.

Figura 20 – a) Tipos de cadinhos usados no LPE: platina (esq.) e cerâmica (dir.) e b) cadinho após fabricação do melt em temperatura ambiente.



Fonte: o autor (2022).

### 4.3 CONSTRUÇÃO DO SISTEMA DE LPE

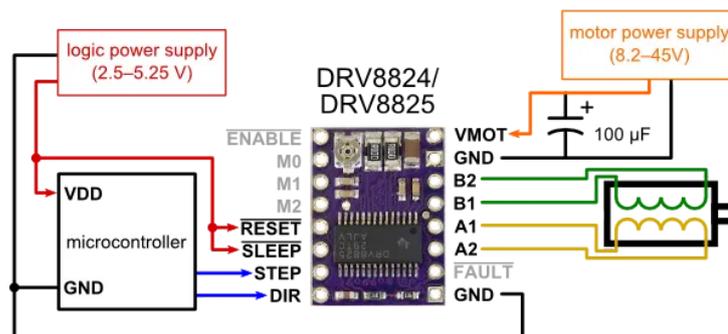
#### 4.3.1 Automação

O princípio de funcionamento do sistema de automação é 1) um motor para controlar o deslocamento vertical do substrato 2) um motor para controlar a rotação do substrato e 3) uma interface onde são definidos os parâmetros de tempo e velocidade de crescimento do filme.

O movimento vertical é realizado através de uma rosca sem fim acoplada a um motor de passo. O conjunto a ser deslocado que é conectado a esta rosca é composto por um outro motor que é acoplado a uma haste cerâmica que possui um porta substrato na sua extremidade. Para manter a estabilidade, principalmente durante a centrifugação, este conjunto é isolado por uma caixa de alumínio bem firme. Ambos motores, da rosca e da haste, são motores de passo de 8 fios. A vantagem desse tipo de motor é que além de poder ser usado no modo unipolar e bipolar, as bobinas podem ser conectadas no modo meio motor, em série ou em paralelo priorizando a velocidade, o torque ou ambos, respectivamente. Nos dois casos utilizamos a configuração em série para garantir que a velocidade desejada seja atingida sem prejudicar o movimento vertical.

Para alimentação e controle do motor foi usado o driver para motor de passo DRV 8825 (Figura 21), que fornece até 2.5A por bobina e pode ser alimentado com tensões de 8.2 a 45V. Além disso, com esse driver também é possível manipular algumas funções lógicas do motor (conexões à esquerda na Figura 21) como inversão de sentido, velocidade e o modo de passo, que permite que um passo seja dividido em até 32 vezes, aumentando consideravelmente a precisão e o torque.

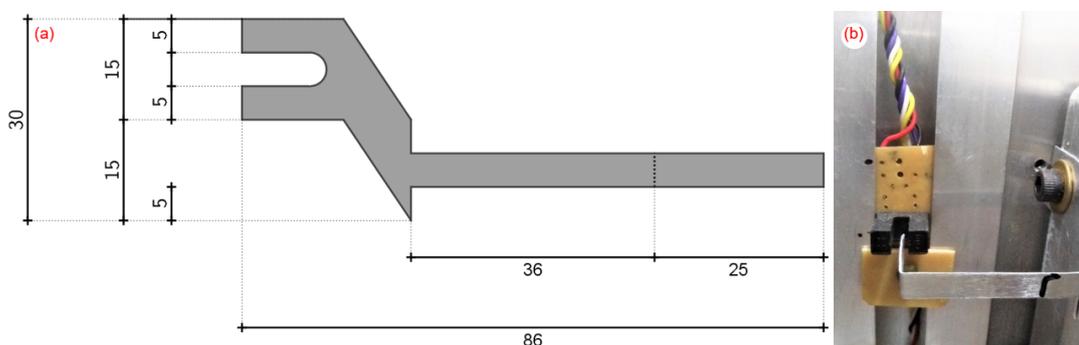
Figura 21 – Driver de motor de passo DRV8825. À esquerda as conexões lógicas, de baixa tensão, feitas com o microcontrolador e à direita as conexões feitas com o motor, de tensão mais elevada.



Fonte: Google imagens (2022).

Como comentado no tópico anterior, durante a operação o sistema deve fazer uma pausa em três posições distintas chamadas top, middle e bottom. O ajuste destas posições é feito através de sensores de barreira infravermelho fixados em um tubo retangular posicionado ao lado da rosca sem fim, que são acionados por uma peça de alumínio, cujo esquema pode ser visto na Figura 22. Assim como na união motor-rosca, o movimento de rotação do sistema é controlado por um motor acoplado a uma haste de cerâmica com um porta substrato na extremidade. O motor da haste também é um motor bipolar de 8 fios, e é posicionado numa plataforma ficando alinhado ao centro do forno. Para estabilizar o conjunto, a plataforma é fechada formando uma caixa que contém o motor. Como a velocidade de rotação utilizada pode chegar a 1000 rpm, é preciso que o grupo motor-haste-substrato esteja muito bem alinhado e estável para que não haja acidentes. O alinhamento da extremidade da haste é feito através dos parafusos de uma peça cilíndrica metálica que conecta a haste ao motor.

Figura 22 – a) desenho do acionador do sensor de barreira, as medidas estão em centímetro e b) acionamento durante o funcionamento.

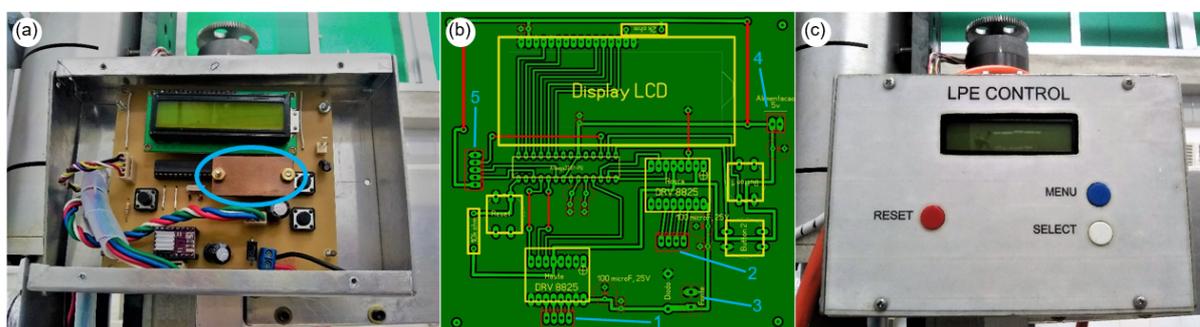


Fonte: o autor (2022).

Todas as conexões do sistema lógico de sensores e motores, bem como as fontes que os alimentam, são feitas em uma placa de circuito impresso (PCI), confeccionada no laboratório de eletrônica do departamento (Figura 23a). Esta PCI possui um

microcontrolador ATmega328p, donde é gravada toda a programação lógica, 2 drivers de motor de passo, 3 botões (push buttons), 1 display LCD 16x2, além de resistores, capacitores e do cristal oscilador que fornece a referência para o microcontrolador. Por passar mais tempo funcionando que o motor da haste, o driver do motor da rosca aquece bem mais, por isso foi utilizado um dissipador de cobre, circulado na Figura 23a, que mantém a temperatura dentro dos limites do componente. No esquema da PCI<sup>1</sup>, na Figura 23b, vê-se que nos conectores 1 e 2 são ligadas as bobinas dos motores, 3 e 4 as alimentações de alta e baixa tensão, respectivamente, e os sensores de barreira no 5. As fontes que alimentam os motores e a parte lógica do sistema, são feitas por 2 fontes chaveadas de 5 e 24V, respectivamente. Os botões menu, select e reset na Figura 23c possuem a função de escolher a função, incrementar o parâmetro e reiniciar o programa, respectivamente. O programa instalado no microcontrolador foi escrito na interface Arduino e está disponível no Apêndice A deste trabalho. Todos os processos das etapas antes e durante o funcionamento são exibidos no display LCD.

Figura 23 – a) Placa de circuito impresso (PCI) usada para controle do LPE. Por consumir mais energia, o driver de motor de passo do motor da rosca sem fim precisa de um dissipador de cobre (circulado na figura). b) Desenho das trilhas e conexões da PCI e c) interface vista pelo usuário durante a operação.



Fonte: o autor (2022).

### 4.3.2 Forno

Inicialmente, a construção de um forno não estava prevista para este trabalho, mas após um defeito irreparável no forno comercial que era utilizado anteriormente, resolvemos que seria melhor a confecção de um novo, pois já possuíamos o tubo principal (onde deve ser enrolado a resistência) de cerâmica, que possui o maior custo dentre todos os materiais. Além disso, a qualidade e a eficiência dele após a fabricação seria muito superior ao anterior.

Como o melt possui metais pesados em sua composição, é fundamental que haja um sistema de exaustão conectado ao forno evitando que os gases se acumulem

<sup>1</sup> Desenho esquemático com extensão ".lay6" disponível em: [github.com/KacioMello/LPE/blob/2cbb3d30b5f14b31c7494c2c5f9097b40c5e40e3/PCI\\_FORNO.lay6](https://github.com/KacioMello/LPE/blob/2cbb3d30b5f14b31c7494c2c5f9097b40c5e40e3/PCI_FORNO.lay6)

no ambiente e coloque a saúde das pessoas que o frequenta em risco. Para que não caiam substâncias indesejáveis e a eficiência do aquecimento seja melhorada, é necessário que o forno possua uma tampa resistente a altas temperaturas e que não libere resíduos, para que o mesmo possa ser aberto apenas quando necessário. Para isso, criamos um suporte de alumínio (Figura 24) que é fixado na abertura do forno que possui uma plataforma para deslizamento de uma tampa retangular e conecta o forno ao sistema de exaustão.

Figura 24 – Suporte de alumínio responsável por conectar o forno ao sistema de exaustão e servir de apoio para tampa do forno.



Fonte: o autor (2022).

O forno funciona essencialmente por efeito joule, onde uma tensão é aplicada em uma espira resistiva que está envolta de um tubo cerâmico. A eficiência do processo de aquecimento vai depender principalmente da qualidade do material resistivo e da uniformidade e do espaçamento das espiras. Também é importante que toda a área interna da espira esteja em contato com o tubo cerâmico para que seja aproveitado o máximo de calor. Ademais, quanto menor for o diâmetro do tubo do forno, maior será a uniformidade e a taxa de aquecimento e menor será o tempo para obtenção da temperatura desejada.

Nosso forno foi fabricado em um tubo de alumina com 9 cm de diâmetro, 1 cm espessura e 82 cm de altura, onde foi enrolado cerca de 25 m de um fio Khantal com espessura de 3 mm, dividindo a bobina maior em 3 seções, ou em 3 bobinas menores. A divisão deste modo é importante para manter a temperatura do centro, onde é mantido o cadinho, mais estável e uniforme. Desse modo, são criadas 3 bobinas em que duas são responsáveis por aquecer as extremidades e uma para o aquecer o centro. Para manter o mesmo espaçamento dos fios, usamos espaçadores de cerâmica

com separações de 0.8 cm entre os vãos. Dessa forma, obtemos 3 zonas com 22 cm de altura e 27 espiras cada como mostra a Figura 25a.

Para fixar o fio resistivo ao tubo cerâmico, foi aplicado um concreto refratário (Figura 25b), cuja temperatura suportada é bem superior ao limite obtido no forno. Como os espaçadores de cerâmica estavam amarrados ao tubo por um material de borracha, o forno precisou ser cimentado em 2 etapas: primeiro para concretar a região livre, que continha apenas a bobina e o tubo, para depois, após a secagem, remover a borracha e cimentar a área restante como mostra a Figura 25(c)-(d). A duração total da secagem foi de cerca de duas semanas, uma pra cada etapa.

Figura 25 – Etapas de fixação do fio resistivo no tubo cerâmico. a) Espiras resistivas enroladas no tubo de alumina e separadas por distâncias fixas por espaçadores cerâmicos, os fios que se estendem para esquerda são as extremidades das bobinas de cada zona, b) tubo após a aplicação da primeira camada de cimento refratário, vê-se o autor a esquerda e o orientador (Antonio Azevedo) a direita, c) tubo durante a aplicação da segunda camada de cimento refratário e d) tubo após a aplicação da segunda camada de cimento refratário.

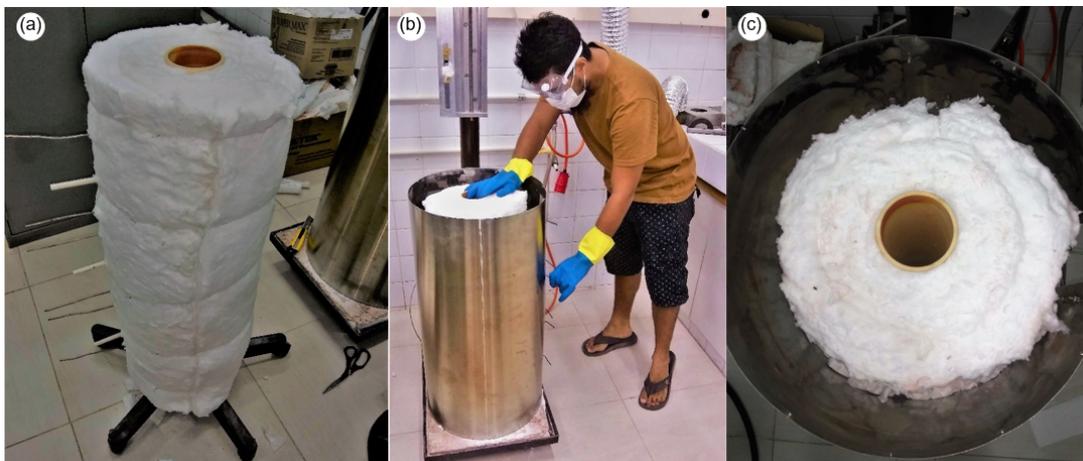


Fonte: o autor (2022).

Concluída esta etapa de fixação, o tubo cimentado foi envolvido por uma manta de isolamento térmico (Figura 26a) e em seguida posicionado dentro de um tubo de metal, que foi preenchido com mais isolamento térmico (figura 26(b)-(c)). A manta foi amarrada ao tubo por um fio de Kanthal de espessura mais fina que a utilizada no forno. O uso de luvas e óculos de proteção foi de grande importância nesta etapa, pois a manta térmica libera fibras de cerâmica que incomodam quando em contato com a pele e pode causar sérios danos em contato com os olhos.

Para aumentar a vida útil da resistência do forno e evitar danos à fiação do sistema, parte da energia térmica é dissipada para própria carcaça do forno através de peças cerâmicas (Figura 27a). As extremidades das bobinas são ligadas ao transformador por 2 chapas de latão, isoladas eletricamente pelas peças cerâmicas, donde é aplicado 50V em cada zona. Os testes realizados foram bem sucedidos e as três zonas atingiram a temperatura definida de 1000 °C sem flutuações, como mostra a Figura 27(b)-(c). O forno permaneceu neste estado por 1 dia para que a umidade presente na

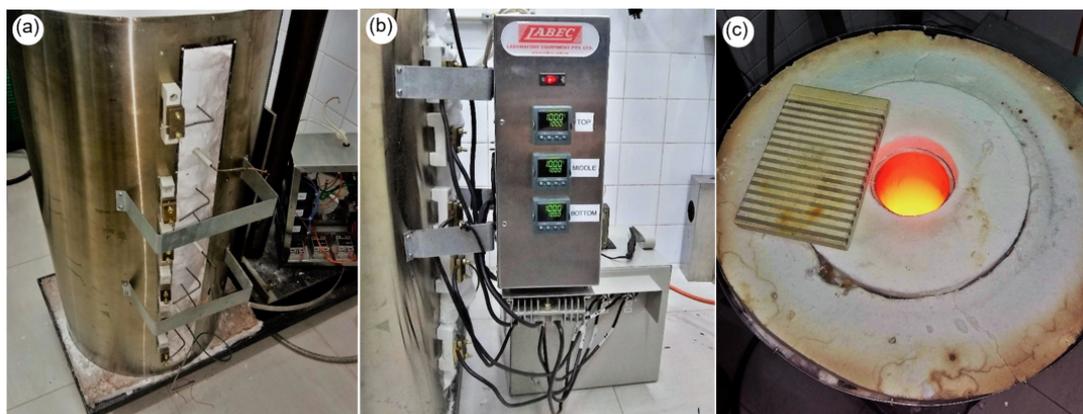
Figura 26 – Aplicação da manta térmica após fixação das espiras. a) Manta térmica amarrada ao tubo por um fio de Kanthal, b) posicionamento do tubo no local de funcionamento do LPE (o uso de luvas e óculos de proteção é importante durante toda esta etapa) e c) preenchimento do espaço entre o tubo e a carcaça do forno com mais isolamento térmico.



Fonte: o autor (2022).

manta e no cimento fosse liberada.

Figura 27 – Conexão das espiras do forno a fonte de alimentação e teste de funcionamento. a) As espiras utilizam a própria carcaça do forno para dissipar o calor excedente. b) Primeiro teste de funcionamento após ligação das espiras a fonte de alimentação. Os dígitos maiores (superiores) nos displays correspondem ao valor real (medidos pelo termopares) enquanto que os menores (inferiores) correspondem ao valor teórico (calculados a partir da medida inicial, ao ligar o forno, em função da rampa de aquecimento definida). c) Tubo de alumina incandescente devido o aquecimento.



Fonte: o autor (2022).

### 4.3.3 Acessórios e utilitários

Como o sistema de LPE exige o uso de materiais que suportem temperaturas superiores aos 1000 °C, que não são tão acessíveis como as demais ligas metálicas usadas no laboratório, vários materiais e equipamentos foram testados a fim de atende-

rem bem as necessidades e servirem de alternativa a platina e a cerâmica, que costumam ser caras e são difíceis de encontrar no comércio.

Felizmente, os principais objetos, que não podiam ser substituídos, já estavam disponíveis no laboratório, são eles: a haste de cerâmica que carrega o substrato, o tridente porta substrato de platina, o cadinho de platina (ou cerâmica), a tampa de platina do cadinho, as hastes de cerâmica para saída dos termopares e o tubo de suporte de cerâmica. Estes itens correspondem respectivamente aos números 3, 5, 7, 10, 12 e 13 na Figura 19.

Após a deposição, as paredes internas do forno podem ficar contaminadas com substâncias que podem ser tóxicas, como o chumbo. Assim, para manipular o cadinho com o melt dentro do forno de uma forma segura, foi utilizado um mão biônica comercial adaptada (Figura 28a), donde as ventosas da ferramenta original foram substituídas por garras feitas sob medida para o diâmetro do forno e do cadinho (Figura 28c). Além de ser necessário uma ferramenta para remoção do cadinho, seria preciso também um instrumento para destampá-lo no momento da deposição. Neste caso, o objeto deveria suportar uma alta temperatura, diferente da mão biônica que seria usada em temperatura ambiente. Mas antes de encontrar uma ferramenta para segurar a tampa, seria necessário criar primeiro uma alça para remoção. Um fio de platina certamente serviria para este propósito, mas devido ao alto custo outros tipos de materiais possíveis substitutos, foram testados. Foram experimentados fios de tungstênio, Kanthal e NiTi (níquel-tungstênio), utilizado em aparelhos ortodônticos. O tungstênio possui um alto ponto de fusão (3.422 °C), contudo quando exposto ao ar é formado um óxido em sua superfície (trióxido de tungstênio  $WO_3$ ) fazendo com que o seu ponto de fusão caia drasticamente para 400 °C, muito inferior a temperatura de crescimento utilizada. O melhor resultado foi obtido com o fio resistivo de Kanthal, que foi usado em conjunto com o fio de platina (Figura 28d). Para içar a tampa, foi feito um gancho com uma haste de aço maciça (Figura 28b).

Para criar uma superfície plana e garantir que o cadinho seja posicionado no centro do forno, onde a temperatura é mais uniforme, foram fabricadas peças de tijolo refratário que foram cortadas e dimensionadas no laboratório (Figura 29a). Um material similar foi utilizado para criar uma tampa para o forno, que deve ser aberta apenas no momento do crescimento. Antes de encontrar um material adequado, foram utilizados alguns objetos mais comuns, como placas de azulejo e porcelanato, mas eles não resistiram e quebraram durante o aquecimento. Foi cogitada ainda o uso de placas de quartzo ou alumina, mas além do custo de fabricação da peça com as dimensões desejadas ser bastante elevado, o material poderia ser muito frágil e ser facilmente quebrado durante a operação do LPE. Este problema foi solucionado utilizando uma placa retangular (Figura 29b) retirada da sucata de um forno cúbico que estava em

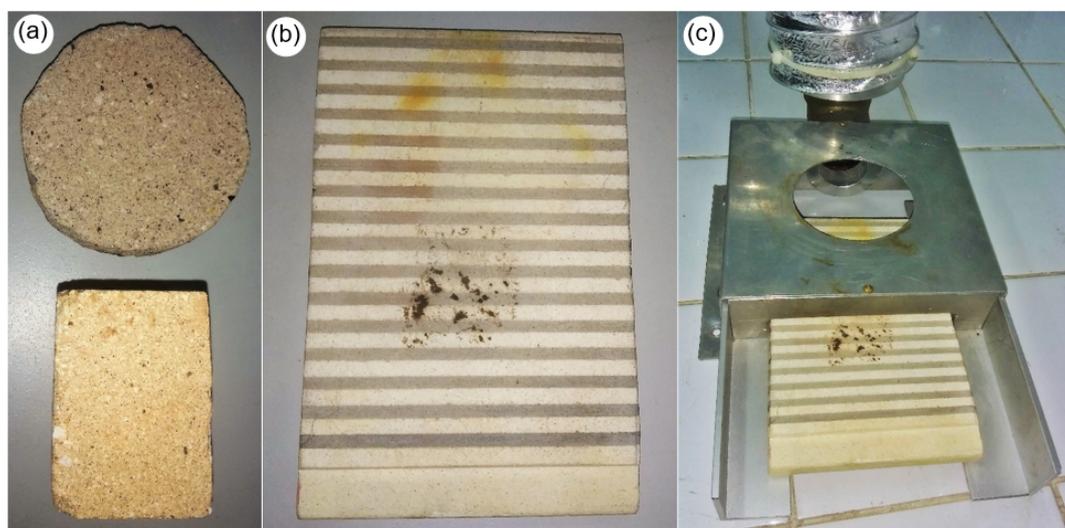
Figura 28 – a) Mão biônica comercial adaptada para remoção do cadinho, b) gancho de aço para remoção da tampa do cadinho, c) demonstração do uso da mão biônica para remoção do cadinho (as ventosas originais foram substituídas por garras fabricadas para o diâmetro do forno e do cadinho) e d) tampa de platina (sup. esq), tampa de platina com alça (sup. dir.) e fio de platina (inf.).



Fonte: o autor (2022).

desuso no departamento, então certamente suportaria altas temperaturas. Após vários testes verificar que o mesmo não liberava resíduos, passamos a utilizá-lo na caixa de alumínio acoplada ao exaustor, que foi projetada para esta finalidade (Figura 29c).

Figura 29 – a) Peças de tijolo refratário usadas como suporte para o cadinho, b) tampa do forno e c) tampa do forno no suporte de alumínio fabricado para este fim.

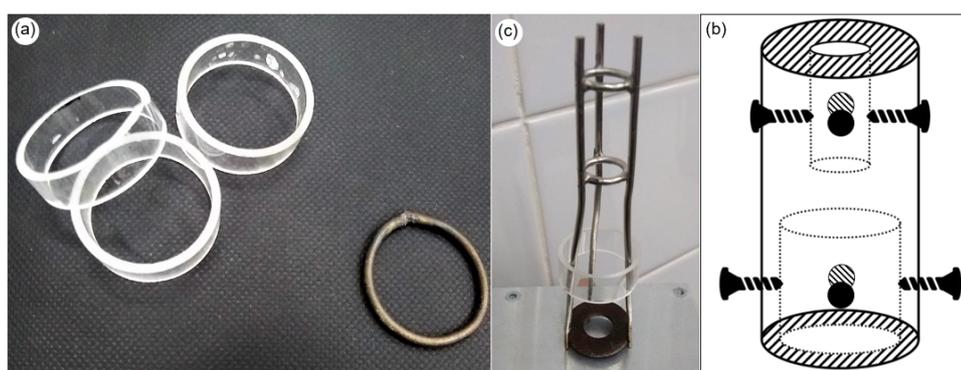


Fonte: o autor (2022).

Na centrifugação, logo após o crescimento, a amostra é rotacionada a uma frequência entre 800 rpm e 1000 rpm, o que requer que todo conjunto haste-substrato esteja bem firme para que nenhuma peça seja ejetada durante esta ação. Como o substrato é facilmente removido do tridente de platina, seria preciso uma peça para travar este grupo e que também fosse resistente a altas temperaturas sem liberar resíduos que pudessem contaminar o filme. Assim, foram construídos anéis com alguns

tipos de metais e aços, entretanto os que não se romperam durante o aquecimento, oxidaram rapidamente produzindo contaminação. O melhor resultado foi obtido com anéis de quartzo (Figura 30a), feitos a partir de tubos de quartzo, que é um material limpo e possui um ponto de fusão superior a 1700 °C, com o diâmetro exato para travar o substrato ao tridente (Figura 30b). Outro desafio que exigiu um pouco mais de tempo e atenção, foi manter a estabilidade do substrato durante a centrifugação. Como as hastes cerâmicas não eram perfeitamente alinhadas, ao rotacionar, a extremidade com o substrato produzia um movimento cônico podendo causar a ruptura da haste ao centrifugar em alta frequência. Após diversas tentativas, a solução para isto foi obtida com a fabricação de uma peça metálica cilíndrica responsável por unir a haste ao eixo do motor. A principal característica desta peça, são os 8 parafusos (4 para haste e 4 para o eixo do motor) para o ajuste (Figura 30c). Através deles, é possível atenuar o movimento cônico deslocando-o para fora da região em que se deseja ter a estabilidade, que neste caso é a extremidade da haste. Mover o desbalanceamento para outro ponto da haste, não afeta a estabilidade do substrato nem trás risco de ruptura para haste. A fabricação desta peça foi uma escolha muito inteligente e fundamental para produção de filmes por LPE, pois sem ela isto só seria possível com a aquisição de hastes que fossem perfeitamente alinhadas, o que exigiria muito mais tempo e um alto custo para importação.

Figura 30 – a) Anéis de quartzo (sup. esq.) e aço (inf. dir.) usados para prender o substrato ao tridente. A coloração escura no anel de aço indica a presença de oxidação, que é um contaminante neste caso. b) Demonstração do conjunto tridente-anel-substrato. e c) desenho da peça cilíndrica usada para conectar a haste do substrato ao eixo do motor. Através dos parafusos desenhados neste esquema é possível corrigir o movimento cônico na extremidade de uma haste desalinhada.

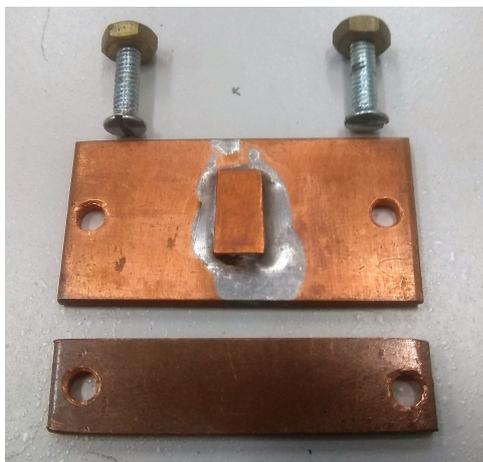


Fonte: o autor (2022).

Como o motor da rosca sem fim funciona por muito mais tempo que o motor da haste, o dissipador do driver do motor de passo produzido pelo fabricante não era suficiente para manter a temperatura dentro dos limites exigidos no manual do fabricante. Na tentativa de reduzir a temperatura durante o funcionamento, foram testados diversos tipos de dissipadores de diferentes tamanhos e materiais, no entanto

o problema só foi resolvido com a confecção de uma placa de cobre (Figura 31) que garantiu que a temperatura não ultrapassasse 40 °C durante todo processo de crescimento.

Figura 31 – Dissipador de cobre usado para manter o driver de motor de passo da rosca sem fim com temperatura inferior aos 40 °C.



Fonte: o autor (2022).

## 5 RESULTADOS E DISCUSSÕES

O bismuto é um material singular dentre os metais pesados. Com número atômico  $Z = 83$  e massa atômica  $M_A = 208.9$  u ele é reconhecido como o elemento químico não radioativo mais pesado. Além disso, o Bi possui a maior susceptibilidade diamagnética<sup>1</sup>, a maior magnetorresistência e o maior coeficiente termoelétrico e hall, entre os elementos químicos [64]. Por isso, ele é também um material normalmente presente na composição de diversos isolantes topológicos, como  $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ ,  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  e  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ , sendo o próprio bismuto considerado um material topológico [1, 65–76]. Ademais, por ser um metal pesado, o Bi possui um grande acoplamento spin órbita (SOC), cerca de 1,5 eV [1, 65, 77, 78], logo é esperado que ele também seja um ótimo conversor de corrente spin-carga. No entanto os resultados aqui apresentados mostraram que nem sempre esta correlação pode ser aplicada. Estas são algumas das principais características que tornam o bismuto um importante objeto de estudo em spintrônica nos dias atuais.

O escopo deste trabalho, é a investigação da heteroestrutura de YIG/Bi por meio da técnica de bombeamento de spin, onde foi verificado que o Bi exibe uma conversão de spin-carga desprezível. Ao adicionar uma camada superior de Pt, descobriu-se que a corrente de spin que flui através da camada de Bi é convertida em corrente de carga na interface Bi/Pt. Além disso, os spins bombeados exibem um mecanismo de relaxamento incomum impulsionado pela forte resposta diamagnética do Bi. Ao considerar um modelo estocástico não linear de difusão de spin, é proposto que a camada de Bi atue como um dispositivo classificador binário que categoriza os spins bombeados em spins relaxados e aqueles que fluirão para cima e eventualmente atingirão a camada superior do Pt. Um breve resumo de um trabalho que norteou muitas das investigações realizadas aqui encontra-se disponível no Apêndice B. desta dissertação. Trata-se de um artigo publicado por Di Yue, Weiwei Lin e C. L. Chien, na revista APL Materials - Perspective [1]. Este artigo, que foi publicado quando iniciávamos o estudo do uso do bismuto em experimentos de spin-pumping (SP), contesta alguns resultados publicados previamente os quais tentávamos reproduzir mas não obtínhamos resultados compatíveis. Além de ajudar a esclarecer nossos resultados, este artigo também trouxe de volta à tona a discussão acerca do uso do bismuto como conversor de spin-carga e seu emprego em interfaces. Por fim (Seção 5.2), são apresentados outros resultados que fizeram parte da trilha até a etapa principal deste trabalho. Nesta

<sup>1</sup> Uma substância diamagnética apresenta suscetibilidade magnética negativa, cujos átomos não têm momento de dipolo magnético permanente. Quando um campo magnético externo é aplicado a uma substância diamagnética, como o bismuto ou a prata, um momento de dipolo magnético fraco é induzido na direção oposta ao campo aplicado. Todos os materiais são realmente diamagnéticos, pois uma força repulsiva fraca é gerada em um campo magnético pela corrente orbital dos elétrons.

seção, são mostrados alguns resultados preliminares, seja por fugir muito do esperado ou por não ser o foco da nossa investigação. Muitos dos dados, a maioria envolvendo Bi, que foram deixados de lado durante as observações, foram melhor entendidos após a obtenção de novos resultados mais tarde e da publicação do artigo de Di Yue.

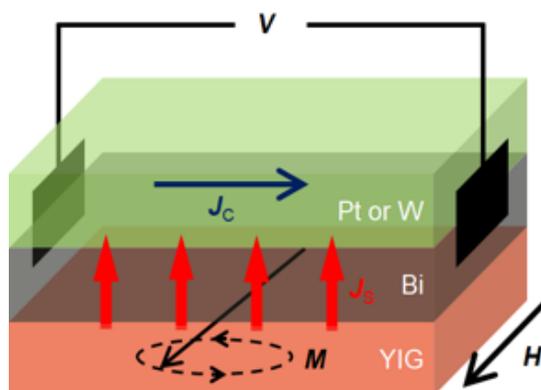
### 5.1 NOSSAS INVESTIGAÇÕES: YIG(40 NM)/BI

A Referência [1] foi publicada no mesmo período em que realizávamos nossas investigações acerca da conversão spin-carga no bismuto. Na época, já suspeitávamos que o uso de um ferromagneto metálico (ex.  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$ ) como um injetor de corrente de spin poderia comprometer o resultado, dado que os efeitos de retificação de spin do próprio Py poderiam mascarar o sinal do ISHE, então utilizamos YIG como substituto do Py para comparar com as últimas publicações. Após a publicação do Artigo [1], vimos que de fato os resultados de muitos trabalhos relacionados à eficiência do bismuto como conversor spin carga eram absolutamente contraditórios e portanto a discussão permanecia aberta.

Uma técnica confiável que certamente pode esclarecer a controvérsia da conversão spin-carga em Bi é a técnica SP, na qual a FMR do FI nas bicamadas FI/Bi é excitada. À medida que a magnetização precessiona, ela injeta uma corrente pura de spin ( $\vec{J}_S$ ) através da interface FI/Bi que, como teoricamente esperado, deve ser convertida em corrente transversal de carga ( $\vec{J}_C$ ) por meio do ISHE. Dessa maneira a corrente de spin pode ser caracterizada pela medição de uma tensão ISHE entre dois eletrodos ligados à camada HM. Embora o uso de FI como injetores de spin elimine efeitos espúrios devido à retificação de spin, ainda é possível ter contribuições de efeitos termoelétricos que eventualmente ocorrem devido ao pequeno aquecimento da camada de FI sob FMR, conforme discutido abaixo. Neste contexto, é muito importante enfatizar que a corrente de carga gerada pelo ISHE deve satisfazer a equação  $\vec{J}_C = (2e/\hbar)\theta_{SH}(\vec{J}_S \times \vec{\sigma})$ , onde  $\vec{\sigma}$  é a polarização de spin,  $\theta_{SH}$  é o ângulo de spin Hall, e  $e$  e  $\hbar$  são a carga do elétron e a constante de Planck reduzida, respectivamente.

Neste trabalho, nós investigamos a eficiência do bismuto na conversão de spin-carga nas heteroestruturas YIG(40 nm)/Bi(6 nm) e YIG(40 nm)/Bi(0 a 10 nm)/HM(6 nm), com HM = Pt ou W, por meio da técnica de SP. A Figura 32 mostra esquematicamente a técnica SP acionada por FMR, onde desenhamos duas camadas de HM. Quando temos apenas a camada de Bi, a corrente de spin injetada pela precessão da magnetização, se transforma em corrente transversal de carga. Quando temos a camada superior de Pt ou W, investigamos a corrente de spin que atravessa a camada de Bi, que será transformada em corrente de carga na camada de HM. O sinal é obtido medindo-se a tensão  $V$ , que quando dividida pela resistência elétrica, produz a corrente elétrica  $I_{SP}$  em função do campo  $\vec{H}$ .

Figura 32 – Esquema da técnica SP.

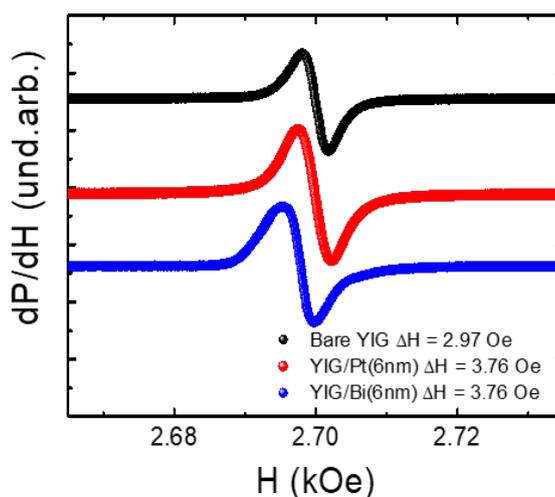


Fonte: o autor (2022).

### 5.1.1 Medidas de FMR e SP

A Figura 33 (superior (preto), meio (vermelho) e inferior (azul)) mostra as curvas de absorção de FMR por varredura de campo para YIG(40 nm) puro, YIG(40 nm)/Bi(6 nm) e YIG(40 nm)/Pt(6 nm), respectivamente. É importante notar o aumento na largura da linha FMR das bicamadas YIG/HM devido à transferência do momento angular de rotação para a camada metálica adjacente. Detalhes experimentais, bem como a caracterização das amostras estão disponíveis no Apêndice C.

Figura 33 – FMR por varredura de campo de filmes de YIG(40 nm) (preto) e bicamadas YIG(40 nm)/Pt(6 nm) (vermelho) e YIG(40 nm)/Bi(6 nm) (azul). As larguras de linha aumentam devido à injeção de momento angular de spin do YIG para a camada HM.

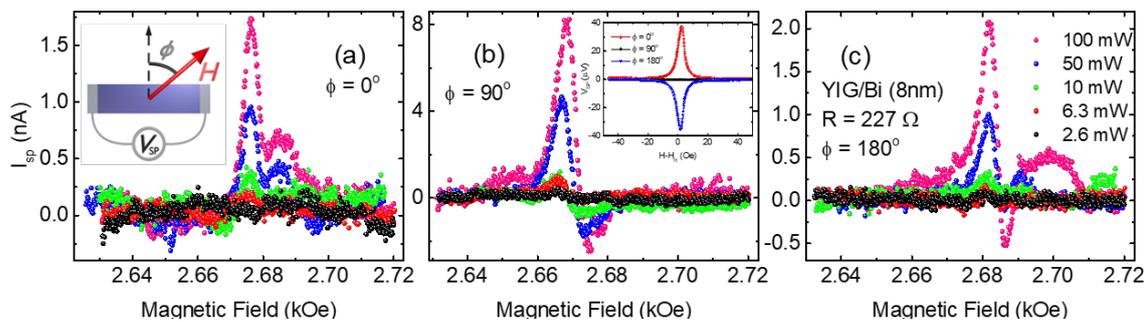


Fonte: o autor (2022).

As Figuras 34(a)-(c) mostram os sinais obtidos em uma bicamada YIG(40 nm)/Bi(8 nm) em função da potência de RF para das posições angulares  $\phi = 0^\circ$ ,  $90^\circ$  e

180°, onde  $\phi$  é ilustrado na inserção da Figura 34a. A inserção da Figura 34b exibe os sinais típicos de corrente de spin pumping ( $I_{SP}$ ) obtidos em bicamada de YIG/Pt(6 nm) que obedecem exatamente à Equação (2.14), isto é o sinal (preto) é nulo em  $\phi = 90^\circ$ , máximo e positivo em  $\phi = 0^\circ$  (em vermelho) e máximo e negativo em  $\phi = 180^\circ$  (em azul). Os resultados de  $I_{SP}$  apresentados nas Figuras 34(a)-(c), em que  $I_{SP} = V_{SP}/R$ , onde  $R$  é a resistência elétrica medida na superfície do Bi, exibem um comportamento completamente diferente do sinal gerado pela bicamada YIG/Pt. De fato, os sinais  $I_{SP}$  não sofrem inversão de polarização ao trocar a posição de  $\phi = 0^\circ$  para  $\phi = 180^\circ$  e não se anulam em  $\phi = 90^\circ$ , ou seja, eles não dependem da direção do campo magnético.

Figura 34 – As Figuras (a)-(c) exibem os sinais de corrente SP ( $I_{SP}$ ) medidos em YIG/Bi(8 nm) em função da potência de RF incidente para três posições angulares, conforme mostrado na inserção de (a). Os sinais SP medidos não podem ser explicados pela equação  $\vec{J}_C = (2e/\hbar)\theta_{SH}(\vec{J}_S \times \vec{\sigma})$ , confirmando assim que é devido ao OSE. A inserção de (b) exibe  $I_{SP}$  para YIG/Pt, que é exatamente explicado por esta equação.



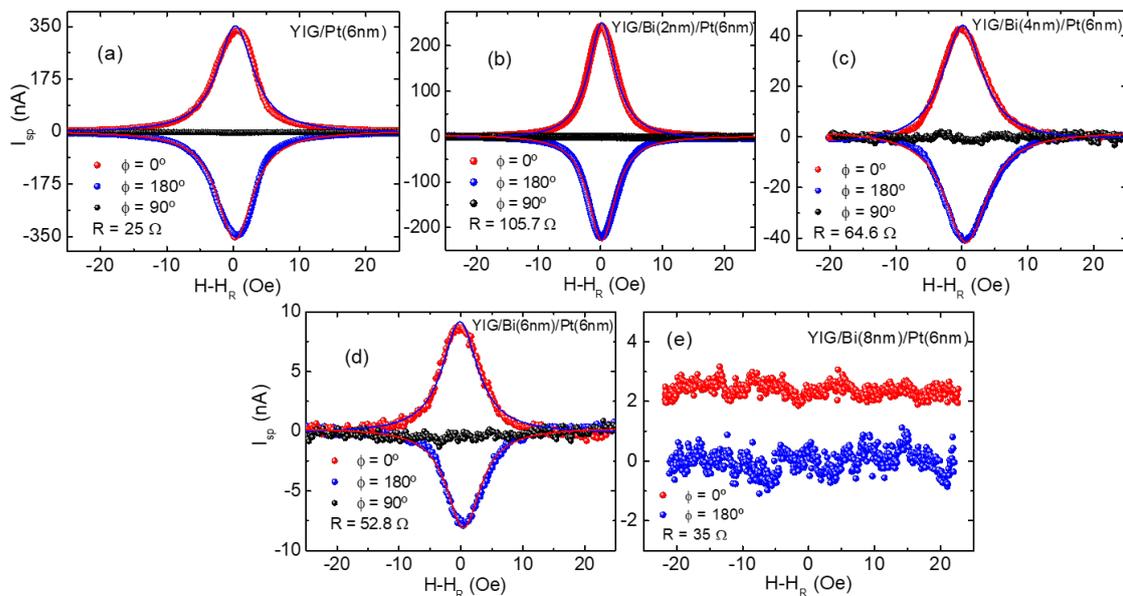
Fonte: o autor (2022).

A origem dos sinais elétricos mostrados nas Figuras 34a-c, que foi incorretamente atribuída a conversão spin-carga do ISHE em muitos trabalhos anteriores[79–98], é certamente devido ao efeito Seebeck ordinário (OSE). Na condição FMR, a energia absorvida pelo modo de precessão uniforme relaxa em fônons por diferentes canais, dando origem ao aquecimento da amostra [47, 99]. Portanto, o filme YIG aquece, gerando um  $\vec{\nabla}T$  perpendicular ao filme Bi que hipoteticamente conduziria o ONE. Mantendo o campo magnético externo na direção  $\phi = 90^\circ$ , as tensões ONE e ISHE são nulas nesta direção e máximas na direção perpendicular, obedecendo assim às equações  $\vec{E}_{ONE} \propto \vec{\nabla}T \times \vec{B}$  e  $\vec{E}_{ISHE} \propto \vec{J}_S \times \vec{\sigma}$ , respectivamente. Como os sinais de corrente mostrados nas Figuras 34(a)-(c) não dependem da direção do campo magnético, eles não pode não ser atribuído ao ONE ou ISHE, mas certamente pode ser atribuído ao OSE, devido a um pequeno  $\vec{\nabla}T$  ao longo do plano de amostra que tem um pico no FMR. Como Bi tem o maior coeficiente Seebeck,  $-72 \mu V/K$  [100], um pequeno  $\vec{\nabla}T$  no plano dá origem a valores de tensão de poucos microvolts. Alguns trabalhos relataram recentemente resultados sobre as contribuições termoelétricas para os sinais de bombeamento de spin em bicamadas FM/NM [101, 102].

### 5.1.2 YIG/Bi/Pt

O resultado mais surpreendente foi a inexistência do sinal ISHE gerado na camada Bi. Para investigar se a corrente de spin injetada por SP transmitiria através da camada de Bi, preparamos amostras de YIG/Bi( $t_{Bi}$ )/Pt(6 nm) com distintas espessuras de camada Bi, onde  $t_{Bi} = 0, 2, 4, 6$  e 8 nm. As Figuras 35(a)-(e) mostram claros sinais de ISHE medidos na camada superior de Pt em função da espessura da camada Bi. Para  $t_{Bi} = 8$  nm, o sinal SP não atinge a camada superior de Pt (Figura 35e) como também aconteceu na Referência [1], indicando que além de não converter a corrente de spin em corrente de carga, o Bi apresenta um forte mecanismo de relaxamento de spin.

Figura 35 – Figuras (a)-(e) exibem os sinais SP medidos na camada superior de Pt em função do campo aplicado. Todas as curvas de absorção foram centradas no valor do campo de ressonância  $H_R$ . Os símbolos vermelhos em (e) foram deslocados para melhor visualização.



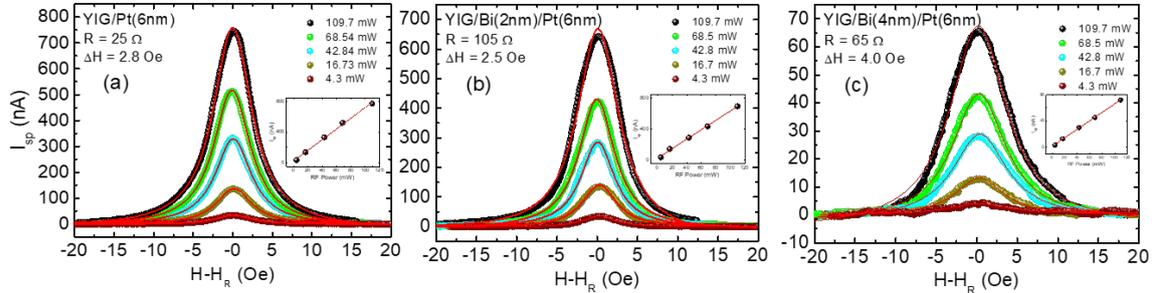
Fonte: o autor (2022).

As Figuras 36(a)-(c) mostram o sinal SP em YIG/Bi( $t_s$ )/Pt(6 nm), com  $t_s = 0, 2$  e 4, em função da potência de RF incidente. A dependência linear do sinal SP, mostrado nas respectivas inserções das Figuras 36(a)-(c), indica que estamos no regime linear de excitação

### 5.1.3 YIG/Bi/W

Para confirmar que a corrente de spin está fluindo através da camada de Bi, depositamos uma camada superior de W(6nm) em vez da camada de Pt. Como se sabe, W tem ângulo Hall de spin negativo em comparação com Pt [103, 104], o que é confirmado comparando as medidas de corrente feitas em YIG/Pt(6 nm) e YIG/W(6

Figura 36 – As figuras (a)-(c) exibem os sinais SP medidos na camada superior de Pt para cinco valores de potência de RF. Todas as curvas de absorção foram compensadas pelo valor do campo de ressonância  $H_R$ . As inserções (a)-(c) mostram a dependência linear do sinal SP em função da potência de RF.



Fonte: o autor (2022).

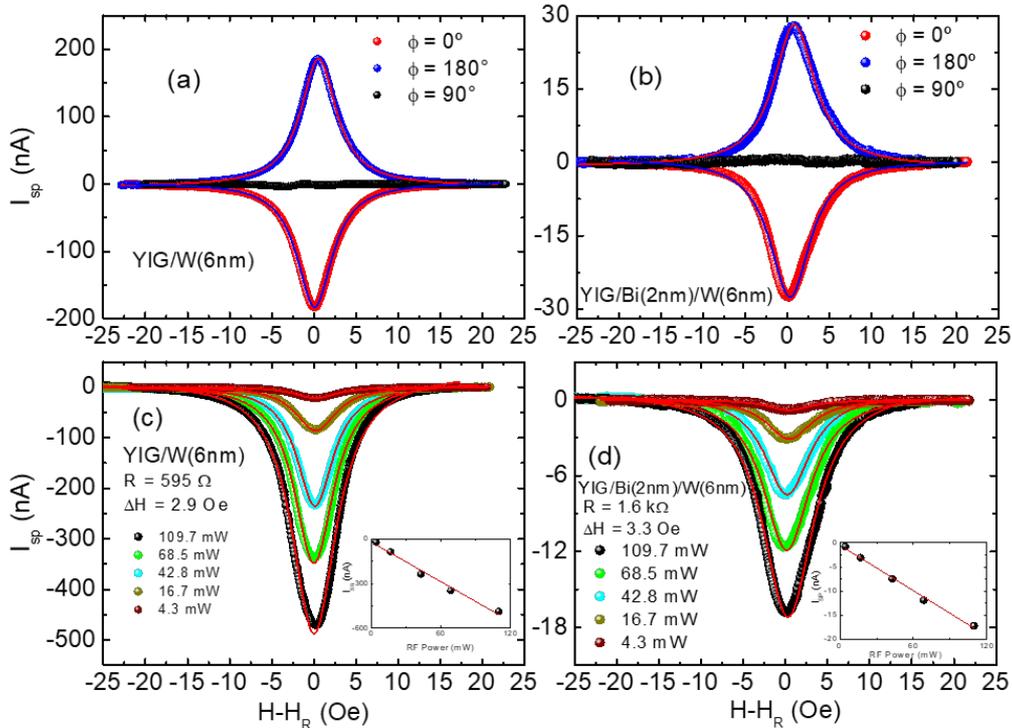
nm) mostradas nas Figuras 35a e 37a, onde  $I_{SP}^{(Pt)}(\phi = 0^\circ)$  é positivo e  $I_{SP}^{(W)}(\phi = 180^\circ)$  é negativo, dado pelos símbolos azuis. Como esperado, a corrente de spin flui através da camada de Bi, atingindo a camada W, como na estrutura YIG/Bi(2 nm)/Pt(6 nm), e sendo convertida em uma corrente de carga com ângulo Hall de spin negativo. As Figuras 37(a)-(d) mostram sinais de SP em em YIG/W(6 nm) e YIG/Bi(2 nm)/W(6 nm) em função de três posições angulares (Figuras 37(a)-(b)) e cinco potências de RF (Figuras 37(c)-(d)). As inserções nas Figuras 37(c)-(d) também indicam que o sistema está no regime linear de excitação.

#### 5.1.4 Interpretação

##### Relaxação de spin no Bi

Curiosamente, o sinal ISHE diminui repentinamente com  $t_{Bi}$ , conforme mostrado na Figura 38. A Figura 38a compara as medidas de SP das estruturas YIG/Bi( $t_{Bi}$ )/Pt(6 nm) (Figura 35) para  $\vec{H}$  aplicado numa mesma posição angular ( $\phi = 0$ ), em que o decaimento dos valores máximos de  $I_{SP}$  seguem a tendência da Figura 38b. Para  $t_{Bi} = 8$  nm o sinal da corrente SP não atinge a camada superior de Pt, como também foi verificado no artigo discutido no Apêndice B (Figura 50), indicando que além de não converter a corrente de spin em corrente de carga, Bi apresenta um mecanismo de relaxamento de spin relevante. Como discutiremos na próxima seção, a acumulação de spin no Bi passa por um processo de relaxação que está relacionado com a intensa resposta diamagnética do meio. Com a ajuda do professor Ernesto Raposo, foi desenvolvido um modelo baseado na difusão não linear de corrente de spin que leva em conta a distribuição de Fermi-Dirac. Utilizando esse modelo, obtivemos um excelente ajuste da corrente de spin que atravessa a camada de Bi em função da espessura como mostra a linha preta da Figura 38b.

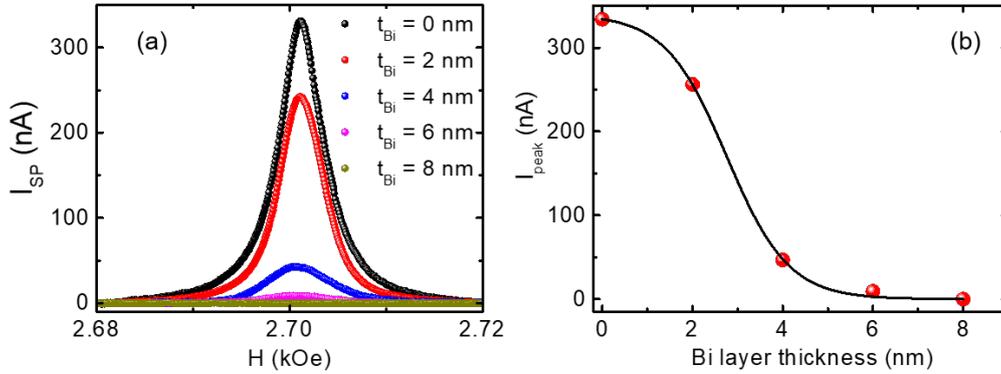
Figura 37 – As figuras (a)-(d) exibem os sinais SP medidos na camada superior de W em função (a)-(b) do campo aplicado e (c)-(d) da potência de RF. Todas as curvas de absorção foram centradas no valor do campo de ressonância  $H_R$ . As inserções (c)-(d) mostram a dependência linear do sinal SP em função da potência de RF.



Fonte: o autor (2022).

Como modelo, estamos assumindo que o forte diamagnetismo da camada de Bi fornece um canal de relaxação para o acúmulo de spin bombeado que ocorre no Bi devido ao processo SP. O campo magnético aplicado,  $\vec{H} = H_0 \hat{z}$  (ver Figura 32), induz um momento magnético local oposto no Bi, dado por  $\vec{\mu}_{Bi}(\vec{r}, t) = -\mu_{Bi}(\vec{r}, t) \hat{z}$ , que é oposto ao momento magnético fora de equilíbrio induzido pelo SP,  $\vec{\mu}_{SP}(\vec{r}, t) = \mu_{SP}(\vec{r}, t) \hat{z}$ . A interação entre o momento magnético devido à acumulação de spin e o momento magnético local na camada de Bi pode ser modelada pela interação de troca  $\vec{H}_{ex} = -\vec{B}_{Bi}(\vec{r}, t) \cdot \vec{\mu}_{SP}(\vec{r}, t)$ , onde  $\vec{B}_{Bi}(\vec{r}, t) = (2J/(g\mu_B)^2) \vec{\mu}_{Bi}(\vec{r}, t)$  é o campo magnético efetivo local sentido por  $\vec{\mu}_{SP}(\vec{r}, t)$  sendo  $\mu_B$  o magneton de Bohr e  $J$  a energia de troca. Assim, como o campo local efetivo aponta oposto ao campo externo  $\vec{H}$ , os momentos locais induzidos  $\vec{\mu}_{Bi}$  apontam antiparalelos aos momentos magnéticos bombeados  $\vec{\mu}_{SP}$ . Nós assumimos que os elétrons de condução (para os quais a polarização de spin bombeada é transferida) e os elétrons localizados de Bi (responsáveis pela resposta diamagnética) são graus de liberdade separados. O acoplamento de troca entre  $\vec{\mu}_{SP}(\vec{r}, t)$  e o reservatório diamagnético funciona como mecanismo de relaxação para a corrente de spin. À medida que a população de spin bombeada relaxa para espessuras maiores de camada de Bi, a corrente de spin que atinge a camada de Pt superior torna-se

Figura 38 – A figura (a) exibe os sinais SP medidos na camada superior da Pt em função da espessura ( $t_{\text{Bi}}$ ) do Bi. Os círculos vermelhos em (b) exibem os valores de pico da corrente SP mostrada em (a) e a linha sólida foi obtida com o melhor ajuste numérico usando a Equação 5.4.



Fonte: o autor (2022).

cada vez mais fraca. Portanto, a dependência da tensão ISHE medida na camada superior de Pt, como uma função da espessura da camada Bi, fornece uma pista para o fenômeno de relaxamento da corrente de spin em Bi. Além disso, como mencionado, a temperatura também é um ingrediente chave no mecanismo de relaxamento.

### Possíveis mecanismos

O problema de uma corrente de spin fluindo em uma camada de uma heteroestrutura magnética pode ser abordado através de modelos de difusão de partículas de spin [105–107]. Para explicar a dependência  $t_{\text{Bi}}$ , na Figura 38b, da corrente de spin que flui na camada de Bi e eventualmente atinge a camada superior de Pt, consideramos um modelo de difusão de Klein-Kramers modificado com características não lineares decorrentes do princípio de exclusão. Começamos denotando  $(\vec{r}, \vec{p})$  como as coordenadas do espaço de fase de uma partícula na corrente de spin com posição  $\vec{r}$ , momento linear  $\vec{p}$  e spin paralelo ao campo externo uniforme. O número de ocupação de tal estado no tempo  $t$  é  $n(\vec{r}, \vec{p}, t)$ . A evolução dinâmica estocástica de  $n$  é descrita pela equação mestra,

$$\frac{\partial n(\vec{r}, \vec{p}, t)}{\partial t} = \int \left[ \tau_{(\vec{r}', \vec{p}') \rightarrow (\vec{r}, \vec{p})} f(n(\vec{r}, \vec{p}, t)) n(\vec{r}', \vec{p}', t) - \tau_{(\vec{r}, \vec{p}) \rightarrow (\vec{r}', \vec{p}')} f(n(\vec{r}', \vec{p}', t)) n(\vec{r}, \vec{p}, t) \right] d\vec{r}' d\vec{p}', \quad (5.1)$$

onde, por exemplo,  $\tau_{(\vec{r}', \vec{p}') \rightarrow (\vec{r}, \vec{p})}$  representa a taxa de transição do estado  $(\vec{r}', \vec{p}')$  para  $(\vec{r}, \vec{p})$ . A função  $f(n(\vec{r}, \vec{p}, t))$  é introduzida para cumprir o princípio de exclusão, ou seja,  $f(n(\vec{r}, \vec{p}, t) = 1) = 0$ , de modo que a transição no tempo  $t$  para o estado  $(\vec{r}, \vec{p})$  é proibida se já estiver ocupado. (Para partículas clássicas sem spin não sujeitas ao princípio

de exclusão, a Equação 5.1 é a expressão usual [108] com  $f(n) = 1$ .) Empregamos a forma  $f(n(\vec{r}, \vec{p}, t)) = 1 - n(\vec{r}, \vec{p}, t)$  considerada em [109], que adiciona um caráter não linear à equação mestra linear padrão. Para os processos de transição permitidos pela Equação 5.1, os efeitos estocásticos das flutuações térmicas são levados em consideração na equação da dinâmica de Langevin [108],

$$\frac{d\vec{p}}{dt} = \vec{F} - \eta\vec{p} + \alpha\vec{\xi}, \quad (5.2)$$

onde  $d\vec{r}/dt = \vec{p}/m$  e  $\alpha = (2m\gamma k_B T)^{1/2}$  para uma partícula de massa  $m$  em um meio com temperatura absoluta  $T$ , coeficiente de amortecimento  $\eta$ , e sujeito a uma força  $\vec{F}$  e ruído branco Gaussiano  $\vec{\xi}(t)$  com autocorrelação temporal unitária de segunda ordem em cada direção.

Considere agora as transições entre os estados  $(\vec{r}', \vec{p}')$  para  $(\vec{r}, \vec{p})$  separados no tempo por  $dt \rightarrow 0$ . Por exemplo,  $(\vec{r}', \vec{p}') = (\vec{r}, \vec{p} + d\vec{p})$  representa uma mudança infinitesimal no momento linear da partícula devido a qualquer um dos possíveis mecanismos descritos na Equação 5.2 sem difusão. Por outro lado,  $(\vec{r}', \vec{p}') = (\vec{r} + d\vec{r}, \vec{p})$  representa uma partícula difundindo durante  $dt$  com momento inalterado. Neste cenário, as taxas de transição efetivas para mudanças, por exemplo, ao longo do eixo  $x$  são  $\tau_{(x \pm dx, p_x) \rightarrow (x, p_x)} dx \sim dx/dt = p_x/m$  e  $\tau_{(x, p_x \pm dp_x) \rightarrow (x, p_x)} dp_x \sim F_x - \gamma p_x/2 + \alpha^2/(2dp_x)$ . Mudanças infinitesimais simultâneas em  $\vec{r}'$  e  $\vec{p}'$  como  $dt \rightarrow 0$  são estatisticamente menos relevantes. Combinando as taxas de transição com a Equação 5.1 no limite  $dt \rightarrow 0$ ,  $dr \rightarrow 0$  e  $dp \rightarrow 0$ , obtém-se [109] a equação de Klein-Kramers modificada para uma partícula de spin com energia potencial  $U(\vec{r})$  no fluxo de corrente de spin,

$$\frac{\partial n(\vec{r}, \vec{p}, t)}{\partial t} = -\frac{\vec{p}}{m} \cdot \vec{\nabla}_{\vec{r}} [f(n)n] + \gamma \vec{\nabla}_{\vec{p}} \cdot [\vec{p}f(n)n] + \vec{\nabla}_{\vec{p}} \cdot [\vec{\nabla}_{\vec{r}} U(\vec{r})f(n)n] + \frac{\alpha^2}{2} \nabla_{\vec{p}}^2 n, \quad (5.3)$$

que se reduz à equação padrão de Klein-Kramers [108] para partículas clássicas sem spin com  $f(n) = 1$ , como esperado.

Escrevendo a energia total da partícula de spin como  $E(\vec{r}, \vec{p}) = \vec{p}^2/(2m) + U(\vec{r})$ , a solução estacionária ( $\partial n(\vec{r}, \vec{p}, t)/\partial t \rightarrow 0$ ) da Equação 5.3 no espaço livre pode ser encontrada por integração levando à distribuição de Fermi-Dirac (FD) [109],

$$n(\vec{r}, \vec{p}) = \frac{1}{e^{\beta[E(\vec{r}, \vec{p}) - \mu]} + 1}, \quad (5.4)$$

com  $\beta = (k_B T)^{-1}$  e  $\mu$  como o potencial químico para fixar a condição de normalização de  $n(\vec{r}, \vec{p})$ . Podemos convenientemente separar em  $E = E_0 + E_{ex}$  a contribuição da energia de interação de troca  $E_{ex}$  entre uma partícula de spin difundindo na camada Bi e os momentos magnéticos antiparalelos dos elétrons localizados do Bi responsáveis pela

resposta diamagnética (o reservatório diamagnético, veja acima). Em uma aproximação tipo campo médio com constante de acoplamento de troca independente de  $\vec{r}$  e área da seção transversal das camadas fixa, escrevemos  $E_{ex} = const \cdot t_{Bi}$ , com uma constante  $const$  positiva devido aos spins opostos de Bi e da partícula no fluxo de corrente. Sendo assim, a corrente de spin que atinge a camada Pt é efetivamente dada por

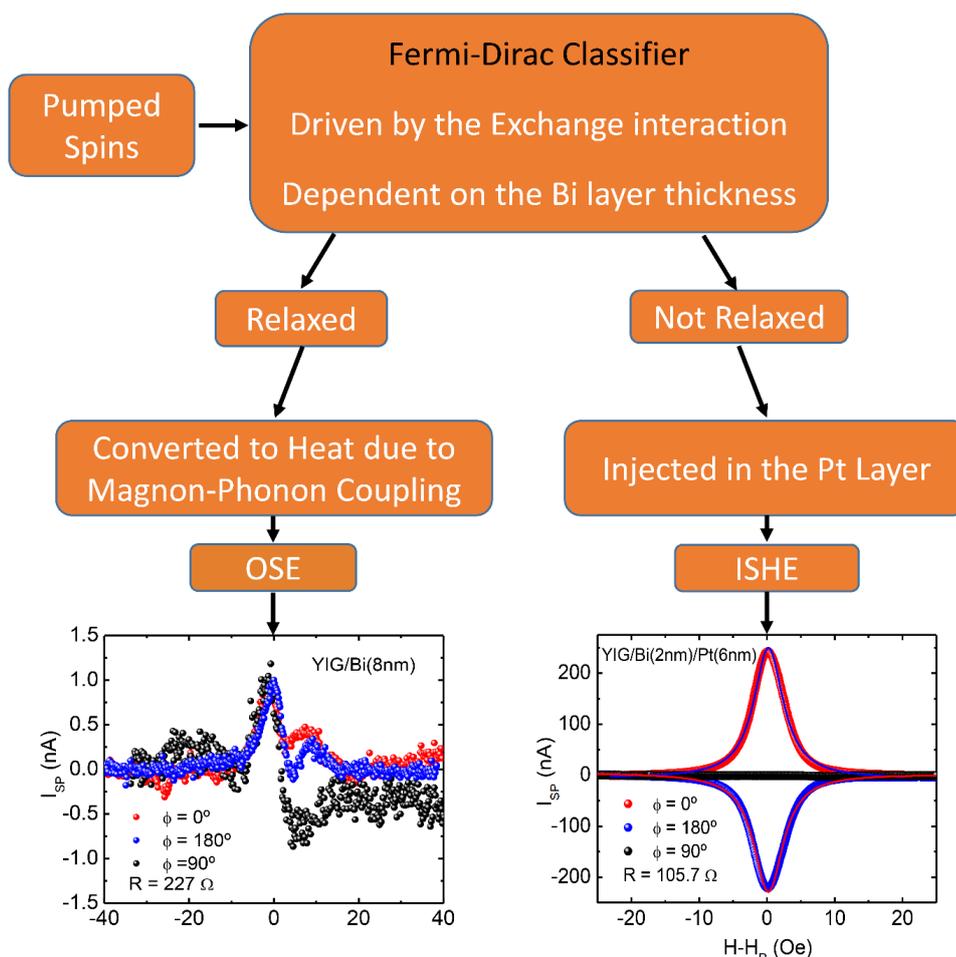
$$I_{SP}(t_{Bi}) = \frac{I_{SP}^*}{e^{(t_{Bi}-t_{\mu})/t^*} + 1}, \quad (5.5)$$

onde  $I_{SP}^*$  é uma constante e as espessuras efetivas  $t^*$  e  $t_{\mu}$  são respectivamente mapeadas na temperatura e potencial químico de uma distribuição FD. Como indicado na Equação 5.5, o acoplamento de troca entre as partículas da corrente de spin e o reservatório diamagnético dá origem a uma relaxação efetiva relevante da corrente de spin, mostrada na Figura 38b para grandes espessuras de camadas de Bi  $t_{Bi}$ . Na verdade, como visto na Figura 38b, definindo  $t^* = 0,68$  nm e  $t_{\mu} = 2,76$  nm, obtemos um excelente ajuste para os dados experimentais usando a Equação 5.5 foi obtido.

Uma consequência interessante da Equação 5.5 é a possibilidade de mapear o problema de uma corrente de spin, relaxando de acordo com uma distribuição FD, em um problema de classificação binária relatado recentemente em [110]. A classificação binária é um dos principais problemas na pesquisa de aprendizado de máquina [110, 111]. Nesse tipo de problema, a resposta do sistema é restrita a um dos dois resultados possíveis, que são componentes de dois conjuntos de valores disjuntos. De fato, existem apenas dois resultados possíveis na interface superior Bi/Pt para as partículas de spin que são injetadas através da interface inferior YIG/Bi: a uma certa distância da interface YIG/Bi, os spins bombeados irão (i) perder sua polarização por relaxamento ou (ii) difundir para cima para a interface Bi/Pt, eventualmente atingindo-a e sendo convertidas em uma corrente de carga na camada de Pt. Como mostrado na Referência [110], a distribuição FD é a resposta probabilística para classificadores binários em que a classificação pode ser mapeada no número de ocupação de um sistema de férmions com parâmetros efetivos apropriados. No presente caso, a Figura 39 mostra um fluxograma unidirecional para o processo de classificação binária responsável pela relaxação dos spins bombeados.

Neste contexto, uma boa pergunta deveria ser se a configuração do nosso sistema pode ser controlada de alguma forma. Primeiro, vamos lembrar que as flutuações térmicas desempenham um papel fundamental no acoplamento entre  $\vec{\mu}_{Bi}(\vec{r}, t)$  e  $\vec{\mu}_{SP}(\vec{r}, t)$ . Se o sistema magnético for rígido ( $T = 0K$ ), não haverá torque aplicado ( $\vec{\tau} \propto \vec{B}_{Bi} \times \vec{\mu}_{SP}$ ) aos spins bombeados pelo campo efetivo local, pois são exatamente antiparalelos. Considerando o parâmetro  $t^*$  em 5.4 como uma temperatura efetiva, o regime  $T = 0K$  corresponderia então a uma configuração do sistema com  $t_{Bi} = 0$ , para que todos os spins bombeados sejam prontamente injetados na camada de Pt,

Figura 39 – Fluxograma do processo de classificação binária na heteroestrutura YIG/Bi/Pt. Os spins são bombeados por SP para a camada de Bi e submetidos a um campo magnético uniforme, que gera uma textura de magnetização oposta à direção do campo. A interação de troca entre os momentos magnéticos dos elétrons do Bi e as partículas de spin,  $\vec{\mu}_{Bi}$  e  $\vec{\mu}_{SP}$ , respectivamente, atua como um mecanismo de relaxação, que depende da temperatura do sistema. Para  $0 < t_{Bi} < 8nm$ , parte dos spins relaxará para a rede dando origem ao sinal OSE, enquanto os spins que não relaxarem serão injetados através da interface Bi/Pt produzindo o sinal SP.



Fonte: o autor (2022).

pois a distribuição FD é uma função degrau neste caso. Por outro lado, se  $T > 0K$ , as flutuações térmicas acionarão o mecanismo de relaxação, e esta situação corresponderia a uma espessura finita de camada Bi em que nem todas as partículas de spin injetadas são capazes de atingir a interface Bi/Pt. Portanto, o valor de  $t^* = 0,68nm$  seria efetivamente mapeado para a temperatura ambiente do classificador FD. O outro parâmetro,  $t_\mu = 2,76nm$ , que é mapeado para o potencial químico, representa uma espessura limite acima da qual a maioria dos spins bombeados é amortecida para o banho térmico e abaixo do qual a maioria dos spins bombeados flui para a camada de Pt, sendo convertida em corrente de carga por meio do ISHE.

## 5.2 OUTROS RESULTADOS

Os resultados apresentados a seguir, são resultados preliminares de investigação quando ainda estávamos tentando entender o problema de conversão de corrente de spin em corrente de carga em Bi. Essa investigação preliminar já mostrava resultados inesperados para o Bismuto quando modificamos alguns parâmetros, tais como: espessura do YIG, espessura do Bi, substrato, potência da frequência de micro-ondas e interfaces. Por fim, são mostradas algumas medidas de SSE que não estão diretamente ligadas ao Bi mas que podem servir como um guia inicial para investigação da influência do efeito térmico em FM e NM.

### 5.2.1 Bi em YIG espesso

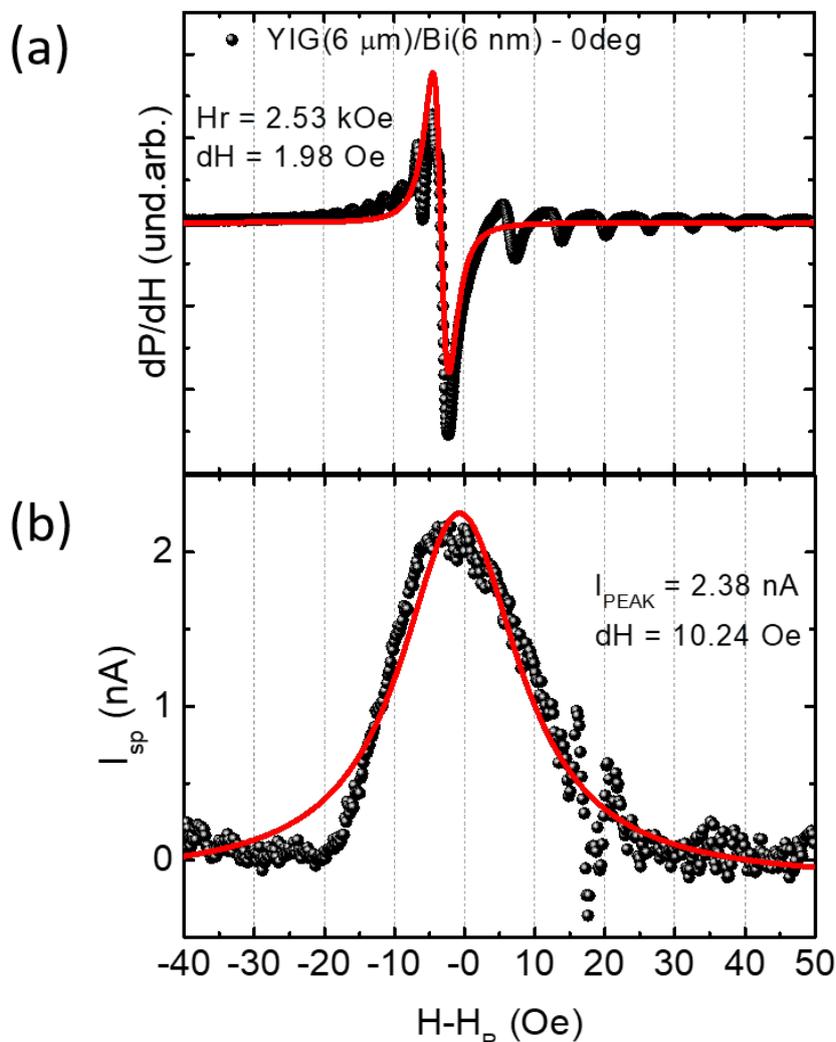
Bons substratos de YIG's são raros e muito valiosos em pesquisas de spintrônica. Para isso, além de gozar as vantagens de ser um FI, o YIG deve possuir: uma boa absorção das ondas de RF, uma baixa largura de linha e um modo ressonante principal bem definido. A obtenção destes atributos se devem principalmente ao método de fabricação, a qualidade dos compostos usados na preparação e ao tamanho da espessura. No presente caso, foi utilizado um YIG com espessura considerável (6 micrômetros) e o sinal de absorção do modo uniforme não ficou bem resolvido por conta da excitação de modos magnetostáticos. Contudo, isto não torna o YIG descartável, se possuídas as duas primeiras propriedades comentadas acima ele ainda pode ser usado em outros experimentos que não utilizem excitação por micro-ondas, como no SSE por exemplo.

Um registro dos modos magnetostáticos é mostrado numa medida de FMR em YIG(6 microns)/Bi(6 nm) na Figura 40a. Note que a espessura de 6 micrômetros do YIG usado neste caso é imensamente maior que os 40nm do YIG usado na seção anterior. Perceba também que no ajuste numérico do modo principal do FMR é dado um valor de largura de linha de 1.98 Oe para este YIG, enquanto que o ajuste da medida de SP da amostra sobre as mesmas condições (Figura 40b), fornece um valor de dH cerca de 5x maior. Isto acontece porque o resultado obtido na Figura 40b é produto da contribuição térmica de todos os modos excitados em torno do modo uniforme apresentados na Figura 40a. Como discutido na seção anterior, além do sinal ISHE gerado por bismuto não ser explicado pela Equação 2.14, ele possui um grande coeficiente Seebeck que contribui para geração de uma tensão de origem térmica associada ao OSE, Figura 40b. Um outro resultado que também evidencia que a origem do sinal de SP do bismuto é térmica e não é devido ao ISHE é descrito a seguir.

### 5.2.2 Regime de excitação não linear

Foram realizadas medidas de SP na bicamada YIG(40 nm)/Bi(15 nm) com o campo magnético aplicado nas direções  $\phi = 0^\circ$ ,  $90^\circ$  e  $180^\circ$  como mostra a Figura

Figura 40 – As figuras exibem (a) FMR por varredura de campo e (b) o sinal de SP medido na camada superior do Bi em YIG(6 microns)/Bi(6 nm). Todas as curvas de absorção foram centralizadas no valor do campo de ressonância  $H_R$ . Nesta escala vê-se o aumento da largura linha no sinal de SP devido a contribuição térmica dos modos magnetostáticos do YIG.

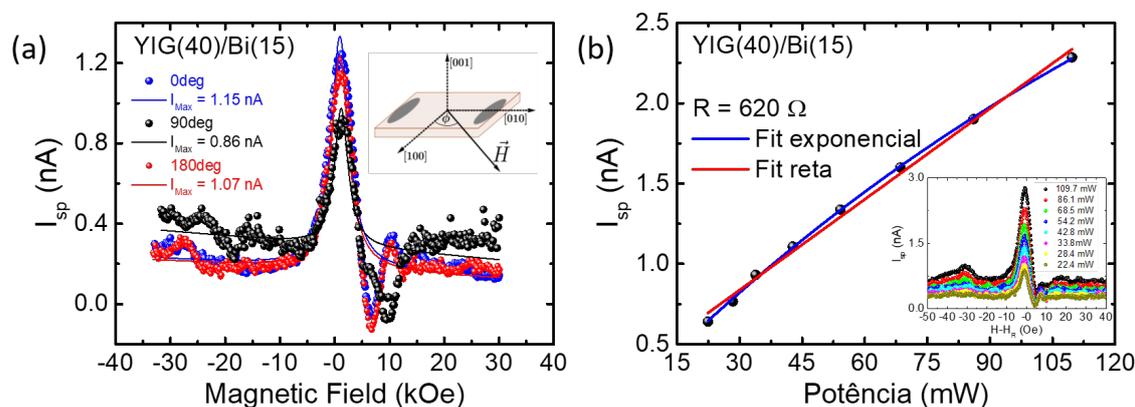


Fonte: o autor (2022).

41a. Na época, não ficou claro o porquê que os sinais não sofriam inversão ao mudar a direção do campo  $\vec{H}$  como definido pela Equação 2.14, assim foi dado início as investigações do que posteriormente seria observado várias vezes em estruturas do tipo YIG/Bi. Variando a potência de micro-ondas incidente de 22.4 mW à 109.7 mW com o campo  $\vec{H}$  aplicado a  $0^\circ$  do eixo de referência, foi verificado que o crescimento dos pontos de pico de corrente (inserção da Figura 41b), não seguiu uma tendência linear, como ocorreu com (YIG/Bi( $t_{\text{Bi}}$ )/Pt(6 nm) e YIG/Bi( $t_{\text{S}}$ )/W(6 nm), mostrado nas Figuras 37 e 36c-d respectivamente). Em vez disso, os pontos foram melhor ajustados por uma função exponencial (Figura 41b) indicando um regime não linear de excitação. A explicação mais provável é por efeito OSE, pois a dependência das  $I_{\text{SP}}$  não obedecem

a Equação 2.14.

Figura 41 – A figura exibe (a) os sinais SP medidos na camada superior de Bi em função do campo aplicado em YIG(40 nm)/Bi(15 nm). Os círculos pretos em (b) exibem os valores de pico da corrente SP mostrada na inserção de (b). Vê-se que a linha sólida do fit da exponencial, em azul, se ajusta melhor aos dados que o fit da reta, em vermelho, indicando uma dependência não linear do sinal SP em função da potência de RF.



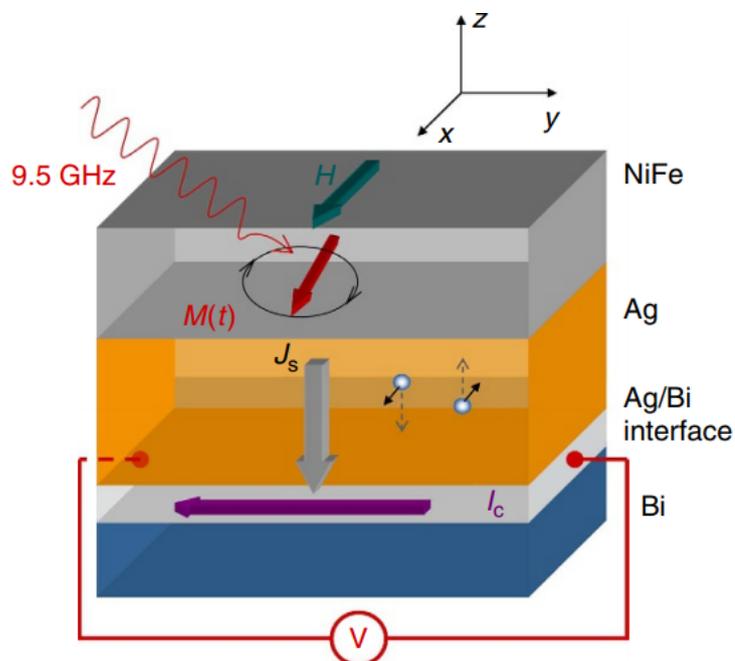
Fonte: o autor (2022).

### 5.2.3 Interface Bi/Ag

Um dos trabalhos que nos motivou a investigar a conversão de corrente de spin em corrente de carga, foi o artigo da Referência [87]. Nele é relatado uma alta eficiência na conversão spin-carga na interface Bi/Ag (na heteroestrutura Py/Bi/Ag), que é muito superior a que ocorre apenas em Bi ou Ag. A injeção da corrente de spin  $\vec{J}_S$  ocorre por meio do processo de spin pumping, na ressonância ferromagnética da camada de Py e a tensão  $V$  devido a conversão é lida na interface Bi/Ag, como mostra a Figura 42. Os autores atribuem este fenômeno ao efeito Rashba-Edelstein, que é, essencialmente, uma interação que ocorre em sistemas de gases de elétrons 2D degenerados. Nestes sistemas, a quebra de simetria de translação levanta degenerescência de spin e provoca o travamento entre as direções dos momentos linear de spin dos elétrons.

Para demonstrar que este efeito é devido a interface Rashba 2DEG, os autores investigaram a conversão spin-carga, (efeito Rashba-Edelstein). Foram realizadas medidas de SP nas estruturas Ag(10 nm)/NiFe(15 nm), Bi(8 nm)/NiFe(15 nm) e Bi(8 nm)/Ag(5 nm)/NiFe(15 nm) todas crescidas sobre substrato de Si com uma camada de 500 nm de  $\text{SiO}_2$  (Si/SiO<sub>2</sub>(500 nm)). Seguindo a mesma ideia fabricamos estruturas semelhantes depositadas em substratos de SiO<sub>x</sub>. Os resultados das nossas medidas também indicaram um aumento no sinal de SP na interface Ag/Bi, porém a magnitude do acréscimo não foi tão expressivo como o relatado na referência [87]. Os nossos resultados se mostraram bastante controversos. Os sinais de spin pumping mostrados na Figura 43a não fazem muito sentido. São muito largos e sem simetria definida.

Figura 42 – Esquema das amostras de NiFe/Ag/Bi sob ressonância. O campo de radiofrequência (RF) está ao longo de  $y$  e o campo DC ao longo de  $x$ .  $J_s$  é a corrente de spin DC vertical injetada nos estados da interface Ag/Bi e convertida em uma corrente de carga DC horizontal  $I_c$  pelo IREE.



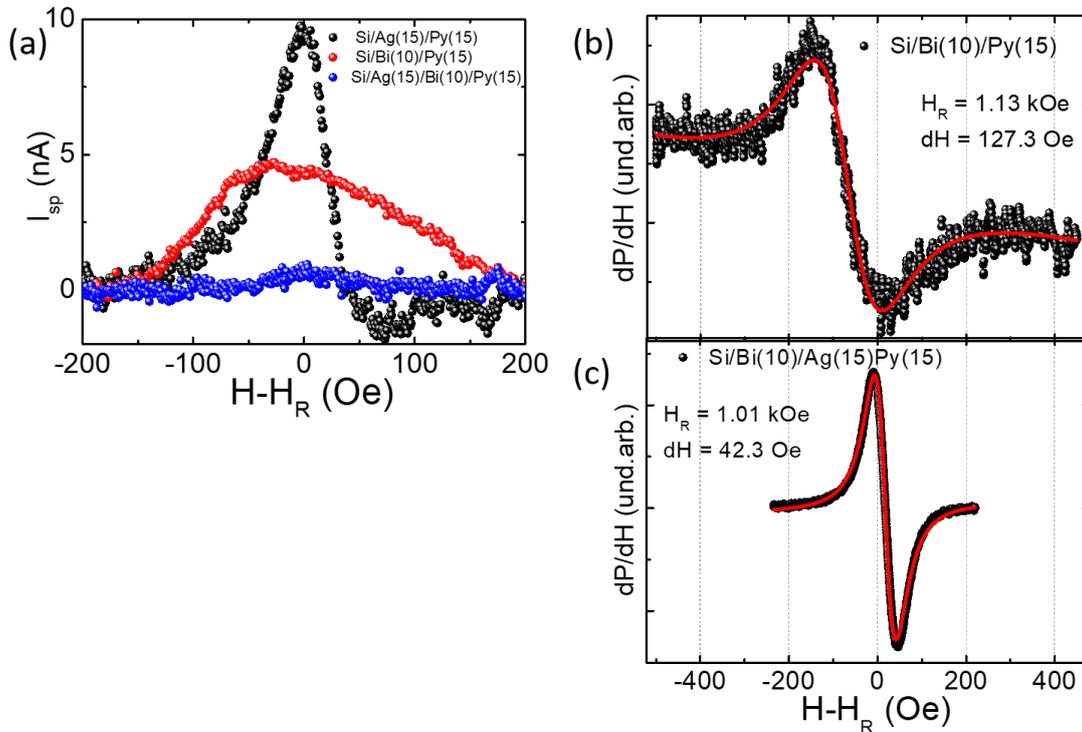
Fonte: retirado de [87].

Inclusive não foram detectados quaisquer sinais para uma das amostras. Seguramente essa heteroestrutura não é adequada para investigar o efeito Rashba-Edelstein na interface Bi-Ag. A camada metálica de Py introduz um sinal de retificação de spin que se superpõe aos sinais de SP gerados no volume e na interface Bi-Ag, além de existir o efeito térmico de OSE em Bi. Um outro resultado controverso foi o aumento da largura de linha de FMR (cerca de 200%) em Bi/Py, em comparação com Bi/Ag/Py (Figura 43b). Estes resultados confusos nos fizeram concluir que qualquer investigação de SP com metais magnéticos e Bi devem levar em consideração efeitos de aquecimento e tensões devido à retificação de spin.

#### 5.2.4 Resistividade em Si/Bi

Uma boa forma de verificar se as camadas depositadas de Bi são contínuas é através de medidas de resistência elétrica. Aplica-se uma corrente elétrica e mede-se a diferença de potencial entre dois eletrodos, usando o método de 4 pontas. A curva I-V deve ser linear para materiais ôhmicos e a sua inclinação fornece a resistência elétrica, como mostra a Figura 44a. É sempre um desafio medir propriedades de transporte eletrônico em filmes muito finos depositados por sputtering. O filme pode ser muito rugoso ou mesmo não ser um filme contínuo. Nesses casos as curvas I-V são não lineares.

Figura 43 – As Figuras exibem (a) os sinais SP medidos na camada superior de Py em função do campo aplicado em Py(15 nm)/Ag(15 nm), em preto, Py(15 nm)/Bi(10 nm), em vermelho e Py(15 nm)/Bi(10 nm)/Ag(15 nm), em azul e as varreduras de campo FMR em (b) Bi(10 nm)/Py(15 nm) e (c) Bi(10 nm)/Ag(15 nm)/Py(15 nm). Na escala das Figuras (b)-(c) vê-se o aumento da largura de linha responsável pelo alargamento do sinal vermelho em (a).



Fonte: o autor (2022).

Os valores de resistência quando medidos em função da espessura da camada, seguem o modelo proposto por Fuch e Sondheimer (FS) [112, 113]. A teoria de FS descreve a dependência da resistividade em filmes finos monocristalinos assumindo que o mesmo possui valores médios isotrópicos  $\lambda_0$  para o caminho médio [114]. Nela, todos os caminhos clássicos possíveis dos elétrons são integrados para prever o efeito do espalhamento de superfície na resistividade para um filme fino de espessura  $d$ , como mostra a Equação 5.6.

$$\frac{\rho}{\rho_{bulk}} = \left[ 1 - \frac{3\lambda_0(1-p)}{8d} \int_1^\infty (t^{-3} - t^{-5}) \frac{1 - e^{\kappa t}}{1 - pe^{\kappa t}} dt \right]^{-1}, \quad (5.6)$$

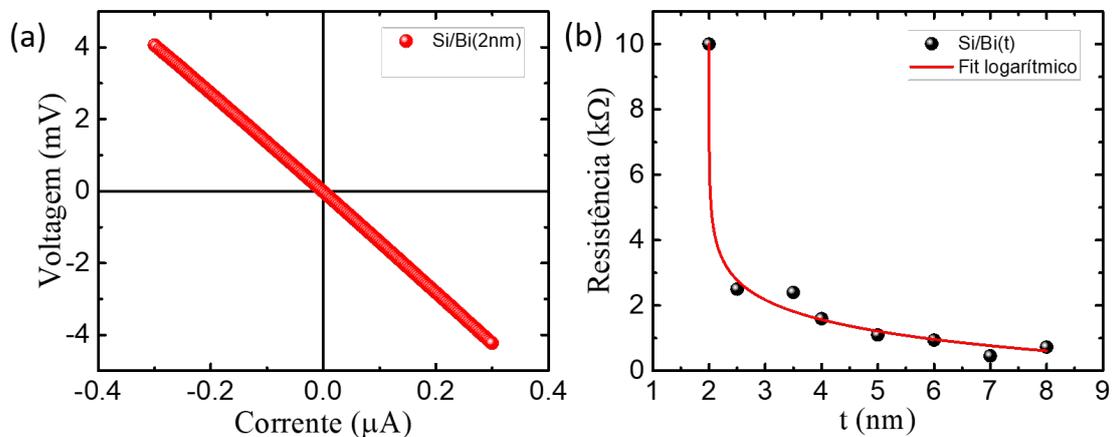
onde  $\rho = 1/\sigma$  é a resistividade medida na superfície do material,  $\rho_{bulk}$  é a resistividade do bulk monocristalino,  $\lambda_0$  é o livre caminho médio dos elétrons no bulk do material,  $p$  é o parâmetro de especularidade,  $d$  é a espessura do filme,  $\kappa = d/\lambda_0$  é a espessura reduzida e  $t = \cos^{-1}\Theta$ , onde  $\Theta$  é o ângulo entre o vetor velocidade do elétron e a direção  $\hat{z}$ , perpendicular a superfície do filme. O valor do parâmetro de especularidade  $p$  é limitado pela condição  $0 \leq p < 1$ , em que  $p = 0$  é o caso de espalhamento totalmente

difuso e  $p = 1$  é o caso de espalhamento totalmente especular. Para filmes muito finos, onde a espessura do filme é muito menor que o livre caminho médio ( $\kappa \ll 1$ ), vale a aproximação (5.7):

$$\frac{\rho}{\rho_{bulk}} = \frac{4}{3} \frac{1-p}{1+p} \frac{\lambda_0}{d} \left( \ln \frac{\lambda_0}{d} \right)^{-1}, \quad \kappa \ll 1 \quad (5.7)$$

Apesar do modelo de FS não fazer parte do escopo principal deste trabalho, pois seria necessário a fabricação de amostras com espessuras mais diversificadas e medidas em vácuo e em baixa temperatura para melhor acurácia dos resultados, foi verificada a tendência logarítmica da Equação 5.7 da resistência em função da espessura  $t$  (Figura 44b). Embora não seja extraído nenhum parâmetro relevante da Figura 44b, o fato das medidas de resistência reproduzirem a curva prevista pelo modelo FS bem como caráter ôhmico dos filmes, mostraram que as camadas de Bi crescidas pelo nosso processo são contínuas.

Figura 44 – A figura (a) exibe os sinais de tensão medidos na superfície do Bi em função da corrente elétrica aplicada. A dependência linear indica que o filme é contínuo. Os círculos pretos em (b) exibem os valores de resistência em função da espessura ( $t$ ) do Bi e a linha sólida é a que melhor se ajusta seguindo a tendência logarítmica da Equação 5.6.



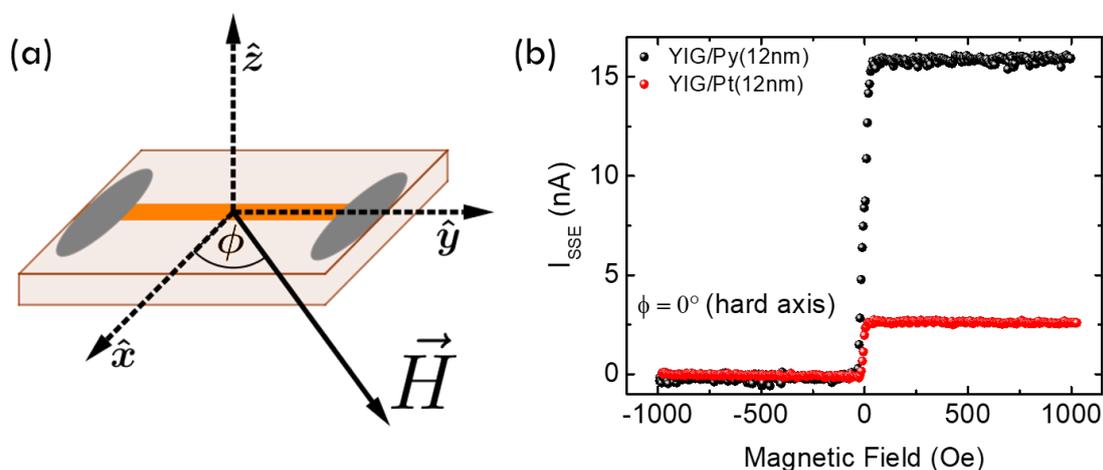
Fonte: o autor (2022).

### 5.2.5 Efeitos térmicos em YIG/Py(12) e YIG/Pt(12)

A fim de estudar o comportamento da magnetização entre materiais magnéticos e não magnéticos via bombeamento de spin por LSSE, foi crescida uma tira de Pt e outra de Py sobre substratos de YIG. A ideia inicial era criar linhas unidimensionais dos materiais, de forma a travar suas magnetizações ao longo de um único eixo (ex. [010]) (Figura 45a). Deste modo, ao aplicar o campo magnético na direção perpendicular a esta tira (eixo [100]), os resultados deveriam ser idênticos, contudo o sinal obtido no Py

foi cerca de 5x maior que o da Pt (Figura 45b), mostrando que não houve o travamento das magnetizações e que, de algum modo, a magnetização do Py foi acoplada a do YIG. Somado a isto, existem também os efeitos térmicos OSE, ONE e ANE sendo este último produzido apenas no Py. Como foi feita apenas uma análise muito preliminar desta etapa não foi concluído nada de importante, contudo vale uma pesquisa mais detalhada, tanto no desafio de travar as magnetizações quanto na investigação da influência dos efeitos térmicos sobre FM e NM, que fica como sugestão para os próximos trabalhos.

Figura 45 – A Figura (a) exibe o esquema das tiras de Py e Pt sobre YIG. O sinal deve ser máximo para  $\vec{H}$  aplicado ao longo do eixo da tira [010] e mínimo na direção perpendicular [100] e (b) medidas de SSE em YIG/Py(12 nm), em preto e YIG/Pt(12nm), em vermelho, ao longo do eixo [100]. O aumento no sinal do Py está associado ao acoplamento da magnetização do Py com a do YIG.



Fonte: o autor (2022).

## 6 CONCLUSÕES E PERSPECTIVAS

Em conclusão, nesta dissertação desvendamos o problema de longa data de conversão de spin em carga em bismuto usando a técnica SP. Ao contrário de muitos trabalhos publicados [79–98], concluímos que o Bi, apesar de ser o elemento não radioativo mais pesado com forte SOC, exibe conversão de spin-carga desprezível como proposto na Referência [1]. A tensão SP, que é gerada nas bicamadas YIG/Bi, na condição FMR, não pode ser explicada pela equação  $\vec{J}_C = (2e/\hbar)\theta_{SH}(\vec{J}_S \times \vec{\sigma})$ . Nós o atribuímos ao OSE devido ao pequeno  $\vec{\nabla}T$  no plano que é gerado nos filmes Bi devido ao pequeno aquecimento do filme YIG na condição FMR. Também adicionamos camadas superiores de Pt (ou W) à bicamada YIG/Bi e verificamos que a corrente de spin flui através da camada Bi, sem ser convertida em corrente de carga, e então é injetada na terceira camada. Neste caso, a camada superior de Pt ou W atua como spin para carregar os conversores de corrente como esperado. Também descobrimos que os spins bombeados relaxam para a rede por meio de um novo mecanismo de relaxação não trivial, de modo que para espessura de  $t_{Bi} \approx 8$  nm da camada de Bi, não há essencialmente nenhuma corrente de spin sendo injetada na camada superior de Pt.

Como o Bi possui a maior susceptibilidade diamagnética dentre os elementos [115], propomos um mecanismo de relaxação que se baseia na interação de troca local entre os spins bombeados e a resposta diamagnética do Bi ao campo magnético aplicado. Surpreendentemente, a heteroestrutura de YIG/Bi, na qual um acúmulo de spin é bombeado através da interface YIG/Bi, atua como um dispositivo de classificação binária, onde a função resposta obedece à distribuição de Fermi-Dirac, conforme proposto recentemente na Referência [110]. Ajustando a tensão SP medida na camada superior de Pt em função de  $t_{Bi}$ , pela Equação 5.5, conseguimos correlacionar os parâmetros extraídos efetivamente com propriedades intrínsecas do dispositivo YIG/Bi. Acreditamos que a investigação aqui relatada abrirá novas perspectivas envolvendo aspectos fundamentais das áreas de aprendizado de máquina e física da matéria condensada [110, 111].

Também desenvolvemos durante o período do mestrado, um sistema de epitaxia em fase líquida para fabricação de filmes de granadas de ferro e ítrio. Neste trabalho, descrevemos todo o processo de construção do LPE bem como dos acessórios necessários para manipulação. Ademais, comentamos sobre as adversidades que apareceram durante o desenvolvimento e quais as metodologias adotadas para resolvê-las.

Como sugestão de trabalhos futuros propomos o desenvolvimento dos resulta-

dos apresentados na Seção 5.2, cuja maioria é produto da linha de investigação usada para o estudo do processo de difusão do spin em camadas de Bi. Neles, mostramos 1) medidas de FMR e SP em função do campo em Bi sobre YIG de 6 microns (espessura muito superior a usada no escopo desta dissertação), 2) a tendência não linear dos pontos de pico de corrente em YIG(40 nm)/Bi(15 nm) em experimento de SP ao variar a potência de RF, 3) medidas de SP e FMR em interfaces do tipo Bi/Ag com o Py como gerador de corrente de spin, 4) a tendência logarítmica da resistividade do Bi em função da espessura e 5) as manifestações dos efeitos Seebeck e ANE em experimentos de LSSE em YIG/Py(12 nm) e YIG/Pt(12 nm). Diante destes resultados, como formas de continuação propomos 1) o estudo do comportamento do sinal de SP em função do campo ao variar a potência de RF em YIG(6 microns)/Bi, 2) o ajuste numérico de uma função exponencial aos picos de corrente de SP em YIG(40 nm)/Bi(15 nm) ao variar a potência de RF em um intervalo maior ao mostrado na Seção 5.2.2 para extração parâmetros físicos, 3) medidas de SP e FMR em interfaces do tipo Bi/Ag com o YIG como gerador de corrente de spin, 4) o ajuste numérico da equação de FS (Equação 5.7) a resistividade do Bi em função da espessura medidas a baixa temperatura para extração de parâmetros físicos e 5) a fabricação de linhas mais estreitas de diferentes FM e NM sobre YIG de modo a travar a magnetização da tira depositada e, a posteriori, a análise quantitativa dos efeitos térmico em experimentos de LSSE.

Os resultados publicados nesta dissertação em consonância com os do artigo publicado por Di Yue *et. al* reacendem a discussão sobre o papel do bismuto na conversão de spin-carga e isto significa que ainda há muito a ser descoberto. As contradições apontadas em trabalhos anteriores atribuindo o ganho do sinal do ISHE ao Bi precisam ser reavaliadas substituindo o material ferromagnético gerador de corrente de spin por um ferrimagnético. Neste trabalho, fica evidente a dependência de filmes de YIG para o desenvolvimento de pesquisas na área.

O sistema de LPE construído durante nossos estudos representa um grande ganho para o NUMAG. Devido ao curto prazo, infelizmente não foi possível fabricar e caracterizar os filmes de YIG a ponto de incluí-los neste trabalho, entretanto com os testes realizados durante este período acompanhado da experiência do professor orientador Antonio Azevedo garantem que serão colhidos bons frutos. Atualmente, vivemos na era de ouro da spintrônica. As recentes descobertas acerca de comportamentos estáticos e dinâmicos do spin e as crescentes demandas das mídias digitais por componentes de menores dimensões e alta velocidade de processamento, tornam este terreno muito fértil e promissor.

## REFERÊNCIAS

- [1] YUE, D.; LIN, W.; CHIEN, C. Negligible spin–charge conversion in bi films and bi/ag (cu) bilayers. *APL Materials*, AIP Publishing LLC, v. 9, n. 5, p. 050904, 2021. Citado 13 vezes nas páginas [3](#), [17](#), [23](#), [34](#), [67](#), [68](#), [71](#), [85](#), [111](#), [112](#), [113](#), [114](#) e [115](#).
- [2] BAIBICH, M. N. et al. Giant magnetoresistance of (001) fe/(001) cr magnetic superlattices. *Physical Review Letters*, APS, v. 61, n. 21, p. 2472, 1988. Citado na página [21](#).
- [3] GRADMANN, U. Magnetism in ultrathin transition metal films. *Handbook of magnetic materials*, Elsevier, v. 7, p. 1–96, 1993. Citado na página [21](#).
- [4] SIEGMANN, H. Surface and 2d magnetism. *Journal of Physics: Condensed Matter*, IOP Publishing, v. 4, n. 44, p. 8395, 1992. Citado na página [21](#).
- [5] GRÜNBERG, P. et al. Layered magnetic structures: evidence for antiferromagnetic coupling of fe layers across cr interlayers. *Physical Review Letters*, APS, v. 57, n. 19, p. 2442, 1986. Citado na página [21](#).
- [6] PARKIN, S.; MORE, N.; ROCHE, K. Oscillations in exchange coupling and magnetoresistance in metallic superlattice structures: Co/ru, co/cr, and fe/cr. *Physical Review Letters*, APS, v. 64, n. 19, p. 2304, 1990. Nenhuma citação no texto.
- [7] RÜHRIG, M. et al. Domain observations on fe cr fe layered structures. evidence for a biquadratic coupling effect. *physica status solidi (a)*, Wiley Online Library, v. 125, n. 2, p. 635–656, 1991. Nenhuma citação no texto.
- [8] HUBERT, A.; SCHÄFER, R. Magnetic domains springer. *Berlin, Heidelberg, New York, pgs*, v. 255, 1998. Citado na página [21](#).
- [9] CAPPER, P.; MAUK, M. *Liquid phase epitaxy of electronic, optical and optoelectronic materials*. [S.l.]: John Wiley & Sons, 2007. Citado na página [22](#).
- [10] HE, M.; SUN, H.; HE, Q. L. Topological insulator: Spintronics and quantum computations. *Frontiers of Physics*, Springer, v. 14, n. 4, p. 1–16, 2019. Citado na página [22](#).
- [11] PREMASIRI, K.; GAO, X. P. Tuning spin–orbit coupling in 2d materials for spintronics: a topical review. *Journal of Physics: Condensed Matter*, IOP Publishing, v. 31, n. 19, p. 193001, 2019. Citado na página [22](#).

- [12] ACOSTA, C. A. M. *O acoplamento Spin-Orbita no estudo de fases topológicas em uma rede hexagonal de baricentros*. Tese (Doutorado) — Universidade de São Paulo, 2013. Citado na página 25.
- [13] HALZEN, F.; MARTIN, A. D. *Quark & Leptons: An introductory course in modern particle physics*. [S.l.]: John Wiley & Sons, 2008. Citado na página 26.
- [14] BJORKEN, J. D.; DRELL, S. D. *Relativistic quantum mechanics*. [S.l.]: Mcgraw-Hill College, 1964, cap. 4. Citado na página 26.
- [15] HOFFMANN, A. Spin hall effects in metals. *IEEE transactions on magnetics*, IEEE, v. 49, n. 10, p. 5172–5193, 2013. Citado na página 27.
- [16] SINOVA, J. et al. Spin hall effects. *Reviews of modern physics*, APS, v. 87, n. 4, p. 1213, 2015. Citado na página 27.
- [17] DYAKONOV, M. I.; PEREL, V. Current-induced spin orientation of electrons in semiconductors. *Physics Letters A*, Elsevier, v. 35, n. 6, p. 459–460, 1971. Citado na página 27.
- [18] D'YAKONOV, M. I.; PEREL, V. Possibility of orienting electron spins with current. *Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics Letters*, v. 13, p. 467, 1971. Citado na página 27.
- [19] HIRSCH, J. Spin hall effect. *Physical Review Letters*, APS, v. 83, n. 9, p. 1834, 1999. Citado na página 27.
- [20] KATO, Y. K. et al. Observation of the spin hall effect in semiconductors. *science*, American Association for the Advancement of Science, v. 306, n. 5703, p. 1910–1913, 2004. Citado na página 27.
- [21] WUNDERLICH, J. et al. Experimental observation of the spin-hall effect in a two-dimensional spin-orbit coupled semiconductor system. *Physical Review Letters*, APS, v. 94, n. 4, p. 047204, 2005. Citado na página 27.
- [22] HALL, E. H. et al. On a new action of the magnet on electric currents. *American Journal of Mathematics*, v. 2, n. 3, p. 287–292, 1879. Citado na página 27.
- [23] HALL, E. H. Xviii. on the “rotational coefficient” in nickel and cobalt. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, Taylor & Francis, v. 12, n. 74, p. 157–172, 1881. Citado na página 27.
- [24] NAGAOSA, N. et al. Anomalous hall effect. *Reviews of modern physics*, APS, v. 82, n. 2, p. 1539, 2010. Citado na página 27.

- [25] BARLA, P.; JOSHI, V. K.; BHAT, S. Spintronic devices: a promising alternative to cmos devices. *Journal of Computational Electronics*, Springer, v. 20, n. 2, p. 805–837, 2021. Citado na página [29](#).
- [26] AZEVEDO, A. et al. dc effect in ferromagnetic resonance: Evidence of the spin-pumping effect? *Journal of applied physics*, American Institute of Physics, v. 97, n. 10, p. 10C715, 2005. Citado na página [30](#).
- [27] SAITOH, E. et al. Conversion of spin current into charge current at room temperature: Inverse spin-hall effect. *Applied Physics Letters*, American Institute of Physics, v. 88, n. 18, p. 182509, 2006. Citado na página [30](#).
- [28] TAKAHASHI, S.; MAEKAWA, S. Spin current, spin accumulation and spin hall effect. *Science and Technology of Advanced Materials*, IOP Publishing, v. 9, n. 1, p. 014105, 2008. Citado na página [31](#).
- [29] WANG, H. et al. Scaling of spin hall angle in 3d, 4d, and 5d metals from y 3 fe 5 o 12/metal spin pumping. *Physical Review Letters*, APS, v. 112, n. 19, p. 197201, 2014. Citado na página [31](#).
- [30] UCHIDA, K. et al. Observation of the spin seebeck effect. *Nature*, Nature Publishing Group, v. 455, n. 7214, p. 778–781, 2008. Citado na página [32](#).
- [31] BAUER, G. E.; SAITOH, E.; WEES, B. J. V. Spin caloritronics. *Nature Materials*, Nature Publishing Group, v. 11, n. 5, p. 391–399, 2012. Citado 2 vezes nas páginas [32](#) e [33](#).
- [32] BOONA, S. R.; MYERS, R. C.; HEREMANS, J. P. Spin caloritronics. *Energy & Environmental Science*, Royal Society of Chemistry, v. 7, n. 3, p. 885–910, 2014. Nenhuma citação no texto.
- [33] UCHIDA, K.-i. et al. Spin seebeck insulator. *Nature Materials*, Nature Publishing Group, v. 9, n. 11, p. 894–897, 2010. Nenhuma citação no texto.
- [34] UCHIDA, K. et al. Longitudinal spin seebeck effect: from fundamentals to applications. *Journal of Physics: Condensed Matter*, IOP Publishing, v. 26, n. 34, p. 343202, 2014. Nenhuma citação no texto.
- [35] UCHIDA, K.-i. et al. Observation of longitudinal spin-seebeck effect in magnetic insulators. *Applied Physics Letters*, American Institute of Physics, v. 97, n. 17, p. 172505, 2010. Citado na página [33](#).
- [36] MIAO, B. et al. Inverse spin hall effect in a ferromagnetic metal. *Physical Review Letters*, APS, v. 111, n. 6, p. 066602, 2013. Citado na página [32](#).

- [37] UCHIDA, K. et al. Thermal spin pumping and magnon-phonon-mediated spin-seebeck effect. *Journal of Applied Physics*, American Institute of Physics, v. 111, n. 10, p. 103903, 2012. Citado na página [32](#).
- [38] MENDES, J. et al. Large inverse spin hall effect in the antiferromagnetic metal ir 20 mn 80. *Physical Review B*, APS, v. 89, n. 14, p. 140406, 2014. Citado na página [32](#).
- [39] ZHANG, W. et al. Spin hall effects in metallic antiferromagnets. *Physical Review Letters*, APS, v. 113, n. 19, p. 196602, 2014. Citado na página [32](#).
- [40] XIAO, J. et al. Theory of magnon-driven spin seebeck effect. *Physical Review B*, APS, v. 81, n. 21, p. 214418, 2010. Citado na página [33](#).
- [41] ADACHI, H. et al. Linear-response theory of spin seebeck effect in ferromagnetic insulators. *Physical Review B*, APS, v. 83, n. 9, p. 094410, 2011. Citado na página [33](#).
- [42] REZENDE, S. et al. Magnon spin-current theory for the longitudinal spin-seebeck effect. *Physical Review B*, APS, v. 89, n. 1, p. 014416, 2014. Citado na página [33](#).
- [43] REZENDE, S. et al. Bulk magnon spin current theory for the longitudinal spin seebeck effect. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Elsevier, v. 400, p. 171–177, 2016. Citado 2 vezes nas páginas [33](#) e [34](#).
- [44] IGUCHI, R.; SAITOH, E. Measurement of spin pumping voltage separated from extrinsic microwave effects. *Journal of the Physical Society of Japan*, The Physical Society of Japan, v. 86, n. 1, p. 011003, 2017. Citado na página [35](#).
- [45] HUANG, S. et al. Pure spin current phenomena. *Applied Physics Letters*, AIP Publishing LLC, v. 117, n. 19, p. 190501, 2020. Citado na página [35](#).
- [46] CHUI, S.; LIU, S.; LIN, Z. Reflected wave of finite circulation from magnetic photonic crystals. *Journal of Physics: Condensed Matter*, IOP Publishing, v. 22, n. 18, p. 182201, 2010. Citado na página [35](#).
- [47] REZENDE, S. M. *Fundamentals of magnonics*. [S.l.]: Springer, 2020. v. 969. Citado 3 vezes nas páginas [40](#), [45](#) e [70](#).
- [48] GROVE, W. R. Vii. on the electro-chemical polarity of gases. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, The Royal Society London, n. 142, p. 87–101, 1852. Citado na página [41](#).
- [49] VACUUM, D. *MAGNETRON SPUTTERING*. 2022. Ur-  
<https://www.dentonvacuum.com/products/discovery/>. Citado na página [41](#).

- [50] MENDES, J. B. S. *Investigação de relaxação e anisotropias magnéticas em filmes obliquamente depositados*. Dissertação (Mestrado) — Universidade Federal de Pernambuco, 2009. Citado na página 42.
- [51] WUTTIG, M.; LIU, X. *Ultrathin metal films: magnetic and structural properties*. [S.l.]: Springer Science & Business Media, 2004. v. 206. Citado na página 42.
- [52] GRIFFITHS, J. H. Anomalous high-frequency resistance of ferromagnetic metals. *Nature*, Nature Publishing Group, v. 158, n. 4019, p. 670–671, 1946. Citado 2 vezes nas páginas 42 e 43.
- [53] KITTEL, C. Interpretation of anomalous larmor frequencies in ferromagnetic resonance experiment. *Physical Review*, APS, v. 71, n. 4, p. 270, 1947. Citado 2 vezes nas páginas 42 e 43.
- [54] KITTEL, C. On the theory of ferromagnetic resonance absorption. *Physical review*, APS, v. 73, n. 2, p. 155, 1948. Nenhuma citação no texto.
- [55] VLECK, J. H. V. Concerning the theory of ferromagnetic resonance absorption. *Physical Review*, APS, v. 78, n. 3, p. 266, 1950. Citado na página 42.
- [56] VILELA, G. d. S. *Geração e detecção de correntes puras de spin pelos efeitos de spin pumping e Seebeck de spin*. Tese (Doutorado) — Tese (Doutorado em Física)– Departamento de Física, Universidade Federal de Pernambuco, 2013. Citado na página 48.
- [57] TSERKOVNYAK, Y.; BRATAAS, A.; BAUER, G. E. Enhanced gilbert damping in thin ferromagnetic films. *Physical Review Letters*, APS, v. 88, n. 11, p. 117601, 2002. Citado 2 vezes nas páginas 48 e 49.
- [58] HONG, C. et al. Giant inverse spin hall effect in bi doped ptbi alloy. *Advanced Electronic Materials*, Wiley Online Library, v. 4, n. 8, p. 1700632, 2018. Citado 2 vezes nas páginas 49 e 51.
- [59] JÚNIOR, J. H. d. S. Fenômenos de spintrônica e magnônica em materiais magnéticos. Universidade Federal de Pernambuco, 2018. Citado 2 vezes nas páginas 49 e 50.
- [60] TSERKOVNYAK, Y. et al. Nonlocal magnetization dynamics in ferromagnetic heterostructures. *Reviews of Modern Physics*, APS, v. 77, n. 4, p. 1375, 2005. Citado na página 50.
- [61] SANTOS, O. A. Spintrônica em heteroestruturas magnéticas: Conversão recíproca de corrente de spin e corrente de carga. Universidade Federal de Pernambuco, 2018. Citado na página 50.

- [62] NETO, J. E. A. *Investigação de fenômenos spintrônicos: fabricação de estruturas micrométricas e submicrométricas utilizando litografia óptica*. Dissertação (Mestrado) — Universidade Federal de Pernambuco, 2020. Citado na página 50.
- [63] NELSON, H. Epitaxial growth from the liquid state and its application to the fabrication of tunnel and laser diodes. *RCA review*, v. 24, n. 4, p. 603–615, 1963. Citado na página 53.
- [64] FUSEYA, T. properties and diamagnetism of dirac electrons in bismuth. *J. Phys. Soc. Japan*, n. 84. Citado na página 67.
- [65] SCHINDLER, F. et al. Higher-order topology in bismuth. *Nature Physics*, Nature Publishing Group, v. 14, n. 9, p. 918–924, 2018. Citado na página 67.
- [66] JIANG, Y. et al. Fermi-level tuning of epitaxial sb<sub>2</sub> te<sub>3</sub> thin films on graphene by regulating intrinsic defects and substrate transfer doping. *Physical Review Letters*, APS, v. 108, n. 6, p. 066809, 2012. Nenhuma citação no texto.
- [67] BANSIL, A.; LIN, H.; DAS, T. Colloquium: Topological band theory. *Reviews of Modern Physics*, APS, v. 88, n. 2, p. 021004, 2016. Nenhuma citação no texto.
- [68] ZHANG, J. et al. Band structure engineering in (bi<sub>1-x</sub>sb<sub>x</sub>)<sub>2</sub>te<sub>3</sub> ternary topological insulators. *Nature Communications*, Nature Publishing Group, v. 2, n. 1, p. 1–6, 2011. Nenhuma citação no texto.
- [69] LI, C. van der Verve, Robinson JT, Liu Y, Li L, Jonker BT. electrical detection of charge-current-induced spin polarization due to spin-momentum locking in bi<sub>2</sub>se<sub>3</sub>. *Nature Nanotechnology*, v. 9, p. 218, 2014. Nenhuma citação no texto.
- [70] MIRON, I. et al. Nature 476 189 Liu I, Lee OJ, Gudmundsen TJ, Ralph DC and Buhrman RA 2012. *Phys. Rev. Lett*, v. 109, p. 096602, 2011. Nenhuma citação no texto.
- [71] MENDES, J. et al. Dirac-surface-state-dominated spin to charge current conversion in the topological insulator (bi<sub>0.22</sub>sb<sub>0.78</sub>)<sub>2</sub> te<sub>3</sub> films at room temperature. *Physical Review B*, APS, v. 96, n. 18, p. 180415, 2017. Nenhuma citação no texto.
- [72] MENDES, J. et al. Unveiling the spin-to-charge current conversion signal in the topological insulator bi<sub>2</sub> se<sub>3</sub> by means of spin pumping experiments. *Physical Review Materials*, APS, v. 5, n. 2, p. 024206, 2021. Nenhuma citação no texto.
- [73] CAMPOS, W. H. et al. Topological insulator particles as optically induced oscillators: toward dynamical force measurements and optical rheology. *ACS Photonics*, ACS Publications, v. 5, n. 3, p. 741–745, 2018. Nenhuma citação no texto.

- [74] CHUNG, D.; LI, Y. The determination of elastic constants using arbitrary directions in cubic and hexagonal crystals. *Physics Letters A*, Elsevier, v. 58, n. 2, p. 133–134, 1976. Nenhuma citação no texto.
- [75] LI, H. et al. Antiferromagnetic topological insulator  $\text{MnBi}_2\text{Te}_4$ : Synthesis and magnetic properties. *Physical Chemistry Chemical Physics*, Royal Society of Chemistry, v. 22, n. 2, p. 556–563, 2020. Nenhuma citação no texto.
- [76] XU, Y. et al. Higher-order topology of the axion insulator  $\text{EuIn}_2\text{As}_2$ . *Physical Review Letters*, APS, v. 122, n. 25, p. 256402, 2019. Citado na página 67.
- [77] HSU, C.-H. et al. Topology on a new facet of bismuth. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, National Acad Sciences, v. 116, n. 27, p. 13255–13259, 2019. Citado na página 67.
- [78] LIU, Y.; ALLEN, R. E. Electronic structure of the semimetals  $\text{Bi}$  and  $\text{Sb}$ . *Physical Review B*, APS, v. 52, n. 3, p. 1566, 1995. Citado na página 67.
- [79] FAN, J.; EOM, J. Direct electrical observation of spin hall effect in  $\text{Bi}$  film. *Applied Physics Letters*, American Institute of Physics, v. 92, n. 14, p. 142101, 2008. Citado 3 vezes nas páginas 70, 85 e 111.
- [80] HOU, D. et al. Interface induced inverse spin hall effect in bismuth/permalloy bilayer. *Applied Physics Letters*, American Institute of Physics, v. 101, n. 4, p. 042403, 2012. Citado na página 118.
- [81] EMOTO, H. et al. Conversion of pure spin current to charge current in amorphous bismuth. *Journal of Applied Physics*, American Institute of Physics, v. 115, n. 17, p. 17C507, 2014. Nenhuma citação no texto.
- [82] SANGIAO, S. et al. Control of the spin to charge conversion using the inverse rashba-edelstein effect. *Applied Physics Letters*, AIP Publishing LLC, v. 106, n. 17, p. 172403, 2015. Nenhuma citação no texto.
- [83] MATSUSHIMA, M. et al. Sizable spin-transfer torque in the  $\text{Bi}/\text{Ni}_80\text{Fe}_{20}$  bilayer film. *Applied Physics Letters*, AIP Publishing LLC, v. 117, n. 4, p. 042407, 2020. Nenhuma citação no texto.
- [84] EMOTO, H. et al. Transport and spin conversion of multicarriers in semimetal bismuth. *Physical Review B*, APS, v. 93, n. 17, p. 174428, 2016. Nenhuma citação no texto.
- [85] YUE, D. et al. Spin-to-charge conversion in  $\text{Bi}$  films and  $\text{Bi}/\text{Ag}$  bilayers. *Physical Review Letters*, APS, v. 121, n. 3, p. 037201, 2018. Citado 2 vezes nas páginas 114 e 116.

- [86] HIRAI, Y. et al. Terahertz emission from bismuth thin films induced by excitation with circularly polarized light. *Physical Review Applied*, APS, v. 14, n. 6, p. 064015, 2020. Nenhuma citação no texto.
- [87] SÁNCHEZ, J. et al. Spin-to-charge conversion using rashba coupling at the interface between non-magnetic materials. *Nature Communications*, Nature Publishing Group, v. 4, n. 1, p. 1–7, 2013. Citado 3 vezes nas páginas 80, 81 e 113.
- [88] ZHANG, W. et al. Spin pumping and inverse rashba-edelstein effect in nife/ag/bi and nife/ag/sb. *Journal of Applied Physics*, AIP Publishing LLC, v. 117, n. 17, p. 17C727, 2015. Nenhuma citação no texto.
- [89] NOMURA, A. et al. Temperature dependence of inverse rashba-edelstein effect at metallic interface. *Applied Physics Letters*, AIP Publishing LLC, v. 106, n. 21, p. 212403, 2015. Nenhuma citação no texto.
- [90] NIIMI, Y. et al. Extrinsic spin hall effects measured with lateral spin valve structures. *Physical Review B*, APS, v. 89, n. 5, p. 054401, 2014. Nenhuma citação no texto.
- [91] ISASA, M. et al. Origin of inverse rashba-edelstein effect detected at the cu/bi interface using lateral spin valves. *Physical Review B*, APS, v. 93, n. 1, p. 014420, 2016. Nenhuma citação no texto.
- [92] ZHANG, H. et al. Charge-to-spin conversion and spin diffusion in bi/ag bilayers observed by spin-polarized positron beam. *Physical Review Letters*, APS, v. 114, n. 16, p. 166602, 2015. Citado na página 113.
- [93] JUNGFLAISCH, M. et al. Interface-driven spin-torque ferromagnetic resonance by rashba coupling at the interface between nonmagnetic materials. *Physical Review B*, APS, v. 93, n. 22, p. 224419, 2016. Nenhuma citação no texto.
- [94] MATSUSHIMA, M. et al. Quantitative investigation of the inverse rashba-edelstein effect in bi/ag and ag/bi on yig. *Applied Physics Letters*, AIP Publishing LLC, v. 110, n. 7, p. 072404, 2017. Nenhuma citação no texto.
- [95] ZUCCHETTI, C. et al. Tuning spin-charge interconversion with quantum confinement in ultrathin bismuth films. *Physical Review B*, APS, v. 98, n. 18, p. 184418, 2018. Nenhuma citação no texto.
- [96] NIIMI, Y. et al. Giant spin hall effect induced by skew scattering from bismuth impurities inside thin film cubi alloys. *Physical review letters*, APS, v. 109, n. 15, p. 156602, 2012. Nenhuma citação no texto.

- [97] CHEN, C. et al. Generation and detection of pure spin current in an h-shaped structure of a single metal. *Physical Review Letters*, APS, v. 122, n. 1, p. 016804, 2019. Nenhuma citação no texto.
- [98] MASUDA, H. et al. Large spin-hall effect in non-equilibrium binary copper alloys beyond the solubility limit. *Communications Materials*, Nature Publishing Group, v. 1, n. 1, p. 1–8, 2020. Citado 3 vezes nas páginas 70, 85 e 111.
- [99] VANDAELE, K. et al. Thermal spin transport and energy conversion. *Materials Today Physics*, Elsevier, v. 1, p. 39–49, 2017. Citado na página 70.
- [100] HOSTLER, S. R. et al. Thermoelectric properties of pressed bismuth nanoparticles. *Superlattices and Microstructures*, Elsevier, v. 43, n. 3, p. 195–207, 2008. Citado na página 70.
- [101] CHENG, J. et al. Quantitative estimation of thermoelectric contributions in spin pumping signals through microwave photoresistance measurements. *Physical Review B*, APS, v. 103, n. 1, p. 014415, 2021. Citado na página 70.
- [102] YAMANOI, K.; YOKOTANI, Y.; KIMURA, T. Dynamical spin injection based on heating effect due to ferromagnetic resonance. *Physical Review Applied*, APS, v. 8, n. 5, p. 054031, 2017. Citado na página 70.
- [103] YAO, Y.; FANG, Z. Sign changes of intrinsic spin hall effect in semiconductors and simple metals: first-principles calculations. *Physical Review Letters*, APS, v. 95, n. 15, p. 156601, 2005. Citado na página 71.
- [104] PAI, C.-F. et al. Spin transfer torque devices utilizing the giant spin hall effect of tungsten. *Applied Physics Letters*, American Institute of Physics, v. 101, n. 12, p. 122404, 2012. Citado na página 71.
- [105] VALET, T.; FERT, A. Theory of the perpendicular magnetoresistance in magnetic multilayers. *Physical Review B*, APS, v. 48, n. 10, p. 7099, 1993. Citado na página 74.
- [106] TAKAHASHI, S.; MAEKAWA, S. Spin injection and detection in magnetic nanostructures. *Physical Review B*, APS, v. 67, n. 5, p. 052409, 2003. Nenhuma citação no texto.
- [107] CASANOVA, F. et al. Control of spin injection by direct current in lateral spin valves. *Physical Review B*, APS, v. 79, n. 18, p. 184415, 2009. Citado na página 74.
- [108] KAMPEN, N. G. V. *Stochastic processes in physics and chemistry*. [S.l.]: North-Holland, 2007. v. 3. Citado na página 75.

- [109] ROY, P. K. Derivation of a statistical model for classical systems obeying fractional exclusion principle. *arXiv preprint arXiv:2203.11077*, 2022. Citado na página 75.
- [110] KIM, S.-C. et al. The fermi–dirac distribution provides a calibrated probabilistic output for binary classifiers. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, National Acad Sciences, v. 118, n. 34, p. e2100761118, 2021. Citado 2 vezes nas páginas 76 e 85.
- [111] HASTIE, T. et al. *The elements of statistical learning: data mining, inference, and prediction*. [S.l.]: Springer, 2009. v. 2. Citado 2 vezes nas páginas 76 e 85.
- [112] SONDHEIMER, E. H. The mean free path of electrons in metals. *Advances in physics*, Taylor & Francis, v. 50, n. 6, p. 499–537, 2001. Citado na página 82.
- [113] SHENG, L.; XING, D.; WANG, Z. Transport theory in metallic films: crossover from the classical to the quantum regime. *Physical Review B*, APS, v. 51, n. 11, p. 7325, 1995. Citado na página 82.
- [114] PAZUKHA, I. M.; PROTSENKO, I. Y. Theoretical methods of investigation of thin film materials properties. Sumy State University, 2017. Citado na página 82.
- [115] NAVE, C. L. Magnetic properties of solids. hyperphysics. (<http://hyperphysics.phy-astr.gsu.edu/hbase/Tables/magprop.html>). Citado na página 85.
- [116] TSUKAHARA, Y. Ando, y. kitamura, h. emoto, e. shikoh, mp delmo, t. shinjo, and m. shiraishi. *Phys. Rev. B*, v. 89, p. 235317, 2014. Citado na página 111.
- [117] AZEVEDO, A. et al. Electrical detection of ferromagnetic resonance in single layers of permalloy: Evidence of magnonic charge pumping. *Physical Review B*, APS, v. 92, n. 2, p. 024402, 2015. Citado na página 111.
- [118] BENTMANN, H. et al. Origin and manipulation of the rashba splitting in surface alloys. *EPL (Europhysics Letters)*, IOP Publishing, v. 87, n. 3, p. 37003, 2009. Citado na página 113.
- [119] UCHIDA, K.-i. et al. Intrinsic surface magnetic anisotropy in  $\gamma$ -Fe<sub>50</sub>Mn<sub>50</sub> as the origin of low-magnetic-field behavior of the spin seebeck effect. *Physical Review B*, APS, v. 92, n. 1, p. 014415, 2015. Citado na página 113.
- [120] WU, P.-H. et al. Effect of demagnetization factors on spin current transport. *Physical Review B*, APS, v. 102, n. 17, p. 174426, 2020. Citado na página 113.
- [121] TAO, X. et al. Self-consistent determination of spin hall angle and spin diffusion length in Pt and Pd: The role of the interface spin loss. *Science advances*, American Association for the Advancement of Science, v. 4, n. 6, p. eaat1670, 2018. Citado na página 116.

- [122] BANSAL, R. et al. Large spin hall angle in-w thin films grown on cofeb without oxygen plasma. Citado na página [116](#).
- [123] OROZCO-HERNÁNDEZ, G. et al. Structural, chemical and electrochemical studies of bismuth oxide thin films growth via unbalanced magnetron sputtering. *Surfaces and Interfaces*, Elsevier, v. 21, p. 100627, 2020. Citado na página [118](#).
- [124] KUMAR, P.; SINGH, J.; PANDEY, A. C. Rational low temperature synthesis and structural investigations of ultrathin bismuth nanosheets. *RSC advances*, Royal Society of Chemistry, v. 3, n. 7, p. 2313–2317, 2013. Citado na página [118](#).

## APÊNDICE A – PROGRAMA DE AUTOMAÇÃO DO LPE

Versão comentada deste código disponível em: [github.com/KacioMello/LPE/blob/9f9e2c96f9a38f37466d9f6ce21afc16e2298fb0/LPE\\_v2.ino](https://github.com/KacioMello/LPE/blob/9f9e2c96f9a38f37466d9f6ce21afc16e2298fb0/LPE_v2.ino)

```
// --- Mapeamento de Hardware ---
#define butUp 10
#define butP 9
#define sensor0 11
#define sensor1 1
#define sensor2 4
#define slp2 5
#define stp1 3
#define dir1 2
#define slp1 8
#define stp 6
#define dir 7
#define MOTOR_STEPS 200

// --- Bibliotecas Auxiliares ---
#include <LiquidCrystal.h>
#include "DRV8825.h"

// --- Funcoes de controle do menu ---
void changeMenu();
void dispMenu();
void x_0();

// --- Funcoes de controle dos parametros ---
void Growth_rate();
void Growth_time();
void Spin_time_fast();
void Warming_time();
void Centrifuge_rate();

// --- Funcoes de execucao de movimentos---
void Run();
```

```
void Repair();
void repairing ();
void moving ();
void Warming();
void growth ();
void spin_fast ();
void Calibration();
void calibrating ();
void sensor1_height();
void sensor2_height();
void sensor3_height();
void readSelect(char option);

// --- Variaveis Globais ---
long int v1 = 0x00;
long int v2 = 0xC8;
unsigned long t1 = 0x00;
unsigned int t2 = 0x00;
unsigned long t3 = 0x00;
int d = 1;
long int i;
char menu = 0x01;
char submenu = 0x01;
char set1 = 0x00;
char sets2 = 0x00;
char sets3 = 0x00;
char c1 = 0x00;
boolean t_butUp, t_butP, bs2, bs3, c2;

byte seta[8] = {
    B11000,
    B11100,
    B11110,
    B11111,
    B11110,
    B11100,
    B11000,
    B00000
};
```

```

// --- Hardwares---
LiquidCrystal disp(19, 18, 17, 16, 15, 14);
DRV8825 stepper(MOTOR_STEPS, dir , stp);

// --- Configuracoes Iniciais ---
void setup()
{
  disp.begin(16, 2);
  pinMode(butUp, INPUT_PULLUP);
  pinMode(butP, INPUT_PULLUP);
  pinMode(sensor0, INPUT);
  pinMode(sensor1, INPUT);
  pinMode(sensor2, INPUT);
  disp.createChar(8, seta);
  bs2 = 0x00;
  bs3 = 0x00;
  c2 = 0x00;
  t_butUp = 0x00;
  t_butP = 0x00;

  pinMode(slp1, OUTPUT);
  digitalWrite(slp1, LOW);
  pinMode(slp2, OUTPUT);
  digitalWrite(slp2, LOW);
  pinMode(7, OUTPUT);
  stepper.begin(4500);
}

// --- Loop Infinito ---
void loop()
{
  x_0();
  changeMenu();
  dispMenu();
}

// --- Desenvolvimento das Funcoes Auxiliares ---

```

```

// --- Configuracoes do menu---
void x_0()
{
    if (digitalRead(sensor0) == HIGH) {
        digitalWrite(slp1, HIGH);
        stepper.move(16 * MOTOR_STEPS);
        digitalWrite(slp1, LOW);
    }
}
void changeMenu()
{
    if (!digitalRead(butUp)) t_butUp = 0x01;
    if (digitalRead(butUp) && t_butUp)
    {
        t_butUp = 0x00;
        disp.clear();
        menu++;
        if (menu > 0x08) menu = 0x01;
    }
}
void dispMenu()
{
    switch (menu)
    {
        case 0x01:
            Warming_time();
            break;
        case 0x02:
            Growth_rate();
            break;
        case 0x03:
            Centrifuge_rate();
            break;
        case 0x04:
            Growth_time();
            break;
        case 0x05:
            Spin_time_fast();
            break;
    }
}

```

```

    case 0x06:
        Run();
        break;
    case 0x07:
        Calibration();
        break;
    case 0x08:
        Repair();
        break;
}
}

// --- Configuracoes das funcoes de controle dos parametros ---
void Growth_time()
{
    disp.setCursor(0, 0);
    disp.print("Growth time");
    if (!digitalRead(butP)) t_butP = 0x01;
    if (t1 > 600) t1 = 0x00;
    if (digitalRead(butP) && t_butP)
    {
        t_butP = 0x00;
        set1++;
        t1 += 0x1E;
    }
    if (set1 > 1) set1 = 0x01;
    switch (set1)
    {
        case 0x01:
            disp.setCursor(0, 1);
            disp.print(t1);
            disp.print(" s ");
            break;
    }
}
void Growth_rate()
{
    disp.setCursor(0, 0);
    disp.print("Growth rate");
}

```

```
if (!digitalRead(butP)) t_butP = 0x01;
if (v1 > 200) v1 = 0x00;
if (digitalRead(butP) && t_butP)
{
    t_butP = 0x00;
    set1++;
    v1 += 0x0A;
}
if (set1 > 1) set1 = 0x01;
switch (set1)
{
    case 0x01:
        disp.setCursor(0, 1);
        disp.print(v1);
        disp.print(" rpm    ");
        break;
}
}
void Centrifuge_rate ()
{
    disp.setCursor(0, 0);
    disp.print("Centrifuge rate");
    if (!digitalRead(butP)) t_butP = 0x01;
    if (v2 > 1000) v2 = 0xC8;
    if (digitalRead(butP) && t_butP)
    {
        t_butP = 0x00;
        set1++;
        v2 += 0x64;
    }
    if (set1 > 1) set1 = 0x01;
    switch (set1)
    {
        case 0x01:
            disp.setCursor(0, 1);
            disp.print(v2);
            disp.print(" rpm    ");
            break;
    }
}
```

```

}
void Spin_time_fast()
{
    disp.setCursor(0, 0);
    disp.print("Spin off time");
    if (!digitalRead(butP)) t_butP = 0x01;
    if (t2 > 30) t2 = 0x00;
    if (digitalRead(butP) && t_butP)
    {
        t_butP = 0x00;
        set1++;
        t2 += 0x05;
    }
    if (set1 > 1) set1 = 0x01;
    switch (set1)
    {
        case 0x01:
            disp.setCursor(0, 1);
            disp.print(t2);
            disp.print(" s ");
            break;
    }
}
void Warming_time()
{
    disp.setCursor(0, 0);
    disp.print("Warming up time");
    if (!digitalRead(butP)) t_butP = 0x01;
    if (t3 > 600) t3 = 0x00;
    if (digitalRead(butP) && t_butP)
    {
        t_butP = 0x00;
        set1++;
        t3 += 0x0A;
    }
    if (set1 > 1) set1 = 0x01;
    switch (set1)
    {
        case 0x01:

```

```

        disp.setCursor(0, 1);
        disp.print(t3);
        disp.print(" s ");
        break;
    }
}

// --- Funcoes das funcoes de execucao de movimentos ---
void moving ()
{
    disp.setCursor(0, 0);
    disp.print("Moving... ");
    digitalWrite(slp1, HIGH);
    stepper.move(d * 16 * MOTOR_STEPS);
    digitalWrite (slp1, LOW);
}

void Warming()
{
    disp.setCursor(0, 0);
    disp.print("Warming time... ");
    delay(t3 * 1000);
    digitalWrite (slp2, HIGH);
    for (i = 100; i < v1 * 55 ; i = i + 100) {
        tone(stp1, i);
        delay(100);
    }
}

void growth ()
{
    d = -1;
    disp.setCursor(0, 0);
    disp.print("Growth... ");
    delay(t1 * 1000);
}

void spin_fast ()
{
    disp.setCursor(0, 0);
    disp.print("Spin off... ");
    for (i = v1 * 55; i < v2 * 55; i = i + 100) {

```



```

        case 0x01:
            Warming();
            break;
        case 0x02:
            spin_fast();
            break;
    }
}
if (!digitalRead(sensor1)) bs3 = 0x01;
// acionado? Seta flag
if (digitalRead(sensor1) && bs3)
{
    bs3 = 0x00;
    sets3++;
    switch (sets3)
    {
        case 0x01:
            growth ();
            break;
    }
}
}
else {
    digitalWrite (slp1 , LOW);
    digitalWrite (slp2 , LOW);
    disp.setCursor(0, 0);
    disp.print ("Completed  ");
}
}
}
}

//--- Repair ---
void Repair()
{
    disp.setCursor(0, 0);
    disp.print (" Repair");
    if (!digitalRead(butP)) t_butP = 0x01;
    if (digitalRead(butP) && t_butP)

```

```

{
  while (1) {
    if (digitalRead(sensor0) == LOW) {
      repairing ();
    }
    else {
      digitalWrite (slp1 , LOW);
      digitalWrite (slp2 , LOW);
      disp.setCursor(0, 0);
      disp.print("Press reset  ");
    }
  }
}
}

//--- Calibration ---

void Calibration ()
{
  disp.setCursor(0, 0);
  disp.print("Sensor height");
  calibrating ();
}
void calibrating ()
{
  if (!digitalRead(butP))  t_butP  = 0x01;
  if (digitalRead(butP) && t_butP)
  {
    t_butP = 0x00;
    submenu++;
    if (submenu > 0x03) submenu = 0x01;
  }
  switch (submenu)
  {
    case 0x01:
      disp.setCursor(0, 1);
      disp.write(8);
      disp.print("Sensor bottom  ");
      readSelect(1);

```

```

        break;
    case 0x02:
        disp.setCursor(0, 1);
        disp.write(8);
        disp.print("Sensor middle  ");
        readSelect(2);
        break;
    case 0x03:
        disp.setCursor(0, 1);
        disp.write(8);
        disp.print("Sensor top      ");
        readSelect(3);
        break;
    }
}
void readSelect(char option)
{
    if (!digitalRead(butUp) && !digitalRead(butP))
    {
        switch (option)
        {
            case 0x01: sensor1_height(); break;
            case 0x02: sensor2_height(); break;
            case 0x03: sensor3_height(); break;
        }
    }
}
void sensor1_height()
{
    while (1)
    {
        disp.clear();
        disp.setCursor(0, 0);
        disp.print("Bottom position  ");
        stepper.begin(500);
        if (digitalRead(sensor1) == LOW) {
            digitalWrite(slp1, HIGH);
            stepper.move(150);
            digitalWrite(slp1, LOW);
        }
    }
}

```

```
    }  
  }  
}  
void sensor2_height()  
{  
  while (1)  
  {  
    disp.clear();  
    disp.setCursor(0, 0);  
    disp.print("Middle position  ");  
    stepper.begin(500);  
    if (digitalRead(sensor2) == LOW) {  
      digitalWrite(slp1, HIGH);  
      stepper.move(150);  
      digitalWrite(slp1, LOW);  
    }  
  }  
}  
void sensor3_height()  
{  
  while (1)  
  {  
    disp.clear();  
    disp.setCursor(0, 0);  
    disp.print("Top position  ");  
    stepper.begin(500);  
    if (digitalRead(sensor0) == LOW) {  
      digitalWrite(slp1, HIGH);  
      stepper.move(150);  
      digitalWrite(slp1, LOW);  
    }  
  }  
}
```

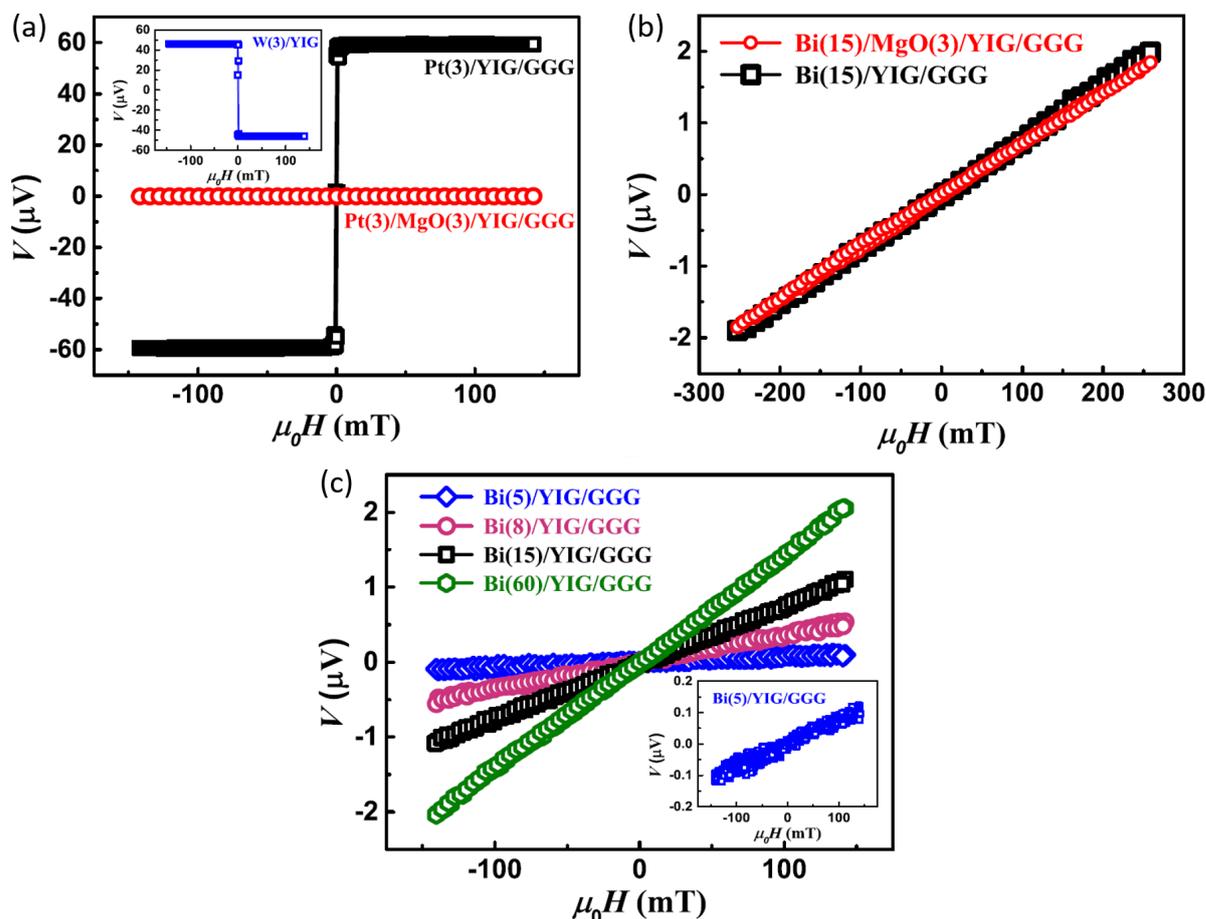
## APÊNDICE B – NEGLIGIBLE SPIN–CHARGE CONVERSION IN BI FILMS AND BI/AG(CU) BILAYERS [1] - REVISÃO DA LITERATURA

Em 2021, foi publicado um artigo mostrando que o bismuto possuía conversão spin-carga desprezível, contrariando diversos resultados de trabalhos anteriores [79–98], os quais mostravam uma alta eficiência na transformação  $\vec{J}_S \rightarrow \vec{J}_C$  em camadas de Bi e em interfaces Bi/Ag(Cu). A principal razão de medições controversas, provavelmente está relacionada ao uso de camadas de metal ferromagnético (FM) como injetor de spin na camada de Bi. Se as técnicas de spin pumping, acionado por micro-ondas, ou de efeito spin seebeck longitudinal, acionado por calor (LSSE), são empregadas para investigar a conversão de corrente de spin para carga em bicamadas FM/HM, surgem contribuições espúrias para o sinal que devem ser levadas em conta. Por exemplo, filmes de Permalloy (Py = Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>), sob ressonância ferromagnética (FMR), geram uma conversão de spin-carga auto-induzida que se sobrepõe à corrente de carga gerada pelo efeito Hall de spin inverso (ISHE), dificultando assim a análise do sinal de tensão detectado em bicamadas Py/HM [116, 117]. Os sinais estudados nesta seção, foram obtidos através de medidas de spin seebeck longitudinal (LSSE) (ver Figura 5). Nesta configuração, o gradiente de temperatura perpendicular  $\vec{\nabla}_Z$  faz com que o YIG injete uma corrente de spin pura  $\vec{J}_S$  na camada metálica adjacente (neste caso Bi ou Bi/HM), que é convertida via ISHE em corrente elétrica transversal  $\vec{J}_C$ , sendo detectada como tensão DC. A corrente injetada  $\vec{J}_S$  é paralela ao gradiente de temperatura e as medidas de tensão são associadas a um campo elétrico  $\vec{E}_{ISHE}$  que deve obedecer à relação  $\vec{E}_{ISHE} \propto \vec{J}_S \times \vec{\sigma}$ , em que  $\vec{\sigma}$  é a polarização de spin definida pela direção da magnetização  $\vec{M}$  da superfície de YIG.

No trabalho de Di Yue *et al.*, foram investigadas heteroestruturas de YIG/M<sub>1</sub>/M<sub>2</sub>, onde M<sub>1,2</sub> = Bi, Ag e Cu. Os autores usaram camadas de YIG monocristalinas (0,5 mm) e policristalinas (5 mm), ambos crescendo sobre GGG, formando estruturas do tipo FI/Bi/M. Devido ao seu baixo ponto de fusão (271 °C), o bismuto pode apresentar algumas dificuldades na fabricação por evaporação catódica, o que requer um pouco mais de cautela durante a produção dos filmes. Caso a potência aplicada nos magnétrons seja muito elevada, a taxa de deposição aumenta consideravelmente podendo produzir rugosidades, especialmente em camadas mais finas. Para isso, os autores realizaram medidas de refletividade de raio-x do artigo em questão, comprovando uma baixa rugosidade (cerca de 0,4 nm) nas camadas de Bi e nas interfaces Bi/HM. O Bi também oxida rápido em contato com o ar ambiente fazendo com que sua resistividade aumente consideravelmente em poucos dias, por isso as medidas devem ser realizadas logo após a fabricação do filme que deve ficar em vácuo antes da análise. Uma discussão

mais aprofundada acerca da oxidação do bismuto é mostrada no Apêndice C.

Figura 46 – Termovoltagens transversais em função do campo magnético aplicado no plano medido em (a) Pt(3 nm)/YIG/GGG e Pt(3 nm)/MgO(3 nm)/YIG/GGG, onde a inserção mostra os resultados em W(3 nm)/YIG/GGG, (b) Bi(15 nm)/YIG/GGG e Bi(15 nm)/MgO(3 nm)/YIG/GGG, e (c) Bi(5 nm)/YIG/GGG, Bi(8 nm)/YIG/GGG, Bi(15 nm)/YIG/GGG e Bi(60 nm)/YIG/GGG, onde a inserção mostra um gráfico ampliado das termovoltagens em Bi(5 nm)/YIG/GGG.



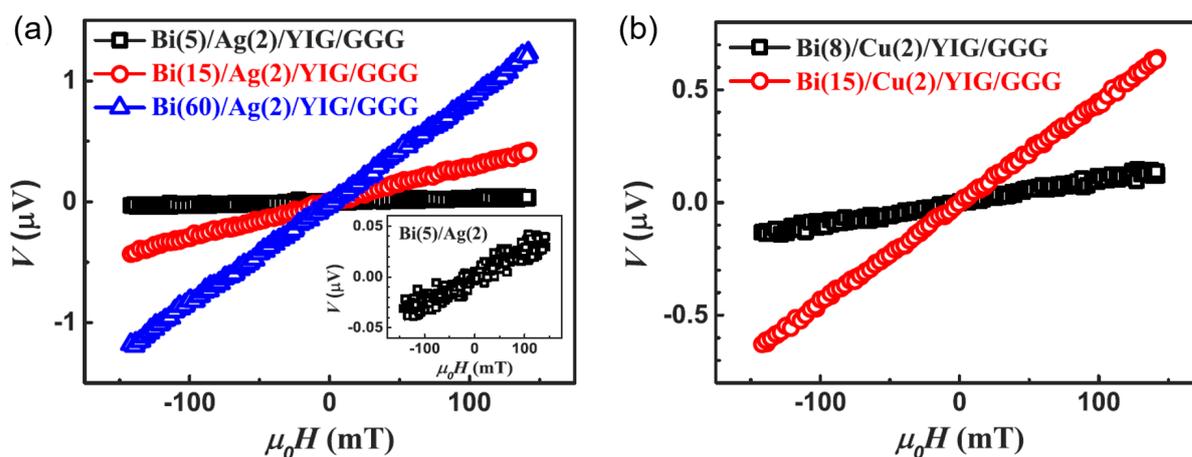
Fonte: retirado de [1].

A estratégia principal dos autores para verificar que a tensão obtida não era proveniente da conversão de  $\vec{J}_S$  em  $\vec{J}_C$ , foi utilizar um material isolante não magnético, como MgO ou  $\text{SiO}_2$ , para bloquear a corrente pura de spin. Assim, o sinal transmitido poderia ser devido a outras fontes, como as de origem térmica por exemplo, mas não por causa do ISHE. Através das medidas de LSSE em filmes de YIG/Pt(3 nm), YIG/W(3 nm) e YIG/MgO(3 nm)/Pt(3 nm), foi observada a inversão da curva de histeresse da Pt em relação ao W, verificando a oposição dos ângulos spin Hall e após a inserção de 3 nm de MgO entre o YIG e a platina, a tensão obtida foi zerada (Figura 46a). Com isso pôde-se atestar que a tensão medida inicialmente, sem o MgO, é de fato devido ao ISHE. Um outro comportamento foi observado ao se utilizar o Bi sobre YIG. Ao invés de ser exibido o sinal histerético comum em medidas de LSSE, foi obtido uma reta crescente com o campo aplicado (Figura 46b) que se manteve praticamente inalterada

após a inserção do MgO.

Claramente estes sinais não podiam ser devido ao ISHE. Em vez disso, essas são características do efeito Nernst comum (ONE), que não apenas surgiu em filmes de Bi como também se manifestou de modo não usual em comparação com outros metais comuns, como Ag e Pt. Ao invés de diminuir ao aumentar a espessura do material como é observado frequentemente, o ONE teve um aumento considerável ao aumentar a espessura do Bi em YIG/Bi(*t*), com *t* = 5, 8, 15 e 60 nm (Figura 46c). O mesmo aconteceu em YIG/Ag(2 nm)/Bi(*t*<sub>Ag</sub>) (Figura 47a) e YIG/Cu(2 nm)/Bi(*t*<sub>Cu</sub>) (Figura 47b), onde *t*<sub>Ag</sub> = 5, 15 e 60 nm e *t*<sub>Cu</sub> = 8 e 15 nm, em que o aumento de sinal foi atribuído a efeitos de interfaces em alguns trabalhos [87, 92, 118]. No trabalho em questão, os autores justificam o aumento do ONE no Bi, como sendo devido a sua baixa energia de Fermi e grande mobilidade eletrônica.

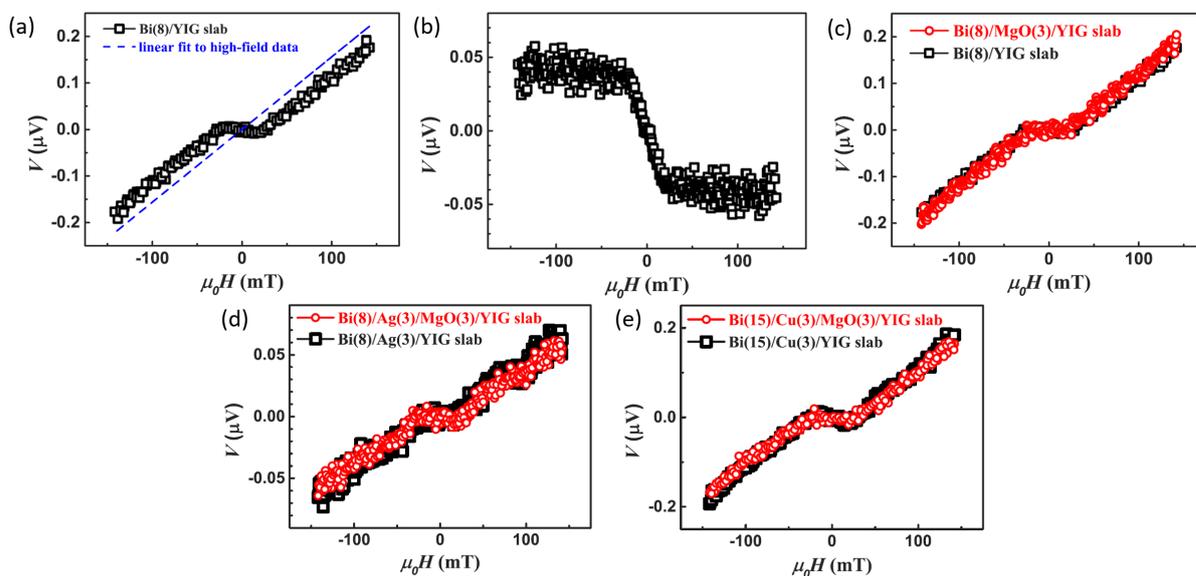
Figura 47 – Termovoltagens transversais em função do campo magnético aplicado no plano medido em (a) Bi(5 nm)/Ag(2 nm)/YIG, Bi(15 nm)/Ag(2 nm)/YIG, e Bi(60 nm)/Ag(2 nm)/YIG, onde a inserção mostra um gráfico ampliado das termovoltagens em Bi(5 nm)/Ag(2 nm)/YIG e b) Bi(8 nm)/Cu(2 nm)/YIG e Bi(15 nm)/Cu(2 nm)/YIG.



Fonte: retirado de [1].

Ao substituir o YIG monocristalino pelo YIG policristalino (YIG<sub>slab</sub>), obteve-se um resultado similar ao repetir as medidas de LSSE em estruturas do tipo YIG<sub>slab</sub>/Bi(8 nm). Desta vez, observou-se o surgimento de um platô em campos baixo (Figura 48a), que foi apontado como fruto da comutação dos domínios de superfície e efeitos de desmagnetização dos substratos comuns em YIG's deste tipo [119, 120]. Se subtraída a parte linear dependente do campo magnético (Figura 48b), o gráfico se assemelha ao de uma histeresse contudo não pode ser atribuído a corrente de spin, pois a medida original (Figura 48a) permanece inalterada mesmo após a inserção de 3 nm de MgO entre as camadas (Figura 48c). Um resultado idêntico foi obtido nas estruturas YIG/Ag(3 nm)/Bi(8 nm) e YIG/Cu(3 nm)/Bi(15 nm) como mostrado nas Figuras 48d e 48e, respectivamente.

Figura 48 – Termovoltagens transversais em função do campo magnético aplicado no plano medido (a) em Bi(8 nm)/YIG<sub>slab</sub> com a linha tracejada azul como o ajuste linear aos dados de alto campo. (b) As termovoltagens transversais residuais em Bi(8 nm)/YIG<sub>slab</sub> após a linha reta azul em (a) ter sido subtraída. Termovoltagens transversais em função do campo magnético aplicado no plano medido (c) em Bi(8 nm)/YIG<sub>slab</sub> e Bi(8 nm)/MgO(3 nm)/YIG<sub>slab</sub>, (d) em Bi(8 nm)/Ag(3 nm)/YIG<sub>slab</sub> e Bi(8 nm)/Ag(3 nm)/MgO(3 nm)/YIG<sub>slab</sub> e (e) em (b) Bi(15 nm)/Cu(3 nm)/YIG<sub>slab</sub> e Bi(15 nm)/Cu(3 nm)/MgO(3 nm)/YIG<sub>slab</sub>.

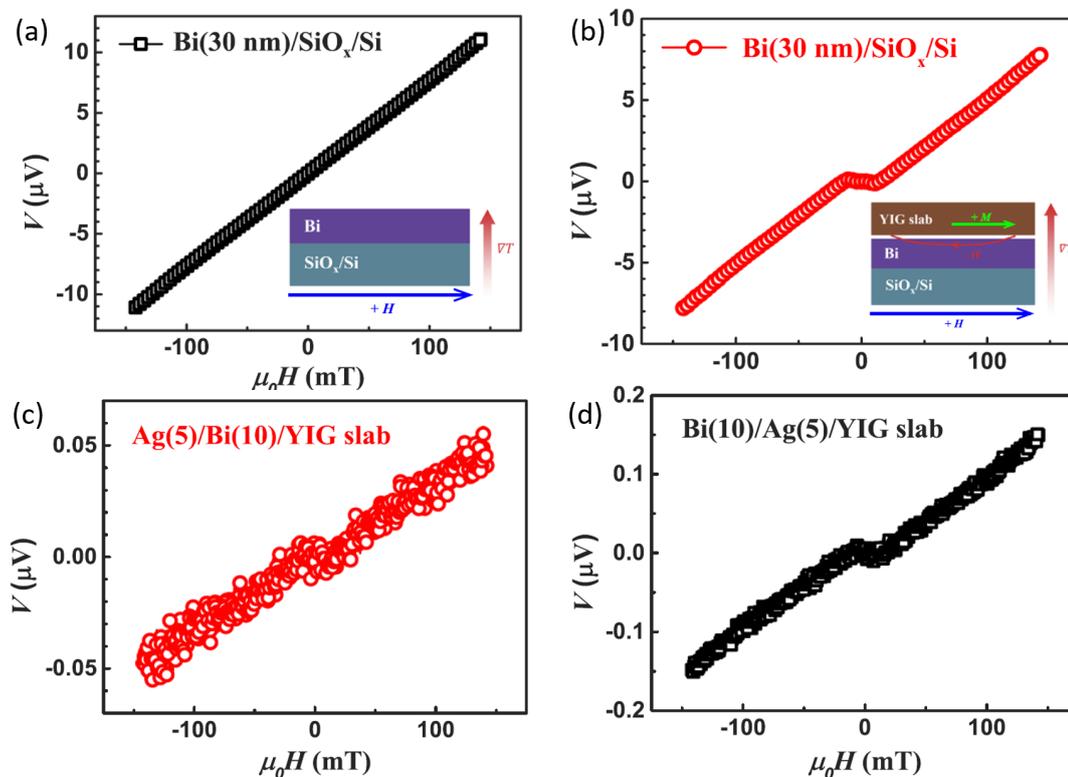


Fonte: retirado de [1].

Para demonstrar que o surgimento do platô é devido apenas ao YIG<sub>slab</sub>, na Figura 49 são apresentadas medidas de LSSE realizadas no arranjo Si/SiO<sub>x</sub>/Bi(30 nm). Em primeiro momento, é obtido um sinal linear (Figura 49a), similar as medidas em YIG cristalino (Figura 46b-c e 47). Em seguida, uma placa de YIG<sub>slab</sub> é colocada próxima ao filme de bismuto mas sem que haja contato, de forma a impossibilitar a injeção de  $\vec{J}_S$  do YIG no Bi, desse modo surge um platô ao repetir a aferição (Figura 49b). Com isso, o autor justifica que o aparecimento do platô não está relacionado a produção de  $\vec{J}_S$  mas sim a reversão da magnetização e as mudanças no campo disperso nas placas de YIG<sub>slab</sub> [85], que podem atuar nas propriedades de transporte em filmes de Bi. Um resultado similar foi obtido nas estruturas YIG<sub>slab</sub>/Ag(5 nm)/Bi(10 nm) e YIG<sub>slab</sub>/Bi(10 nm)/Ag(5 nm) (Figura 49c e Figura 49d, respectivamente).

Os experimentos realizados até então deveriam ser suficientes para demonstrar que não há conversão de corrente de spin em carga na interface YIG/Bi, todavia poderia ser que a corrente  $\vec{J}_S$  sequer tivesse sido injetada no Bi, desse modo não teria como haver ISHE. Para mostrar que isso não ocorre, foram realizadas medidas de LSSE em estruturas do tipo YIG<sub>slab</sub>/Bi( $t_{Bi}$ )/HM, com  $t_{Bi} = 2, 4$  e  $6$  nm e o HM sendo W(3 nm) ou Pt(3 nm) e assim como no caso anterior (Figura 46a), verificou-se a oposição do  $\theta_{SH}$  do W e da Pt em estruturas do tipo YIG<sub>slab</sub>/Bi(4 nm)/HM (Figura 50). Também observou-se que o sinal detectado no W caiu drasticamente ao aumentar a espessura do Bi, sendo

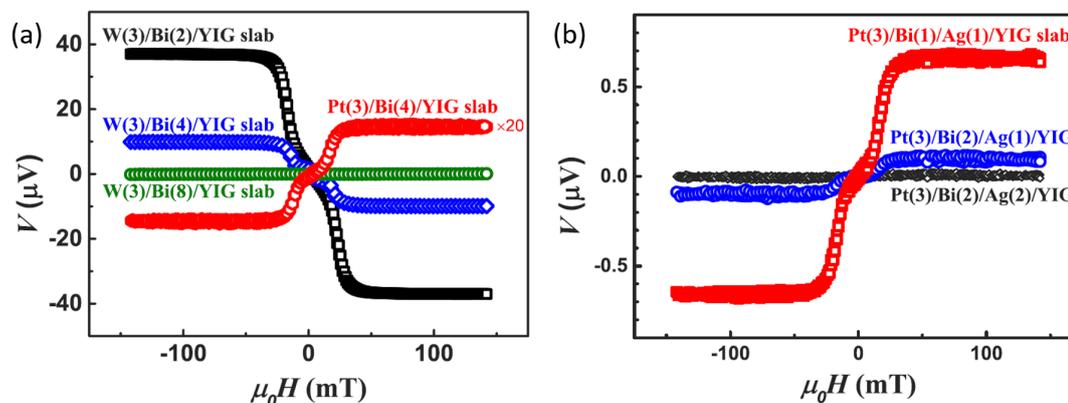
Figura 49 – Termovoltagens transversais em função do campo magnético aplicado no plano medido (d) em Bi(30 nm)/SiO<sub>x</sub>/Si, (e) em Bi(30 nm)/SiO<sub>x</sub>/Si após aproximação com YIG<sub>slab</sub>, d) em Ag(5 nm)/Bi(10 nm)/YIG<sub>slab</sub> e (e) em Bi(10 nm)/Ag(5 nm)/YIG<sub>slab</sub>.



Fonte: retirado de [1].

pouco detectável a  $t_{\text{Bi}} = 8\text{ nm}$  (Figura 50a). O mesmo foi visto em YIG<sub>slab</sub>/Ag(i)/Bi(j)/Pt(3 nm), onde  $i, j = 1$  e  $2\text{ nm}$ , com  $i \leq j$  (Figura 50b).

Figura 50 – Termovoltagens transversais em função do campo magnético aplicado no plano medido (f) em W(3 nm)/Bi(2 nm)/YIG<sub>slab</sub>, W(3 nm)/Bi(4 nm)/YIG<sub>slab</sub>, W(3 nm)/Bi(8 nm)/YIG<sub>slab</sub>, e Pt(3 nm)/Bi(4 nm)/YIG<sub>slab</sub> (escalonada por um fator de 20) e (b) em Pt(3 nm)/Bi(1 nm)/Ag(1 nm)/YIG<sub>slab</sub>, Pt(3 nm)/Bi(2 nm)/Ag(1 nm)/YIG<sub>slab</sub> e Pt(3 nm)/Bi(2 nm)/Ag(2 nm)/YIG<sub>slab</sub>



Fonte: retirado de [1].

As medidas de tensões apresentadas na Figura 50 são originadas do ISHE, em

que  $\vec{J}_S$  atravessou a camada Bi e foi convertida em  $\vec{J}_C$  nas interfaces de Bi/Pt e Bi/W. Em outras palavras, apesar da injeção de  $\vec{J}_S$  no Bi, a conversão spin-carga foi insignificante dentro dele, o que mostra que a sua eficiência é desprezível na atuação em fenômenos relacionados ao ISHE. Os autores estimaram em trabalhos anteriores, um limite superior de  $2 \times 10^{-5}$  para o  $\theta_{SH}$  do Bi, irrisório se comparado com o da Pt (0.3) e do W (-0.44) [121, 122]. Além dos filmes de Bi fabricados por sputtering, os idealizadores, também estudaram medidas de LSSE em filmes de Bi(111) monocristalino cultivados por MBE e filmes policristalino de Bi cultivados por evaporação térmica em substratos YIG, onde também foi observado apenas os sinais de Nernst e não foram encontradas evidências de conversão de spin para carga [85].

## APÊNDICE C – DETALHES EXPERIMENTAIS E CARACTERIZAÇÃO DAS AMOSTRAS

### PREPARAÇÃO DE AMOSTRAS E CONFIGURAÇÃO EXPERIMENTAL PARA AS MEDIÇÕES DE BOMBEAMENTO FMR E SPIN

Conforme mencionado no Capítulo 5, para realizar este trabalho produzimos as heteroestruturas YIG (40 nm)/Bi e YIG(40 nm)/Bi (0 a 10 nm)/HM, onde HM = Pt ou W. As amostras de YIG consistem em filmes de granada de ferro ítrio monocristalino (111) cultivados por epitaxia em fase líquida (LPE) em substratos  $Gd_3Ga_5O_{12}$  (GGG) orientados com 0,5 mm de espessura (111). É importante ressaltar que os filmes de YIG foram cultivados pela técnica LPE padrão a partir de um fundido supersaturado no qual  $Y_2O_3$  e  $Fe_3O_3$  são adicionados a um fluxo de  $PbO + B_2O_3$ . A qualidade das amostras YIG é atestada pela pequena largura de linha FMR, que é 2,97 Oe (Ver Figura 33 - curva superior preta). Todos os filmes YIG possuem dimensões laterais de 1,5 x 3,0 mm<sup>2</sup> com espessura de 40 nm. Os filmes metálicos foram depositados em DC-sputter à temperatura ambiente em atmosfera de argônio de 3 mTorr na configuração sputter-up, com o substrato a uma distância de 9 cm do alvo e com as seguintes taxas de deposição: 39,1 nm/min para Bi, 10,2 nm/min para Pt e 5,05 nm/min para W. A pressão de base foi de  $2,0 \times 10^{-7}$  Torr e um procedimento de pré-sputtering de cinco minutos foi usado para limpeza dos alvos.

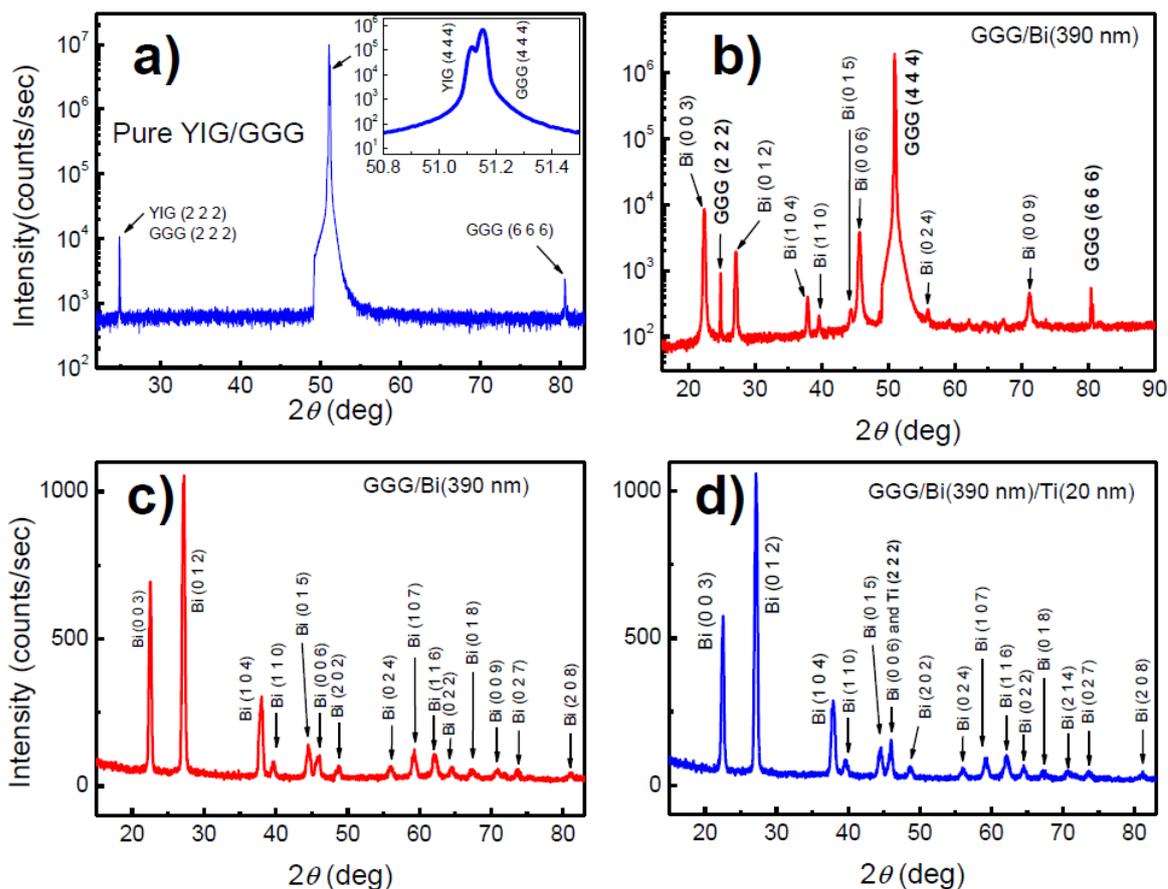
As medidas de ressonância ferromagnética (FMR) e spin bombeamento (SP) foram obtidas por meio de um espectrômetro de fabricação caseira, a amostra foi montada em uma ponta de uma haste de PVC que foi inserida através de um orifício perfurado no centro da parede traseira de um cavidade de micro-ondas operando no modo elétrico transversal ( $TE_{102}$ ), na frequência de 9,41 GHz com fator Q em torno de 2000. A amostra é levemente inserida na cavidade no plano da parede traseira, em posição de campo magnético rf máximo e campo elétrico rf mínimo para evitar a geração de efeitos galvânicos acionados pelo campo elétrico rf. Com esse arranjo, o campo magnético estático H e o campo de micro-ondas  $h_{rf}$  estão no plano do filme e são mantidos perpendiculares entre si enquanto a amostra é girada para as medições da dependência angular dos espectros de FMR e da tensão DC induzida pela conversão spin-carga. Os espectros de varredura de campo da derivada da absorção de micro-ondas  $dP/dH$  são obtidos modulando o campo em 1,2 kHz e usando detecção de bloqueio. O sinal SP foi obtido usando um nanovoltímetro (Keithley modelo 2182A) colocando dois contatos elétricos na borda das amostras com tinta prateada condutora. Devido à oxidação da camada de Bi, que será discutida nas próximas seções, todas as medidas foram feitas assim que a amostra foi retirada da câmara de vácuo.

## A DIFRAÇÃO DE RAIOS X DAS AMOSTRAS USADAS NESTE TRABALHO

A estrutura cristalográfica das amostras foi avaliada por medidas de difração de raios X, e os padrões de difração de raios X (XRD) foram registrados usando o difratômetro de raios X Rigaku, modelo Smartlab, com a radiação Cu K $_{\alpha}$  ( $\lambda = 1,5418$  Å). O padrão de XRD fora do plano detalhando a posição dos picos de um filme YIG típico usado neste trabalho e que foi cultivado em substrato GGG é mostrado na Figura 51a. Os resultados das medições de XRD indicam que o filme YIG é cultivado epitaxialmente no substrato GGG, demonstrando a excelente qualidade cristalina dos filmes. A Figura 51b mostra o padrão de varredura XRD  $\theta - 2\theta$  da amostra GGG (111)/Bi (390 nm), exibindo múltiplas reflexões associadas aos diferentes planos de cristal do filme de bismuto policristalino. O espectro de XRD também mostra os picos associados aos planos cristalinos (222), (444) e (666) do substrato GGG. A fim de otimizar a contribuição de espalhamento do Bi, usamos difração de raios-X de incidência rasante (GIXRD) para investigar as amostras de GGG/Bi. O padrão GIXRD da Figura 51c mostra claramente os picos de difração característicos do filme de Bi policristalino sem orientação preferencial, conforme relatado anteriormente [80, 123, 124]. Os resultados indicam que os filmes são preferencialmente policristalinos e os picos de difração foram identificados como bismuto metálico cristalizado na fase romboédrica que está indexada com base no cartão de dados ICSD 5000215. Conforme visto na Figura 51c, não foi possível identificar picos relacionados ao óxido de bismuto, bem como não foram encontrados picos de difração relacionados a outras fases de impureza nas amostras. As razões para não ter observado picos de óxido de bismuto pela técnica de XRD podem ser atribuídas às seguintes explicações: i) O oxigênio é incluído nas posições intersticiais da rede de bismuto produzindo apenas um pequeno deslocamento nos picos de difração que não podem ser claramente identificados; ii) Há uma grande diferença na massa atômica entre oxigênio e bismuto. Assim, os átomos de bismuto podem empurrar os átomos de oxigênio e dificultar o processo de oxidação. iii) Por último, as fases de óxido de bismuto podem ser formadas como uma fase amorfa que não pode ser identificada diretamente pela técnica de DRX [123]. No entanto, também realizamos o crescimento de amostras de GGG/Bi (390 nm) com a inclusão de uma camada tampão de Ti (20 nm) para confirmar que não há efeitos naturais de oxidação do Bi, pois é sabido que a capa de titânio irá evitar a oxidação da superfície do filme de bismuto. De fato, o padrão GIXRD apresentado na Figura 51d confirma que a inclusão da camada de Ti cap previne a oxidação natural do Bi, uma vez que os picos de óxido de bismuto não foram identificados nas medições. Observe que os resultados apresentados em S1(c) e S1(c) são semelhantes e a única diferença visível é a mudança na intensidade do pico em  $2\theta \approx 46^\circ$ , que se deve à posição do pico Ti (2 2 2) coincidindo com o pico Bi (0 0 6). Para complementar nossa investigação, também realizamos medições de transporte elétrico em filmes Bi e que serão apresentadas na

próxima seção.

Figura 51 – (a) Padrões de XRD fora do plano (varreduras  $\omega$ - $2\theta$ ) do filme YIG crescido em um substrato GGG. O espectro de XRD detalhando a posição dos picos do filme YIG e do substrato GGG é mostrado na inserção. (b) Padrões de XRD de filme Bi crescido em substrato GGG (111). (c) Padrão GIXRD da amostra GGG/Bi (390 nm) detalhando as posições dos picos da camada Bi. (d) padrão GIXRD do GGG/Bi (390 nm)/Ti (20 nm) detalhando as posições dos picos do Bi e do Ti.



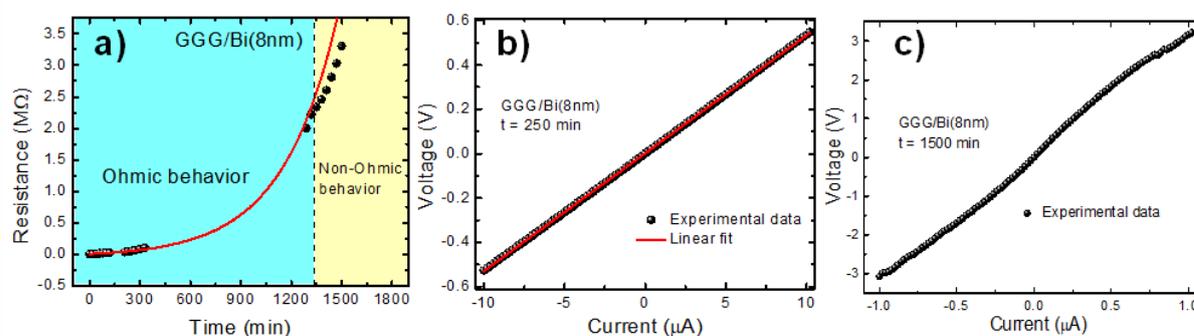
Fonte: o autor (2022).

## CARACTERIZAÇÕES DE TRANSPORTE ELÉTRICO NOS FILMES BI

Para investigar o processo natural de oxidação dos filmes de Bi, realizamos medições sistemáticas da curva I-V em função do tempo, para um GGG/Bi(8 nm). Retiramos a amostra da câmara de pulverização e imediatamente iniciamos as medidas da curva I-V. A cada 30 min a medida da curva I-V foi repetida. A Figura 52a mostra a dependência da resistência ao longo do tempo. Como esperado, inicialmente a resistência cresce exponencialmente ao longo do tempo. Todas as medições foram feitas usando métodos de sondas de 4 pontos com um nano voltímetro Keithley 34420A e uma fonte de corrente Keithley 6221. O comportamento ôhmico foi observado em

todas as medições, até cerca de  $t = 1300$  min após a deposição (ver região azul na Figura 52b). Após  $t=1300$  min a amostra adquire um comportamento não ôhmico (região amarela no gráfico) conforme mostrado na Figura 52c e a resistência elétrica dos filmes de Bi pode aumentar em 3 ordens de grandeza em um período de 24 horas. Esses resultados mostram que os efeitos da oxidação nos filmes de Bi não devem ser ignorados, pois podem afetar significativamente as propriedades de transporte elétrico desse material. Assim, para evitar quaisquer efeitos indesejados, todas as medições foram feitas em uma janela de tempo de até 150 minutos após a amostra ser exposta à atmosfera ambiente.

Figura 52 – (a) Medidas da resistência em função do tempo para um filme de Bi(8nm) depositado em GGG. A medição foi realizada à temperatura ambiente. A Figura (b) mostra a curva I-V linear típica que ocorre para  $t < 1300$  min. A Figura (c) ilustra o comportamento não linear do I-V que ocorre para  $t > 1300$  min.



Fonte: o autor (2022).