



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

JOSÉ DIÊGO MARQUES DE LIMA

**PROPRIEDADES MAGNÉTICAS E FENÔMENOS DE SPINTRÔNICA NO  
ANTIFERROMAGNETO DE HEISENBERG  $\text{RbMnF}_3$**

Recife  
2025

JOSÉ DIÊGO MARQUES DE LIMA

**PROPRIEDADES MAGNÉTICAS E FENÔMENOS DE SPINTRÔNICA NO  
ANTIFERROMAGNETO DE HEISENBERG  $\text{RbMnF}_3$**

Tese de doutorado do submetida ao Programa de Pós-Graduação em Física do Departamento de Física da Universidade Federal de Pernambuco como requisito parcial para obtenção do grau de doutor em Física.

Área de concentração: Física da Matéria Condensada e Materiais.

**Orientador:** Prof. Dr. Sergio Machado Rezende

**Coorientador:** Prof. Dr. Fernando Luis de Araujo Machado

Recife

2025

.Catalogação de Publicação na Fonte. UFPE - Biblioteca Central

de Lima, José Diêgo Marques.

Propriedades magnéticas e fenômenos de spintrônica no antiferromagneto de Heisenberg  $RbMnF_3$  / José Diêgo Marques de Lima. - Recife, 2025.

148f.: il.

Tese (Doutorado) - Universidade Federal de Pernambuco, Centro de Ciências Exatas e da Natureza, Programa de Pós-Graduação em Física, 2025.

Orientação: Sergio Machado Rezende.

Coorientação: Fernando Luis de Araujo Machado.

Inclui referências e apêndices.

1. Materiais magnéticos; 2. Antiferromagnetos; 3. Ondas de spin; 4. Spintrônica; 5.  $RbMnF_3$ . I. Rezende, Sergio Machado. II. Machado, Fernando Luis de Araujo. III. Título.

UFPE-Biblioteca Central

JOSÉ DIÊGO MARQUES DE LIMA

**PROPRIEDADES MAGNÉTICAS E FENÔMENOS DE SPINTRÔNICA NO  
ANTIFERROMAGNETO DE HEISENBERG  $\text{RbMnF}_3$**

Tese de doutorado do submetida ao Programa de Pós-Graduação em Física do Departamento de Física da Universidade Federal de Pernambuco como requisito parcial para obtenção do grau de doutor em Física.

Aprovado em 18 de fevereiro de 2025.

**BANCA EXAMINADORA**

---

Prof. Dr. Sergio Machado Rezende  
Orientador – Universidade Federal de Pernambuco

---

Prof. Dr. Antonio Azevedo da Costa  
Examinador interno – Universidade Federal de Pernambuco

---

Prof. Dr. Eduardo Padrón Hernández  
Examinador interno – Universidade Federal de Pernambuco

---

Prof. Dr. Roberto Lázaro Rodríguez Suárez  
Examinador externo – Pontificia Universidad Católica de Chile

---

Prof. Dr. Joaquim Bonfim Santos Mendes  
Examinador externo – Universidade Federal de Viçosa

## AGRADECIMENTOS

Gostaria de agradecer inicialmente aos meus pais, Nivaldo e Edineide, e às minhas irmãs, Bruna Gerlane e Amanda Marques, por sempre terem me apoiado durante estes quase dez anos de caminhada acadêmica que culminaram neste trabalho. Quero expressar aqui a minha imensa gratidão a Gabrielle Maniçoba, minha companheira, por todo o carinho, apoio, incentivo e paciência comigo durante meu doutorado.

Ao meu orientador, Prof. Dr. Sergio Machado Rezende, pelos seus ensinamentos sobre física teórica e experimental que tanto contribuíram com minha formação. Ao meu coorientador, Prof. Dr. Fernando Luis de Araujo Machado, por todo o auxílio com os experimentos sobre propriedades magnéticas em baixas temperaturas. Aos professores Dr. Antonio Azevedo da Costa, Dr. Eduardo Padrón Hernández, Dr. Roberto Lázaro Rodríguez Suárez e Dr. Joaquim Bonfim Santos Mendes pelos importantes comentários e sugestões. Aos técnicos de mecânica João de Paula e Valdomiro, ao técnico de eletrônica Daniel Melo e ao técnico de criogenia Gustavo Barbosa por todo o apoio e dedicação em solucionar problemas.

Aos meus colegas de laboratório Edycleyson Souza, Daniel Souto Maior e José Elias por toda a ajuda com instrumentação e pelas enriquecedoras discussões sobre spintrônica. A Pablo Trajano, Danilo Ratkovski e Emanuel Laurertan pelo auxílio com os experimentos em baixas temperaturas e com a operação do PPMS e do criostato. A Eudes Gomes, Jefferson Costa, João Gustavo e Eduardo Santos pela preparação das amostras por *sputtering*. A Carlos Iglesias pelo auxílio com a operação do VNA e pelas discussões sobre magnetoimpedância. A Filipe Ribeiro pelo auxílio com o *plasma etching*. A Franklin Ferreira por todo o incentivo durante o Exame Geral de Doutorado (EGD). A Marcos Roberto pela sua disponibilidade em ajudar.

À Universidade Federal de Pernambuco por possibilitar a conclusão desta tese de doutorado. À Fundação de Amparo à Ciência e Tecnologia de Pernambuco (FACEPE) pelo apoio financeiro. As pesquisas aqui apresentadas foram também parcialmente financiadas pelo Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq), pela Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior (CAPES), pela Financiadora de Estudos e Projetos (FINEP) e pelo INCT de Spintrônica e Nanoestruturas Magnéticas Avançadas (INCT-SpinNanoMag).

## RESUMO

O  $\text{RbMnF}_3$  é um antiferromagneto isolante com uma estrutura cristalina do tipo perovskita cuja temperatura de Néel é  $T_N \approx 82,6$  K e que apresenta um campo de anisotropia cristalina muito pequeno, de forma que tal material pode ser considerado um protótipo de um antiferromagneto de Heisenberg tridimensional. Esta tese de doutorado tem como objetivo estudar as propriedades magnéticas do  $\text{RbMnF}_3$  juntamente com fenômenos de transporte de correntes de spin utilizando técnicas experimentais e teóricas. As frequências de ressonância podem ser calculadas tanto com um tratamento semiclássico pelo formalismo de Landau-Lifshitz quanto com um tratamento quântico de ondas de spin considerando a interação hiperfina das sub-redes eletrônicas e nucleares, bem como os termos de Zeeman, de troca e de anisotropia cristalina. Por conseguinte, são relatadas aqui observações do efeito de bombeamento de spin eletrônico-nuclear no  $\text{RbMnF}_3$  por meio de sinais de tensão elétrica da ordem de  $\mu\text{V}$  que persistem até uma temperatura de quase 20 K. Além disso, investigações sobre o efeito Seebeck de spin foram realizadas tanto na fase spin-*flop* quanto na paramagnética desse material, de modo que o coeficiente Seebeck apresenta um aumento inesperado com a temperatura acima de  $T_N$ . Cálculos numéricos foram feitos baseados nas relações de dispersão e na teoria de difusão de mágnons *bulk* para o efeito de Seebeck de spin e apresentam uma ótima concordância com os dados experimentais para a fase spin-*flop*. Por fim, é relatada a observação dos efeitos de polarização de troca recíproco e de acoplamento de mola magnética em bicamadas de Py/ $\text{RbMnF}_3$ , com a espessura do antiferromagneto muito maior que a do ferromagneto. Com isso, espera-se que os resultados aqui apresentados estimulem o desenvolvimento de pesquisas teóricas e experimentais sobre magnetismo e spintrônica em antiferromagnetos isolantes.

**Palavras-chave:** materiais magnéticos; antiferromagnetos; ondas de spin; spintrônica;  $\text{RbMnF}_3$ .

## ABSTRACT

RbMnF<sub>3</sub> is an insulating antiferromagnet with a perovskite-type crystal structure, whose Néel temperature is  $T_N \approx 82.6$  K. It exhibits a very small crystalline anisotropy field, such that this material can be considered a prototype of a three-dimensional Heisenberg antiferromagnet. The aim of this doctoral thesis is to study the magnetic properties of RbMnF<sub>3</sub>, as well as spin current transport phenomena, using both experimental and theoretical techniques. The resonance frequencies can be calculated either through a semiclassical treatment using the Landau-Lifshitz formalism or a quantum treatment of spin waves, considering the hyperfine interaction between electronic and nuclear sublattices, as well as the Zeeman, exchange, and crystal anisotropy terms. Thus, this work reports the observation of the electronic-nuclear spin pumping effect in RbMnF<sub>3</sub> through voltage signals of the order of  $\mu\text{V}$ , which persist down to a temperature of nearly 20 K. Additionally, investigations of the spin Seebeck effect were carried out in both the spin-*flop* and paramagnetic phases of this material, where the Seebeck coefficient shows an unexpected increase with temperature above  $T_N$ . Numerical calculations based on dispersion relations and the bulk magnon diffusion theory for the spin Seebeck effect show excellent agreement with the experimental data for the spin-*flop* phase. Finally, the observation of reciprocal exchange bias and exchange spring effects in Py/RbMnF<sub>3</sub> bilayers, where the thickness of the antiferromagnet is much larger than that of the ferromagnet, is reported. It is expected that the results presented here will stimulate further theoretical and experimental research on magnetism and spintronics in insulating antiferromagnets.

**Keywords:** magnetic materials; antiferromagnets; spin waves; spintronics; RbMnF<sub>3</sub>.

## LISTA DE FIGURAS

Figura 1	– Elemento de momento magnético $d\boldsymbol{\mu}$ associado a uma corrente $I$ ao redor de um elemento de área $dA$ . . . . .	19
Figura 2	– Configurações dos momentos magnéticos em um material (a) paramagnético, (b) ferromagnético, (c) antiferromagnético e (d) ferromagnético. . . . .	22
Figura 3	– Representação de um ciclo de histerese. . . . .	23
Figura 4	– Representação da precessão da magnetização ao redor da direção do campo magnético. . . . .	26
Figura 5	– Representação da precessão da magnetização considerando o amortecimento. . . . .	27
Figura 6	– Gráficos da parte real (a) e da parte imaginária (b) dos elementos da diagonal do tensor de susceptibilidade magnética em função do campo magnético $H$ . . . . .	28
Figura 7	– (a) Visão clássica de um elétron se movendo em uma órbita circular ao redor do núcleo do átomo. (b) O mesmo movimento visto a partir do referencial do elétron. . . . .	30
Figura 8	– Representação de (a) uma corrente pura de carga, (b) uma corrente pura de spin e (c) uma corrente de carga com polarização de spin. . . . .	31
Figura 9	– Ilustração (a) do efeito Hall de spin (SHE) e (b) do efeito Hall de spin inverso (ISHE). . . . .	33
Figura 10	– Representação do método de Czochralski. . . . .	35
Figura 11	– (a) Ilustração da câmara utilizada para a deposição e (b) representação do processo de <i>magnetron sputtering</i> . . . . .	36
Figura 12	– <i>Physical Property Measurement System</i> (PPMS) modelo 6000. . . . .	37
Figura 13	– Ilustração do porta-amostras utilizado para as medidas no módulo de resistividade do PPMS. . . . .	38
Figura 14	– Criostato da Advanced Research System (ARS). . . . .	39
Figura 15	– Representação simplificada da montagem experimental para ressonância magnética nuclear. . . . .	40
Figura 16	– Estrutura cristalina do antiferromagneto $\text{RbMnF}_3$ . Os íons de $\text{Rb}^+$ , $\text{F}^-$ e $\text{Mn}^{2+}$ estão representados pelas esferas de cor verde, amarela e azul, respectivamente. . . . .	42
Figura 17	– Difração de raio X da amostra em pó de $\text{RbMnF}_3$ antes da clivagem. . . . .	43
Figura 18	– (a) Variação com a temperatura da magnetização do $\text{RbMnF}_3$ medida com um campo magnético de 1 kOe aplicado na direção [001]. (b) Magnetização em função do campo magnético para várias temperaturas. . . . .	44

Figura 19	–	Configuração de equilíbrio do $\text{RbMnF}_3$ no plano (110). . . . .	46
Figura 20	–	Ângulo $\theta$ da direção de equilíbrio da magnetização em função do campo magnético $H$ aplicado na direção [001]. . . . .	48
Figura 21	–	Comparação entre os cálculos semiclássicos e os experimentos relatados em [25] para as frequências de AFMR do $\text{RbMnF}_3$ com o campo magnético na direção [001] em 4,2 K. . . . .	55
Figura 22	–	Comparação entre os cálculos semiclássicos e os experimentos relatados em [25] para as frequências de NMR do $\text{RbMnF}_3$ com o campo magnético na direção [001] em 4,2 K. . . . .	58
Figura 23	–	Frequências de AFMR do $\text{RbMnF}_3$ caso a interação hiperfina fosse desprezível ( $H_N = 0$ ). . . . .	59
Figura 24	–	Representação da interação de Suhl-Nakamura em um material com ordenamento antiferromagnético. . . . .	64
Figura 25	–	Ilustração esquemática da montagem experimental usada para alimentar a bobina com a corrente de radiofrequência e para detectar o sinal de radiofrequência transmitido e a tensão de bombeamento de spin. . . . .	65
Figura 26	–	Espectro de NMR da amostra de $\text{RbMnF}_3$ a 11 K em função do campo magnético aplicado ao longo da direção [001] para várias frequências com a potência de 1 mW. . . . .	66
Figura 27	–	Comparação da dependência com o campo magnético das medidas das frequências de NMR do $\text{RbMnF}_3$ a 11 K com os cálculos numéricos do modelo de quatro sub-redes. . . . .	67
Figura 28	–	Medidas da tensão elétrica do efeito de bombeamento de spin eletrônico-nuclear (NESP) em uma bicamada de $\text{RbMnF}_3/\text{Pt}$ . (a) Tensão de NESP medida a $T = 11$ K com o NMR excitado por radiação de radiofrequência de 200 MHz para vários valores de potência. (b) Demonstração da mudança no sinal da tensão de NESP com a reversão da direção do campo magnético. (c) Variação linear da tensão do pico de NESP com a potência aplicada. (d)-(f) Dados similares obtidos com a frequência de 580 MHz, na qual dois picos são excitados, um na fase AF e outro na fase SF. . . . .	68
Figura 29	–	(a) Tensão elétrica de NESP medida com varredura de campo para várias temperaturas da amostra de $\text{RbMnF}_3$ . (b) Variação das intensidades dos dois picos com a temperatura. . . . .	69
Figura 30	–	Representação de uma onda de spins para uma rede vista (a) de uma perspectiva tridimensional e (b) de cima. . . . .	71

Figura 31	–	(a) Representação clássica da direção dos spins em um material ferromagnético no estado fundamental. (b) Representação de um desvio de spin em um determinado sítio. . . . .	73
Figura 32	–	Frequências de AFMR do antiferromagneto $\text{RbMnF}_3$ com $H$ aplicado na direção $[001]$ para (a) 4,2 K e (b) 10 K. Os pontos experimentais foram relatados por Ince na referência [25]. . . . .	85
Figura 33	–	Frequências de mágnons no antiferromagneto $\text{RbMnF}_3$ para (a) $H = 1$ kOe e (b) $H = 60$ kOe ao longo da direção $[001]$ para 4,2 K. . . . .	86
Figura 34	–	Representação de um processo direto da interação entre quatro mágnons. . . . .	89
Figura 35	–	Cálculos numéricos das frequências de mágnons renormalizadas em função da temperatura para o antiferromagneto $\text{RbMnF}_3$ para os correspondentes valores de $q$ , na ausência de campo magnético externo. . . . .	92
Figura 36	–	Cálculos numéricos das frequências de mágnons renormalizadas em função de $q = k/k_m$ para o antiferromagneto $\text{RbMnF}_3$ para os correspondentes valores de temperatura, na ausência de campo magnético externo. . . . .	93
Figura 37	–	Ilustração da montagem para medidas do efeito Seebeck de spin para as amostras de $\text{RbMnF}_3/\text{Pt}$ presas no bloco de cobre revestido de ouro juntamente com o aquecedor e os dois termômetros Cernox. O campo magnético externo $H$ foi aplicado ao longo da direção $[001]$ , enquanto o gradiente de temperatura está perpendicular ao plano do filme fino de Pt. . . . .	96
Figura 38	–	Varição da resistência do filme fino de Pt na amostra B em função da temperatura. . . . .	97
Figura 39	–	Varição da corrente do efeito Seebeck de spin no filme fino de Pt em função do campo magnético $H$ para as duas amostras de $\text{RbMnF}_3/\text{Pt}$ com vários valores da temperatura do bloco de cobre, conforme indicado. Nos gráficos (a)–(d) têm-se as medidas na amostra B com diferença de temperatura definida $\Delta T_{\text{set}} = 5,0$ K. Do mesmo modo, nos gráficos (e)–(h) estão as medidas na amostra R com $\Delta T_{\text{set}} = 6,8$ K. . . . .	98
Figura 40	–	Varição com a temperatura da razão $\Delta T/\Delta T_{\text{set}}$ calculada usando os dados das condutividades térmicas do $\text{RbMnF}_3$ e do verniz GE. . . . .	99
Figura 41	–	Dependências com a temperatura da termopotência para (a) amostra B e (b) a amostra R para $H = 60$ kOe. Similarmente, tem-se a dependência com a temperatura do coeficiente Seebeck de spin para (c) a amostra B e (d) a amostra R. . . . .	100

Figura 42	–	Varição da tensão $V_{SSE}$ em função da diferença de temperatura $\Delta T_{set}$ na amostra B de $RbMnF_3/Pt$ para $H = 60$ kOe na fase paramagnética com $T = 300$ K. . . . .	101
Figura 43	–	Vista lateral da bicamada $RbMnF_3/Pt$ considerando as coordenadas para os cálculos da densidade de corrente de spin gerada por um gradiente de temperatura. . . . .	105
Figura 44	–	Comparação entre os dados experimentais na fase <i>spin-flop</i> e as curvas teóricas de $S_{SSE}$ em função da temperatura com $H = 60$ kOe para (a) a amostra B e (b) a amostra R. . . . .	109
Figura 45	–	Ilustração das etapas associadas ao efeito de polarização de troca em bicamadas do tipo FM/AF. . . . .	112
Figura 46	–	Ilustração do efeito de polarização de troca observado em medidas do momento magnético em função do campo magnético aplicado. (a) Um filme ferromagnético (FM) mole com um estreito ciclo de histerese; (b) um filme fino antiferromagnético (AF); e (c) uma bicamada FM/AF com polarização de troca. Para filmes muito finos, a inclinação da curva do AF foi aumentada para maior clareza. . . . .	113
Figura 47	–	Ilustração do efeito de polarização de troca recíproco esperado em medidas do momento magnético em função do campo magnético aplicado em uma bicamada FM/AF composta por um material AF muito mais espesso que o filme FM. (a) Um filme FM muito fino e mole; (b) uma amostra AF espessa; e (c) uma bicamada FM/AF com o efeito de polarização de troca recíproco. . . . .	114
Figura 48	–	Na curva em verde, o ciclo de histerese de um material ideal com acoplamento de mola magnética (ES) em comparação com os ciclos de histerese de um ferromagneto mole (curva em vermelho) e duro (curva em azul). . . . .	115
Figura 49	–	Comportamento dos momentos magnéticos de um material com acoplamento de mola magnética durante o ciclo de histerese. . . . .	116
Figura 50	–	Ilustração das bicamadas de $Py/RbMnF_3$ . . . . .	116
Figura 51	–	Medidas do momento magnético em função do campo magnético aplicado em uma amostra de $RbMnF_3$ para várias temperaturas. . . . .	117
Figura 52	–	Medidas do momento magnético em função da intensidade do campo magnético externo para a amostra de $Py(10\text{ nm})/RbMnF_3(0,8\text{ nm})$ em várias temperaturas, conforme indicado. . . . .	118
Figura 53	–	Dependências (a) do campo de polarização de troca recíproco $H_{reb}$ e (b) do campo coercitivo $H_c$ com a temperatura para a amostra de $Py(10\text{ nm})/RbMnF_3(0,8\text{ nm})$ . . . . .	120

Figura 54	–	Medidas do momento magnético em função da intensidade do campo magnético externo para as amostras de Py(t)/RbMnF <sub>3</sub> com três espessuras de Py e várias temperaturas, conforme indicado.. . . . .	121
Figura 55	–	Dependências do (a) campo de polarização de troca $H_{\text{reb}}$ e (b) do campo coercitivo $H_c$ com a temperatura para as amostras de Py(t)/RbMnF <sub>3</sub> , com $t = 40, 100$ e $300$ nm. . . . .	121
Figura 56	–	Curva de calibração do Cernox CX-1070 obtida por meio do ajuste com os valores experimentais. . . . .	142

## SUMÁRIO

<b>1</b>	<b>INTRODUÇÃO</b>	<b>15</b>
1.1	MAGNETISMO E SPINTRÔNICA	15
1.2	ESCOPO DO TRABALHO	17
<b>2</b>	<b>MATERIAIS MAGNÉTICOS E FUNDAMENTOS DE SPIN- TRÔNICA</b>	<b>19</b>
2.1	MATERIAIS MAGNÉTICOS	19
2.1.1	Momento magnético e magnetização	19
2.1.2	Classificação dos materiais magnéticos	21
2.1.3	Teoria do campo molecular e ciclos de histerese	22
2.2	DINÂMICA DE MAGNETIZAÇÃO	24
2.2.1	Equação de Landau-Lifshitz	24
2.2.2	Ressonância magnética induzida por radiofrequência	25
2.3	FUNDAMENTOS DE SPINTRÔNICA	29
2.3.1	Acoplamento spin-órbita	29
2.3.2	Corrente de spin	31
2.3.3	Conversão entre corrente de carga e corrente de spin	32
2.4	TÉCNICAS EXPERIMENTAIS	34
2.4.1	Técnicas de preparação de materiais	34
2.4.1.1	<i>Método de Czochralski</i>	34
2.4.1.2	<i>Deposição por vaporização catódica</i>	35
2.4.2	Physical Property Measurement System (PPMS)	37
2.4.3	Montagem experimental com o criostato	38
<b>3</b>	<b>TEORIA SEMICLÁSSICA PARA RESSONÂNCIAS ANTIFER- ROMAGNÉTICA E NUCLEAR DO <math>\text{RbMnF}_3</math></b>	<b>42</b>
3.1	O ANTIFERROMAGNETO DE HEISENBERG $\text{RbMnF}_3$	42
3.1.1	Propriedades magnéticas e estruturais	42
3.1.2	Energia magnética livre	44
3.1.3	Configuração de equilíbrio	45
3.2	RESSONÂNCIA ANTIFERROMAGNÉTICA: MODELO DE DUAS SUB- REDES	48
3.3	RESSONÂNCIA MAGNÉTICA NUCLEAR: MODELO DE QUATRO SUB-REDES	55
<b>4</b>	<b>BOMBEAMENTO DE SPIN NUCLEAR-ELETRÔNICO NO ANTIFERROMAGNETO <math>\text{RbMnF}_3</math></b>	<b>61</b>
4.1	EFEITO DE BOMBEAMENTO DE SPIN	61
4.1.1	Efeito de bombeamento de spin eletrônico	61
4.1.2	Efeito de bombeamento de spin nuclear	63

4.2	EXPERIMENTOS DE RESSONÂNCIA MAGNÉTICA NUCLEAR . . . . .	64
4.3	EXPERIMENTOS DO EFEITO DE BOMBEAMENTO DE SPIN NUCLEAR-ELETRÔNICO . . . . .	66
<b>5</b>	<b>TEORIA QUÂNTICA DE ONDAS DE SPINS ELETRÔNICOS NO ANTIFERROMAGNETO <math>\text{RbMnF}_3</math>.</b> . . . . .	<b>71</b>
5.1	TRATAMENTO QUÂNTICO DE ONDAS DE SPIN . . . . .	71
5.2	HAMILTONIANO DO SISTEMA . . . . .	74
5.3	DIAGONALIZAÇÃO DO HAMILTONIANO . . . . .	80
5.3.1	Procedimento de diagonalização. . . . .	80
5.3.2	Aplicação para o $\text{RbMnF}_3$ . . . . .	84
5.4	RENORMALIZAÇÃO DE ENERGIA DE MÁGNONS NO ANTIFERROMAGNETO $\text{RbMnF}_3$ . . . . .	86
5.4.1	Interações entre quatro mágnons . . . . .	86
5.4.2	Renormalização de energia de mágnons . . . . .	90
<b>6</b>	<b>EFEITO SEEBECK DE SPIN NO ANTIFERROMAGNETO <math>\text{RbMnF}_3</math>.</b> . . . . .	<b>94</b>
6.1	EFEITO SEEBECK DE SPIN . . . . .	94
6.2	DETALHES EXPERIMENTAIS . . . . .	95
6.3	RESULTADOS EXPERIMENTAIS . . . . .	97
6.4	TEORIA DE DIFUSÃO DE MÁGNONS PARA O EFEITO SEEBECK DE SPIN NA FASE SPIN- <i>FLOP</i> . . . . .	101
6.4.1	Densidade de corrente de spin e equação de Boltzmann. . . . .	102
6.4.2	Condições de contorno e integrais. . . . .	104
6.4.3	Aplicação para o antiferromagneto $\text{RbMnF}_3$ na fase spin- <i>flop</i> . . . . .	108
<b>7</b>	<b>EFEITOS DE POLARIZAÇÃO DE TROCA RECÍPROCO E ACOPLAMENTO DE MOLA MAGNÉTICA EM BICAMADAS DE <math>\text{Py/RbMnF}_3</math>.</b> . . . . .	<b>111</b>
7.1	FENOMENOLOGIA DOS EFEITOS DE POLARIZAÇÃO DE TROCA E DE ACOPLAMENTO DE MOLA MAGNÉTICA . . . . .	111
7.1.1	Polarização de troca . . . . .	111
7.1.2	Acoplamento de mola magnética . . . . .	114
7.2	DETALHES EXPERIMENTAIS . . . . .	116
7.3	EFEITO DE POLARIZAÇÃO DE TROCA RECÍPROCO EM BICAMADAS DE $\text{Py/RbMnF}_3$ . . . . .	117
7.4	EFEITO DE ACOPLAMENTO DE MOLA MAGNÉTICA EM BICAMADAS DE $\text{Py/RbMnF}_3$ . . . . .	120
<b>8</b>	<b>CONSIDERAÇÕES FINAIS . . . . .</b>	<b>123</b>
	<b>REFERÊNCIAS . . . . .</b>	<b>125</b>

APÊNDICE A – CALIBRAÇÃO DOS TERMÔMETROS CER- NOX .....	142
APÊNDICE B – CÓDIGO EM MAPLE PARA A TEORIA DE DIFUSÃO DE MÁGNONS DO EFEITO SEEBECK DE SPIN. .	143
APÊNDICE C – ARTIGOS PUBLICADOS E SUBMETIDOS DURANTE O DOUTORADO.....	148

# 1 INTRODUÇÃO

## 1.1 MAGNETISMO E SPINTRÔNICA

A magnetita ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) foi o primeiro material com propriedades magnéticas a ser descoberto, ainda na Antiguidade, e destacou-se pela sua até então inexplicável capacidade de atrair metais ferrosos. Desde então, fenômenos associados ao magnetismo apresentaram aplicações tecnológicas com importantes relações em vários acontecimentos históricos. A primeira aplicação direta de um fenômeno baseado em propriedades magnéticas foi a criação da bússola, permitindo uma maior precisão nas navegações [1].

Por vários séculos, a compreensão dos fenômenos associados ao magnetismo era limitada às observações empíricas do funcionamento da bússola e da atração de objetos por ímãs. No ano de 1600, porém, William Gilbert realizou o primeiro estudo formal sobre magnetismo ao observar que a Terra possui propriedades magnéticas, explicando assim o motivo de as bússolas sempre apontarem para o norte. As relações entre eletricidade e magnetismo foram observadas a partir do trabalho de Hans Christian Oersted que, em 1820, verificou que a condução de uma corrente elétrica em um fio produz um campo magnético capaz de alterar a orientação de uma bússola. Tal descoberta serviu como ponto de partida para a teoria do eletromagnetismo, que foi finalmente formalizada por James Clerk Maxwell [2, 3].

A quantidade de aplicações tecnológicas do magnetismo aumentou substancialmente a partir das revoluções industriais e da popularização da distribuição de energia elétrica em vários países. O magnetismo apresenta um papel fundamental na criação de motores e geradores elétricos, bem como na informática com os dispositivos de armazenamento de dados [4]. Dessa forma, a obtenção controlada de materiais com propriedades magnéticas tornou-se essencial para o desenvolvimento de tecnologias eficientes. As pesquisas em magnetismo continuam com alta relevância atualmente, com destaque para aplicações do fenômeno de ressonância magnética para diagnósticos médicos e a produção de dispositivos eletrônicos.

Por sua vez, a eletrônica é uma área da física e engenharia que se baseia em manipular convenientemente as propriedades de materiais por meio do transporte de cargas elétricas. Assim, o desenvolvimento de dispositivos eletrônicos proporcionou, desde o século XX, uma série de revoluções tecnológicas que alteraram substancialmente as sociedades modernas, com destaque para a facilitação de comunicações em longas distâncias. No entanto, embora apresente até os dias atuais uma ampla possibilidade de linhas de pesquisas, a eletrônica possui limitações intrínsecas que não podem ser negligenciadas.

Uma das limitações mais proeminentes da eletrônica é certamente a geração de calor pela passagem de correntes elétricas em materiais devido ao efeito Joule. Uma corrente elétrica consiste em um fluxo de cargas que produz calor devido à resistência elétrica dos

materiais. Para transportar cargas elétricas é preciso fornecer energia para o sistema, da qual parte é dissipada em forma de energia térmica pela interação dos elétrons com os fônons da rede. É importante ressaltar que embora nessa perspectiva o efeito Joule seja visto como um problema, ele também apresenta aplicações importantes como, por exemplo, em fornos resistivos e lâmpadas incandescentes [5, 6].

Com os grandes avanços nas pesquisas em ciências de materiais nas últimas décadas, tornou-se possível a síntese de estruturas de tamanhos cada vez menores. O uso de tais dispositivos eletrônicos miniaturizados levou a um considerável aumento na densidade de corrente (corrente elétrica por unidade de área), o que facilmente leva a um alto aquecimento local. Por consequência, isso traduz-se em uma limitação do tamanho mínimo, da corrente máxima que se pode aplicar e da eficiência energética dos dispositivos. Essas adversidades levaram parte da comunidade científica a considerar a manipulação de outra propriedade dos elétrons: o spin.

O spin é uma propriedade de caráter quântico que é intrínseca da partícula e que caracteriza um grau de liberdade na forma de momento angular. Em materiais com características ferromagnéticas, por exemplo, os spins eletrônicos tendem a se alinhar na mesma direção devido à chamada interação de troca [7]. Nesse contexto, a spintrônica (ou eletrônica de spin) é um campo emergente que combina conceitos da física, engenharia e ciência dos materiais para explorar a geração, manipulação e detecção de correntes de spin em diversos tipos de materiais com propriedades magnéticas. O controle do spin, em detrimento da carga elétrica, tem o potencial de possibilitar o desenvolvimento de dispositivos cada vez mais eficientes energeticamente [8].

A observação de vários fenômenos que dependem do transporte de spins eletrônicos causou um grande impulso nos estudos na área de spintrônica nas últimas décadas. O primeiro desses efeitos a ser descoberto foi a magneto-resistência gigante (em inglês *giant magnetoresistance*, GMR) no final da década de 1980 [9, 10], possuindo atualmente importantes aplicações em sensores de campo magnético. Dois outros importantes fenômenos associados à geração de correntes de spin são o efeito de bombeamento de spin e o efeito Seebeck de spin, que são geralmente detectados mediante uma tensão elétrica DC em um filme fino de um material com alto acoplamento spin-órbita (tal como a platina) depositado sobre um material magnético [11, 12].

A geração de correntes puras de spins foi tão logo observada em materiais isolantes magnéticos. Ao contrário dos condutores, um isolante elétrico ideal não permite a passagem de corrente elétrica. No entanto, em um isolante magnético, é possível criar uma corrente pura de spin devido ao ordenamento magnético resultante da interação de troca entre spins adjacentes. Essa característica possibilita a manipulação de informações magnéticas sem que haja uma corrente de cargas elétricas efetiva, abrindo novas perspectivas para aplicações nas quais a alta dissipação de energia pelo efeito Joule se apresenta como um problema a ser contornado [13].

Outra importante classe de materiais magnéticos são os antiferromagnetos, nos quais os momentos magnéticos adjacentes ordenam-se em uma configuração antiparalela. Essa classe de materiais magnéticos tem atraído atenção renovada devido ao surgimento do campo da spintrônica antiferromagnética [14–18]. Comumente empregados apenas passivamente para fixar a magnetização de uma camada ferromagnética adjacente em dispositivos de válvula de spin por meio do efeito de polarização de troca [19, 20], os materiais antiferromagnéticos possuem características dinâmicas muito únicas que podem ter aplicações em dispositivos novos. De fato, esses materiais exibem propriedades tais como insensibilidade a campos baixos [21], dinâmica ultrarrápida [16, 22] e detectores de corrente de spin eficientes por meio do efeito Hall de spin [17, 23].

## 1.2 ESCOPO DO TRABALHO

O objetivo desta tese de doutorado é estudar as propriedades magnéticas e fenômenos de spintrônica no antiferromagneto tridimensional de Heisenberg  $\text{RbMnF}_3$  utilizando abordagens tanto teóricas quanto experimentais. Por possuir uma rede cristalina cúbica simples e um campo efetivo de anisotropia cristalina aproximadamente de apenas 4,59 Oe, o  $\text{RbMnF}_3$  é um antiferromagneto isolante com propriedades magnéticas muito particulares e promissoras para o estudo de fenômenos envolvendo a dinâmica de spins eletrônicos e nucleares.

O capítulo 2 é dedicado a uma introdução geral sobre magnetismo e propriedades magnéticas de materiais, sobre estudo do fenômeno de ressonância magnética pelo formalismo de Landau-Lifshitz, bem como dos elementos fundamentais da spintrônica. Além disso, serão apresentadas as técnicas experimentais de preparação de materiais e de medidas associadas a propriedades elétricas e magnéticas, essenciais para a elaboração deste trabalho.

Baseado nos trabalhos de Cole e Ince [24, 25], o capítulo 3 apresenta a teoria semiclássica para a dinâmica de magnetização pelo formalismo de Landau-Lifshitz para os fenômenos de ressonância antiferromagnética (AFMR) e de ressonância magnética nuclear (NMR) do  $\text{RbMnF}_3$ , considerando respectivamente duas e quatro sub-redes. Como será discutido, os cálculos numéricos oriundos de tal teoria estão em ótima concordância com os dados experimentais relatados.

No capítulo 4 será relatada a observação do efeito de bombeamento de spin nuclear-eletrônico no antiferromagneto  $\text{RbMnF}_3$ . Os sinais de tensão elétrica devidos ao efeito Hall de spin inverso medidos no filme fino de Pt foram ordens de grandeza maiores do que o sinais de bombeamento de spins por ondas de spins nucleares relatados na referência [26] para o antiferromagneto inclinado  $\text{MnCO}_3$ , e permanecem detectáveis em temperaturas quase dez vezes maiores.

O tratamento quântico para ondas de spins eletrônicos no  $\text{RbMnF}_3$  é apresentado em detalhes no capítulo 5, abordando tanto a fase antiferromagnética quanto a fase *spin-flop*. Para o caso com vetor de onda nulo, que caracteriza a ressonância antiferromagnética, os resultados são condizentes com os cálculos semiclássicos do modelo de duas sub-redes apresentado no capítulo 3 e com os resultados relatados por Ince na referência [25]. Ademais, os efeitos da temperatura nas frequências de mágnons eletrônicos a campo magnético nulo são também apresentados com o uso da teoria de renormalização de energia de mágnons.

Os resultados experimentais acerca do efeito Seebeck de spin no  $\text{RbMnF}_3$  são mostrados no capítulo 6, para valores de temperatura que englobam tanto a fase ordenada quanto a fase paramagnética do material. Uma teoria de difusão de mágnons baseada na equação de Boltzmann é também desenvolvida para a fase *spin-flop*, apresentando uma boa concordância com os valores obtidos para o coeficiente Seebeck de spin, considerando as relações de dispersão obtidas no capítulo 5.

O capítulo 7 trata da observação dos efeitos de polarização de troca recíproco e de acoplamento de mola magnética no antiferromagneto  $\text{RbMnF}_3$  interfaceado com filmes finos de *permalloy* de diferentes espessuras, para várias temperaturas de 5 até 300 K. Por ter sido utilizada uma amostra de  $\text{RbMnF}_3$  de espessura da ordem de 1 mm, a magnetização do antiferromagneto torna-se comparável ou maior que a do ferromagneto, deslocando assim o ciclo de histerese do antiferromagneto. Para finalizar, o capítulo 8 é constituído das considerações finais deste trabalho e das perspectivas para trabalhos futuros.

## 2 MATERIAIS MAGNÉTICOS E FUNDAMENTOS DE SPINTRÔNICA

Neste capítulo, será realizada uma breve introdução às propriedades magnéticas dos materiais, ao fenômeno de ressonância magnética e aos fundamentos de spintrônica. A seção 2.1 apresenta os conceitos de momento magnético e magnetização, juntamente com a classificação dos materiais magnéticos mais comuns. Em seguida, a seção 2.2 aborda a equação de Landau-Lifshitz, que descreve a dinâmica da magnetização e possibilita o estudo da ressonância magnética por meio de uma abordagem semiclássica. A seção 2.3 introduz os conceitos fundamentais de spintrônica, e finalmente na seção 2.4 discutem-se as técnicas de experimentais utilizadas para a elaboração deste trabalho.

### 2.1 MATERIAIS MAGNÉTICOS

#### 2.1.1 Momento magnético e magnetização

O momento magnético é uma das grandezas mais fundamentais no estudo de materiais magnéticos. Do ponto vista clássico, para uma corrente elétrica  $I$  ao redor de um elemento de área  $dA$ , define-se o elemento de momento magnético como sendo

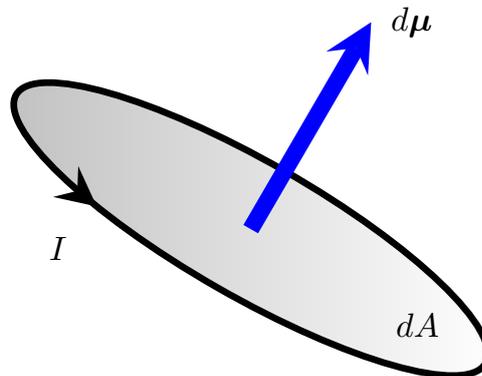
$$d\boldsymbol{\mu} = I d\mathbf{A}, \quad (2.1)$$

com  $d\mathbf{A} = dA \hat{\mathbf{n}}$  o vetor de área infinitesimal, e  $\hat{\mathbf{n}}$  o vetor unitário que aponta na direção normal ao plano no qual a corrente está localizada (ver figura 1). Desse modo, o momento magnético total em uma dada região é calculado somando-se os elementos  $d\boldsymbol{\mu}$  em diversos elementos de área, isto é,

$$\boldsymbol{\mu} = \int I d\mathbf{A}. \quad (2.2)$$

No Sistema Internacional de Unidades (SI), o momento magnético é medido em  $\text{A m}^2$  [27].

Figura 1 – Elemento de momento magnético  $d\boldsymbol{\mu}$  associado a uma corrente  $I$  ao redor de um elemento de área  $dA$ .



Essa visão semiclássica pode ser mais bem elucidada considerando um átomo de hidrogênio, no qual existe um elétron (com massa  $m_e$  e carga  $-e$ ) em uma órbita circular de raio  $r$  ao redor do núcleo. Supondo que o elétron tenha uma certa velocidade  $v$ , o período em que se tem uma volta completa é  $\tau = 2\pi r/v$ , de modo que a corrente devida ao movimento do elétron é dada por  $I = -e/\tau$ . Segue então que a magnitude do momento magnético é

$$\mu = IA = -\frac{e\pi r^2}{\tau} = -\frac{e}{2m_e} m_e v r. \quad (2.3)$$

A quantidade  $m_e v r$  é reconhecida como sendo o módulo do momento angular do elétron, que vale  $\hbar$  (constante de Planck reduzida) no estado fundamental. Portanto, a equação (2.3) é escrita como  $\mu = -\mu_B$ , com a constante

$$\mu_B = \frac{e\hbar}{2m_e} \approx 9,274 \times 10^{-24} \text{ A m}^2 \quad (2.4)$$

chamada de magneton de Bohr [5]. A equação (2.3) sugere que o momento magnético é uma grandeza intimamente relacionada com o momento angular. De fato, os momentos magnéticos microscópicos estão associados aos spins eletrônicos desemparelhados em determinados átomos ou íons.

Em uma abordagem do tipo semiclássica, denotando respectivamente por  $\mathbf{L}$  e  $\mathbf{S}$  os vetores de momento angular orbital e de momento angular de spin, tem-se o momento angular total  $\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S}$ . Ao longo deste trabalho, será considerada a mesma convenção usada nas referências [21,27], nas quais o momento angular é dado em unidades de  $\hbar$ , isto é, o que se mede é  $\hbar\mathbf{J}$ ,  $\hbar\mathbf{L}$  e  $\hbar\mathbf{S}$ . Por considerações da mecânica quântica relativística [28,29], é possível mostrar que o momento magnético de um átomo ou íon no  $i$ -ésimo sítio é

$$\boldsymbol{\mu}_i = -g\mu_B\mathbf{J}_i, \quad (2.5)$$

com o chamado fator de Landé

$$g = 1 + \frac{J(J+1) + S(S+1) - L(L+1)}{2J(J+1)}, \quad (2.6)$$

e os números quânticos  $J$ ,  $L$  e  $S$ . Por exemplo, no caso de um íon de  $\text{Mn}^{2+}$ , tem-se  $L = 0$  e  $J = S$ , de modo que  $g = 2$ .

Um material magnético de volume  $V$  possui um grande número de sítios, cada qual com um certo momento magnético. Devido a isso, é conveniente definir o vetor magnetização como

$$\mathbf{M} = \frac{1}{V} \sum_i \boldsymbol{\mu}_i, \quad (2.7)$$

que consiste em uma grandeza macroscópica. Na presença de um campo magnético externo  $\mathbf{H}$ , a resposta do material é chamada de campo de indução magnética  $\mathbf{B}$ , que é definido

no SI por

$$\mathbf{B} = \mu_0(\mathbf{H} + \mathbf{M}), \quad (2.8)$$

com a constante  $\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7} \text{ N/A}^2$  chamada de permeabilidade magnética do vácuo. No SI,  $\mathbf{M}$  e  $\mathbf{H}$  são medidos em A/m, enquanto  $\mathbf{B}$  é medido em T [27].

No caso especial dos chamados materiais lineares, que são tratados como isotrópicos e homogêneos, a magnetização é proporcional ao campo magnético, de modo que

$$\mathbf{M} = \chi\mathbf{H}, \quad (2.9)$$

com a constante adimensional  $\chi$  chamada de susceptibilidade magnética. Substituindo a equação (2.9) em (2.8), tem-se

$$\mathbf{B} = \mu\mathbf{H}, \quad (2.10)$$

com  $\mu = \mu_0(1 + \chi)$  a permeabilidade magnética do material (não confundir com o módulo do vetor momento magnético). No entanto, em materiais anisotrópicos,  $\chi$  e  $\mu$  assumem a forma tensorial, por dependerem da direção do campo magnético aplicado [7].

No sistema de unidades CGS (centímetro-grama-segundo), o momento magnético é dado em emu ou erg/G, enquanto a magnetização é dada em emu/cm<sup>3</sup> ou G. Nesse caso, define-se  $\mu_0 = 1$ , tal que o campo de indução magnética é medido em G e definido por

$$\mathbf{B} = \mathbf{H} + 4\pi\mathbf{M}, \quad (2.11)$$

com  $\mathbf{H}$  dado em Oe. O CGS é até hoje muito utilizado em trabalhos experimentais em magnetismo. Em muitos casos é mais conveniente converter as unidades para o CGS para comparar os resultados teóricos com os resultados experimentais.

### 2.1.2 Classificação dos materiais magnéticos

Os átomos ou íons de um material do tipo diamagnético não possuem momento magnético permanente, de modo que não há magnetização espontânea na ausência de um campo magnético externo. Essa classe de materiais é caracterizada por uma pequena susceptibilidade negativa, cujo valor é invariável com a temperatura do sistema. Dessa maneira, a magnetização induzida em um diamagneto aponta sempre no sentido oposto ao do campo magnético aplicado [4].

Em materiais paramagnéticos, os momentos magnéticos são praticamente não-interagentes e estão dispostos de forma aleatória, de tal maneira que a magnetização resultante é nula. Paramagnetos possuem susceptibilidade positiva, que varia com o inverso da temperatura (lei de Curie), isto é,

$$\chi = \frac{C}{T}, \quad (2.12)$$

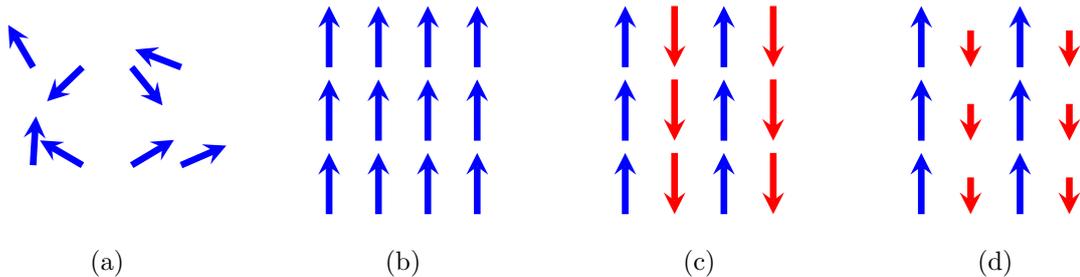
com  $C$  a constante de Curie. Assim, os momentos magnéticos tendem a se alinhar na mesma direção do campo magnético aplicado, resultando em uma magnetização induzida.

Os chamados materiais ferromagnéticos apresentam magnetização espontânea (na ausência de campo magnético externo) abaixo de uma certa temperatura crítica de ordenamento  $T_C$ , chamada de temperatura de Curie. Na fase ferromagnética, os momentos magnéticos são fortemente interagentes, de mesma magnitude e tendem a se alinhar paralelamente. Acima da temperatura crítica  $T_C$ , o material passa para a fase paramagnética, na qual é válida a lei de Curie-Weiss,

$$\chi = \frac{C}{T - T_C}. \quad (2.13)$$

Em materiais antiferromagnéticos, os momentos magnéticos são de mesma magnitude e estão dispostos em uma configuração antiparalela abaixo da chamada temperatura de Néel,  $T_N$ . Dessa maneira, não há magnetização espontânea líquida quando o material está na fase antiferromagnética. Acima de  $T_N$ , o material passa para a fase paramagnética, analogamente aos ferromagnetos. Se as magnitudes dos momentos magnéticos antiparalelos são diferentes, o material apresenta magnetização espontânea e é chamado de ferrimagneto. A figura 2 apresenta as configurações dos momentos magnéticos nos tipos de materiais discutidos aqui. Informações sobre outros tipos de materiais magnéticos podem ser encontradas, por exemplo, na referência [7].

Figura 2 – Configurações dos momentos magnéticos em um material (a) paramagnético, (b) ferromagnético, (c) antiferromagnético e (d) ferrimagnético.



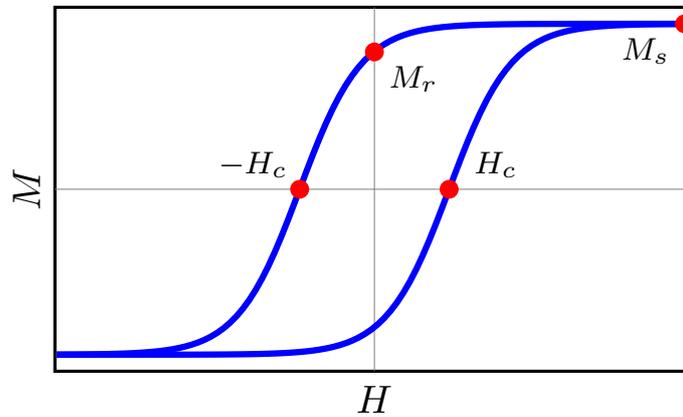
Fonte: o autor, 2025.

### 2.1.3 Teoria do campo molecular e ciclos de histerese

Conforme a teoria do campo molecular de Weiss, um material ferromagnético contém átomos com momentos magnéticos permanentes que interagem entre si pela chamada interação de troca (*exchange*, em inglês). As intensas forças de interação entre os momentos magnéticos vizinhos fazem com que eles se agrupem em pequenas regiões, formando os chamados domínios magnéticos. Todos os momentos magnéticos em um domínio apontam no mesmo sentido, de modo que se tem um momento magnético médio uniforme dentro de cada um deles [30].

Quando um material ferromagnético está desmagnetizado, a distribuição da magnetização dos diversos domínios é disposta de modo que a magnetização resultante é nula. Ao aplicar um campo magnético uniforme  $H$ , a magnetização dos domínios magnéticos tende a se orientar com a direção de  $H$ , de modo que a magnetização resultante tende a saturar para um certo valor  $M_s$  quando  $H$  é suficientemente alto. Devido à irreversibilidade das configurações dos domínios, a magnetização diminui por um caminho diferente quando o valor de  $H$  é reduzido, formando assim o chamado ciclo de histerese (ver figura 3). Quando se tem novamente  $H = 0$ , o material apresentará uma magnetização remanente  $M_r$  não-nula. Por sua vez, o valor de  $H$  para o qual  $M = 0$  é chamado de campo coercitivo,  $H_c$  [4].

Figura 3 – Representação de um ciclo de histerese.



Fonte: o autor, 2025.

Para explicar o fenômeno da magnetização espontânea, a teoria fenomenológica proposta por Weiss considera que todos os sítios de um material ferromagnético estão sob ação de um mesmo campo magnético molecular (ou campo de troca) que é proporcional à magnetização  $\mathbf{M}$ . Na presença de um campo magnético externo  $\mathbf{H}$ , o campo magnético efetivo é

$$\mathbf{H}_{\text{eff}} = \mathbf{H} + n_W \mathbf{M}, \quad (2.14)$$

com  $n_W$  a constante de campo molecular. O problema pode, então, ser tratado analogamente ao de um paramagneto, de modo que o módulo da magnetização é

$$M = Ng\mu_B J B_J(x), \quad (2.15)$$

com  $J$  o número quântico de momento angular,  $N$  o número de átomos ou íons por unidade de volume, e a função de Brillouin

$$B_J(x) = \frac{2J+1}{2J} \coth\left(\frac{2J+1}{2J}x\right) + \frac{1}{2J} \coth\left(\frac{x}{2J}\right), \quad (2.16)$$

cujo argumento é  $x = \frac{Jg\mu_B}{k_B T}(H + n_W M)$ , para  $T$  a temperatura do sistema e  $k_B$  a constante de Boltzmann. Mais detalhes sobre a teoria do campo molecular podem ser encontrados, por exemplo, nas referências [27, 30].

## 2.2 DINÂMICA DE MAGNETIZAÇÃO

Entre as diversas técnicas para estudar a magnetização de materiais ferromagnéticos, a ressonância ferromagnética (em inglês *ferromagnetic resonance*, FMR) possui um papel de destaque. O experimento de FMR envolve colocar uma amostra de um material ferromagnético sob a influência de um campo magnético alternado  $h(t)$  (geralmente na faixa de frequência de micro-ondas) perpendicular a um campo magnético estático  $H$ . Mede-se, direta ou indiretamente, a potência absorvida pela amostra durante o fenômeno de ressonância. Nesta seção, será apresentada a teoria semiclássica de Landau-Lifshitz, que fundamenta a dinâmica da magnetização em materiais magnéticos. A equação de Landau-Lifshitz é também fundamental no estudo de fenômenos como a ressonância magnética nuclear (em inglês *nuclear magnetic resonance*, NMR) e a ressonância antiferromagnética (em inglês *antiferromagnetic resonance*, AFMR), que serão abordados em detalhes para o antiferromagneto de Heisenberg  $\text{RbMnF}_3$  no capítulo 3.

### 2.2.1 Equação de Landau-Lifshitz

Em um material magnético (com um volume  $V$  considerado suficientemente grande) sujeito a um campo de indução magnética estático  $\mathbf{B}$ , tem-se que a energia associada ao momento magnético  $\boldsymbol{\mu}_i$  do  $i$ -ésimo sítio é

$$U_i = -\boldsymbol{\mu}_i \cdot \mathbf{B}, \quad (2.17)$$

o que significa que a configuração de equilíbrio corresponde a  $\boldsymbol{\mu}_i$  paralelo a  $\mathbf{B}$ . Se alguma perturbação externa retirar tal momento magnético do equilíbrio, o campo  $\mathbf{B}$  passa a exercer no momento magnético um torque dado por

$$\boldsymbol{\tau}_i = \boldsymbol{\mu}_i \times \mathbf{B}. \quad (2.18)$$

O torque  $\boldsymbol{\tau}_i$  e o momento angular  $\hbar\mathbf{J}_i$  são então relacionados pela derivada com relação ao tempo

$$\frac{d}{dt}(\hbar\mathbf{J}_i) = \boldsymbol{\tau}_i, \quad (2.19)$$

que com o uso das equações (2.5) e (2.18) torna-se

$$\frac{d\boldsymbol{\mu}_i}{dt} = -\gamma\boldsymbol{\mu}_i \times \mathbf{B}, \quad (2.20)$$

sendo a constante

$$\gamma = g\mu_B/\hbar \approx 2\pi \times 28 \text{ GHz/T} \quad (2.21)$$

chamada de razão giromagnética. Por meio das equações (2.7) e (2.8), a equação (2.20) torna-se finalmente

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\mu_0\gamma\mathbf{M} \times \mathbf{H}, \quad (2.22)$$

a qual é conhecida como a equação de Landau–Lifshitz [31] e descreve a dinâmica da magnetização. A configuração de equilíbrio ocorre quando  $d\mathbf{M}/dt = 0$ , o que significa que no equilíbrio  $\mathbf{M}$  aponta na mesma direção de  $\mathbf{H}$ .

O exemplo mais simples possível corresponde ao caso em que se tem um campo magnético uniforme  $\mathbf{H} = H\hat{z}$ . Como se supõem pequenas perturbações em torno da direção de equilíbrio, a magnetização nesse caso pode ser escrita como  $\mathbf{M} = M_x\hat{x} + M_y\hat{y} + M_z\hat{z}$ , com as componentes dinâmicas  $M_x = M_x(t)$  e  $M_y = M_y(t)$  muito menores que a componente estática  $M_z$ , de modo que o módulo da magnetização é  $M \approx M_z$ . Com isso, a equação (2.22) fornece

$$\frac{dM_x}{dt} = -\mu_0\gamma HM_y, \quad (2.23a)$$

$$\frac{dM_y}{dt} = \mu_0\gamma HM_x, \quad (2.23b)$$

que admitem soluções do tipo

$$M_x(t) = m_0 \cos(\omega_0 t), \quad (2.24a)$$

$$M_y(t) = m_0 \sin(\omega_0 t), \quad (2.24b)$$

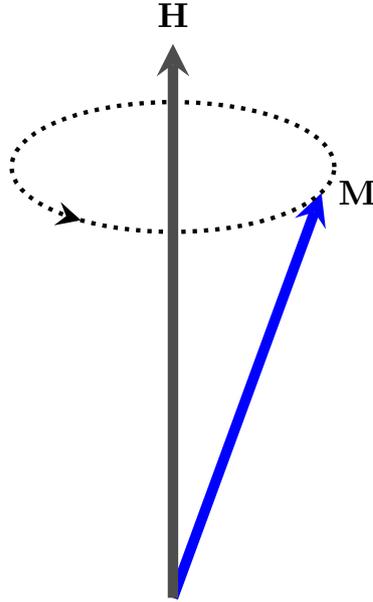
com  $\omega_0 = \mu_0\gamma H$  a chamada frequência de Larmor, e  $m_0$  a amplitude de oscilação (definida pela condição inicial). As equações (2.24) mostram que o vetor  $\mathbf{M}$  precessiona ao redor da direção do campo  $\mathbf{H} = H\hat{z}$  com uma frequência angular  $\omega_0$  (ver figura 4).

### 2.2.2 Ressonância magnética induzida por radiofrequência

As equações (2.24) implicam que a magnetização tende a precessionar indefinidamente. Porém, isso não é observado na prática, uma vez que todo material apresenta mecanismos de relaxação que fazem com que a dinâmica de magnetização seja atenuada com o tempo. Para manter a precessão, é necessário aplicar um campo magnético alternado, o que é feito por meio de uma corrente alternada de radiofrequência. No caso em que se aplica um campo alternado com frequência angular  $\omega$  perpendicularmente ao campo estático, tem-se o campo total

$$\mathbf{H} = h_x e^{-i\omega t} \hat{x} + h_y e^{-i\omega t} \hat{y} + H \hat{z}, \quad (2.25)$$

Figura 4 – Representação da precessão da magnetização ao redor da direção do campo magnético.



Fonte: o autor, 2025.

com  $i = \sqrt{-1}$  a unidade imaginária, e as componentes  $h_x$  e  $h_y$  muito menores que  $H$ . Conseqüentemente, em primeira aproximação, a magnetização pode ser escrita como

$$\mathbf{M} = m_x e^{-i\omega t} \hat{x} + m_y e^{-i\omega t} \hat{y} + M_z \hat{z}, \quad (2.26)$$

com  $m_x$  e  $m_y$  também muito menores que  $M_z$ . Com isso, a equação de Landau-Lifshitz (2.22) resulta em

$$-i\omega m_x = -\omega_0 m_y + \omega_M h_y, \quad (2.27a)$$

$$-i\omega m_y = \omega_0 m_x - \omega_M h_x, \quad (2.27b)$$

com a constante  $\omega_M = \mu_0 \gamma M_z$ .

As componentes dinâmicas da magnetização e do campo magnético podem ser escritas respectivamente como as matrizes em coluna

$$\mathbf{m} = \begin{pmatrix} m_x \\ m_y \end{pmatrix}, \quad (2.28a)$$

$$\mathbf{h} = \begin{pmatrix} h_x \\ h_y \end{pmatrix}. \quad (2.28b)$$

Com isso, as equações (2.27) resultam na equação matricial

$$\mathbf{m} = \chi \mathbf{h}, \quad (2.29)$$

com o chamado tensor de susceptibilidade magnética

$$\chi = \begin{pmatrix} \chi_{xx} & \chi_{xy} \\ \chi_{yx} & \chi_{yy} \end{pmatrix}, \quad (2.30)$$

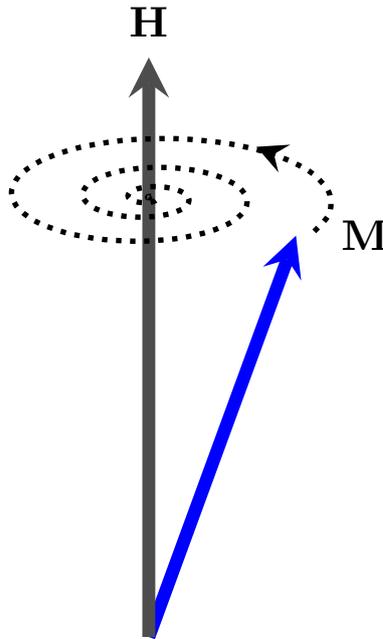
cujos elementos são dados por

$$\chi_{xx} = \chi_{yy} = \frac{\omega_M \omega_0}{\omega_0^2 - \omega^2}, \quad (2.31a)$$

$$\chi_{yx} = -\chi_{xy} = \frac{\omega_M \omega i}{\omega_0^2 - \omega^2}. \quad (2.31b)$$

O fenômeno de ressonância magnética ocorre quando a frequência angular  $\omega$  do campo magnético alternado coincide com a frequência angular de precessão  $\omega_0$  [32]. Entretanto, as equações (2.31) indicam que os elementos do tensor de susceptibilidade magnética divergem à medida que  $\omega$  se aproxima de  $\omega_0$ . Esse comportamento ocorre porque não foram considerados processos de amortecimento para a equação de Landau-Lifshitz. Isso pode ser introduzido fenomenologicamente<sup>1</sup> ao fazer  $\omega_0 \rightarrow \omega_0 - i\eta$ , com  $\eta$  a taxa de relaxação magnética do material [21]. Com isso, as componentes transversais da magnetização (isto é, as componentes em  $\hat{x}$  e  $\hat{y}$ ) decaem exponencialmente com a taxa de relaxação  $\eta$  (ver figura 5).

Figura 5 – Representação da precessão da magnetização considerando o amortecimento.



Fonte: o autor, 2025.

<sup>1</sup> Isso também pode ser feito formalmente com o uso da equação de Landau-Lifshitz-Gilbert [33].

Supondo que  $\eta \ll \omega_0$ , obtém-se das equações (2.31) que

$$\chi_{xx} = \chi_{yy} = \frac{\omega_M \omega_0}{\omega_0^2 - \omega^2 - 2\eta\omega_0 i}, \quad (2.32a)$$

$$\chi_{yx} = -\chi_{xy} = \frac{\omega_M \omega_0 i}{\omega_0^2 - \omega^2 - 2\eta\omega_0 i}. \quad (2.32b)$$

Em torno de  $\omega = \omega_0$ , pode-se aproximar  $\omega_0^2 - \omega^2 \approx 2\omega_0(\omega_0 - \omega)$ , de modo que a parte real dos elementos da diagonal do tensor de susceptibilidade é

$$\chi'_{xx} = \chi'_{yy} = \frac{\frac{1}{2}\omega_M(\omega_0 - \omega)}{(\omega_0 - \omega)^2 + \eta^2}, \quad (2.33)$$

enquanto a parte imaginária é

$$\chi''_{xx} = \chi''_{yy} = \frac{\frac{1}{2}\omega_M \eta}{(\omega_0 - \omega)^2 + \eta^2}. \quad (2.34)$$

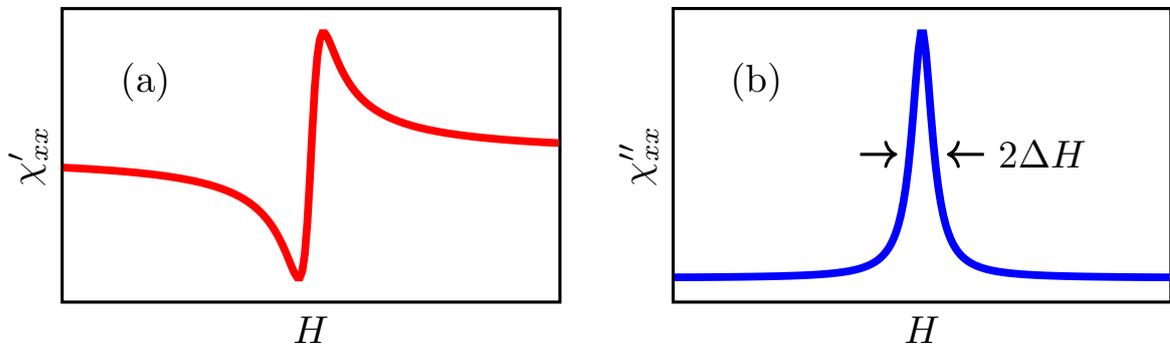
Assim,  $\chi''_{xx}$  apresenta um pico e  $\chi'_{xx}$  anula-se na ressonância.

Em função de  $H$ , observa-se que  $\chi''_{xx}$  tem a forma de uma função lorentziana, enquanto  $\chi'_{xx}$  se comporta como a derivada de uma função lorentziana (ver figura 6). Desse modo, outra quantidade importante é a largura de linha  $\Delta H$ , que corresponde à metade da diferença dos dois valores de campo magnético para os quais  $\chi''_{xx}$  é igual à metade do seu valor de pico, isto é,

$$\Delta H = \frac{\eta}{\mu_0 \gamma}. \quad (2.35)$$

Uma vez que o valor  $\Delta H$  é obtido experimentalmente, ele permite obter a taxa de relaxação como  $\eta = \mu_0 \gamma \Delta H$ .

Figura 6 – Gráficos da parte real (a) e da parte imaginária (b) dos elementos da diagonal do tensor de susceptibilidade magnética em função do campo magnético  $H$ .



Fonte: o autor, 2025.

À medida que  $\omega$  se aproxima de  $\omega_0$ , a amostra passa a absorver parte da radiação eletromagnética associada ao campo magnético alternado, tipicamente na faixa de radi-

ofrequência (rf). Supondo que o campo alternado tenha apenas a componente em  $\hat{x}$ , a média temporal da potência absorvida [34] é dada por

$$P(\omega) = \frac{1}{2} \mu_0 \omega \chi''_{xx} h_x^2. \quad (2.36)$$

Devido a isso, a parte imaginária  $\chi''_{xx}$  recebe o nome de componente de absorção da susceptibilidade [21].

Nesta seção, os momentos magnéticos do material de interesse foram considerados não-interagentes. Isso é uma boa aproximação para materiais paramagnéticos, na chamada ressonância paramagnética eletrônica (EPR, em inglês *electron paramagnetic resonance*). Em materiais ferromagnéticos, o formato da amostra apresenta um importante papel nas frequências de FMR. No caso do antiferromagneto  $\text{RbMnF}_3$ , nos estudos de AFMR e NMR, é necessário considerar as contribuições das energias de Zeeman, de troca, de anisotropia cúbica e de interação hiperfina [24, 25], as quais serão discutidas no capítulo 3.

## 2.3 FUNDAMENTOS DE SPINTRÔNICA

A spintrônica, ou eletrônica de spin, é um campo de pesquisa emergente que combina conceitos da física, engenharia e ciência dos materiais para explorar a geração de correntes de spin em materiais magnéticos [35, 36]. Nesta seção, os fundamentos da spintrônica serão brevemente discutidos, bem como alguns dos fenômenos associados à criação e detecção de correntes de spin. Serão brevemente apresentados os fenômenos de acoplamento spin-órbita, de correntes de spin e dos efeitos Hall de spin direto e inverso, que são essenciais para o entendimento dos efeitos Seebeck de spin e de bombeamento de spin.

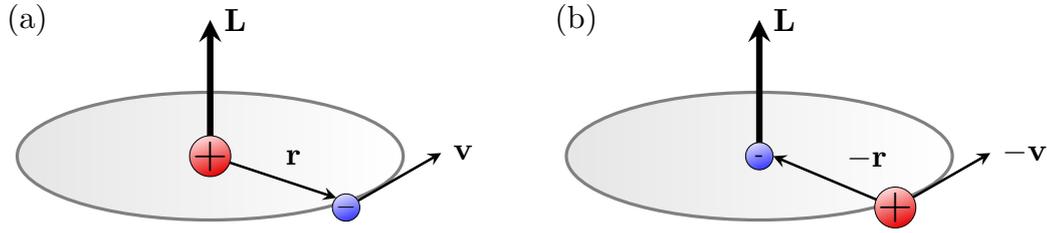
### 2.3.1 Acoplamento spin-órbita

Em uma abordagem semiclássica, o acoplamento spin-órbita (em inglês *spin-orbit coupling*, SOC) pode ser interpretado como a interação entre o momento magnético de spin do elétron e um campo magnético efetivo gerado pelo núcleo do átomo no qual o elétron orbita [27, 37]. No referencial em que o núcleo está em repouso, considera-se que o elétron move-se com uma determinada velocidade  $\mathbf{v}$  em uma órbita circular de raio  $r$ . Todavia, no referencial no qual o elétron está em repouso, o núcleo está realizando uma órbita circular com velocidade  $-\mathbf{v}$  ao redor do elétron (ver figura 7), bem como o momento angular total do elétron nesse novo referencial é dado apenas pelo momento angular de spin eletrônico. Em analogia com o discutido na seção 2.1, o movimento relativo do núcleo ao redor do elétron pode ser interpretado como uma corrente que origina um campo de indução magnética

$$\mathbf{B} = \frac{1}{c^2} \mathbf{E} \times \mathbf{v}, \quad (2.37)$$

com  $\mathbf{E}$  o campo elétrico gerado pelo núcleo.

Figura 7 – (a) Visão clássica de um elétron se movendo em uma órbita circular ao redor do núcleo do átomo. (b) O mesmo movimento visto a partir do referencial do elétron.



Fonte: o autor, 2025.

Em termos do potencial elétrico  $V(r)$ , tem-se que

$$\mathbf{E} = -\nabla V(r) = -\frac{dV(r)}{dr} \frac{\mathbf{r}}{r}, \quad (2.38)$$

de modo que a equação (2.37) torna-se

$$\mathbf{B} = -\frac{1}{c^2 r} \frac{dV(r)}{dr} (\mathbf{r} \times \mathbf{v}). \quad (2.39)$$

A partir do momento linear do elétron,  $\mathbf{p} = m_e \mathbf{v}$ , tem-se o momento angular orbital do elétron  $\hbar \mathbf{L} = \mathbf{r} \times \mathbf{p}$ , de modo que segue da equação (2.39) que

$$\mathbf{B} = -\frac{\hbar}{m_e c^2 r} \frac{dV(r)}{dr} \mathbf{L}. \quad (2.40)$$

Tal campo de indução magnética interage com o momento magnético de spin do elétron,  $\boldsymbol{\mu}_S$ , de modo que a energia de interação é dada por

$$U_{\text{SO}} = -\frac{1}{2} \boldsymbol{\mu}_S \cdot \mathbf{B}, \quad (2.41)$$

na qual o fator  $1/2$  é uma correção conhecida como fator relativístico de Thomas, obtido formalmente com o uso da equação de Dirac [28, 37].

Da equação (2.5), tem-se que o momento magnético de spin do elétron é  $\boldsymbol{\mu}_S = -\frac{e\hbar}{m_e} \mathbf{S}$ , de forma que com a equação (2.40), encontra-se da equação (2.41) que

$$U_{\text{SO}} = -\frac{e\hbar^2}{2m_e^2 c^2 r} \frac{dV(r)}{dr} (\mathbf{S} \cdot \mathbf{L}). \quad (2.42)$$

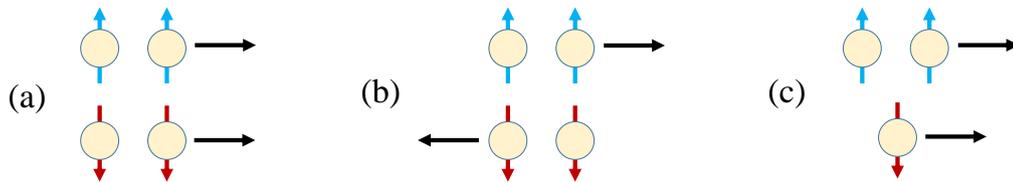
Como descrito na equação (2.42), o SOC corresponde a uma interação entre o momento angular de spin do elétron com o seu momento angular orbital. Tal efeito quântico relativístico apresenta um importante papel no estudo de átomos de metais pesados, tais como a platina (Pt).

### 2.3.2 Corrente de spin

Como elétrons possuem carga negativa, o fluxo de elétrons em um material recebe o nome de corrente elétrica ou, ainda, corrente de carga. O controle de correntes de carga deu origem à eletrônica, a qual impulsionou o desenvolvimento tecnológico a partir do século XX. Todavia, os elétrons também transportam spin, formando as chamadas correntes de spin, cujo controle possibilitou o desenvolvimento da spintrônica no final do século XX. As correntes de spin podem ser geradas tanto em metais, nos quais o transporte de spins se dá por meio dos elétrons de condução, quanto em materiais magnéticos isolantes, nos quais o transporte de spins é governado pelos mágnons [35, 36].

Em sistemas convencionais de eletrônica, as correntes puras de carga são compostas pelo mesmo número de elétrons com spin “para cima” e “para baixo” fluindo no mesmo sentido, de forma que não há corrente de spin. A corrente é chamada nesse caso de não-polarizada, conforme ilustrado na figura 8(a). Contudo, caso os elétrons com spin em uma certa direção fluam no sentido contrário ao dos elétrons com spin na direção oposta, em mesma quantidade, tem-se uma corrente pura de spin, a qual não transporta carga, como representado na figura 8(b). Se todos os elétrons fluem no mesmo sentido, mas existem mais elétrons com spin em uma direção do que na outra, a corrente recebe o nome de corrente de carga com polarização de spin, conforme apresentado na figura 8(c).

Figura 8 – Representação de (a) uma corrente pura de carga, (b) uma corrente pura de spin e (c) uma corrente de carga com polarização de spin.



Fonte: o autor, 2025.

Por obedecerem ao princípio da exclusão de Pauli, dois elétrons não podem ocupar o mesmo estado quântico. Como se sabe da mecânica estatística de sistemas quânticos, os elétrons livres com energia  $\varepsilon$  em um material metálico com temperatura  $T$  têm a ocupação dos estados de energia descrita pela distribuição de Fermi-Dirac, a saber,

$$f(\varepsilon, T) = \frac{1}{\exp\left(\frac{\varepsilon - \mu}{k_B T}\right) + 1}, \quad (2.43)$$

com  $k_B$  a constante de Boltzmann e  $\mu$  o potencial químico do material, o qual é igual à energia de Fermi  $\varepsilon_F$  para  $T = 0$  [38]. Com isso, o número de elétrons livres para uma dada temperatura é

$$n = \int_{-\infty}^{\infty} N(\varepsilon) f(\varepsilon, T) d\varepsilon, \quad (2.44)$$

sendo  $N(\varepsilon)$  a densidade de estados eletrônicos.

Em um metal não-magnético, os elétrons de condução podem ser considerados não-interagentes, em uma primeira aproximação. Isso significa que a energia é independente dos graus de liberdade dos spins, de modo que um fluxo de elétrons nesse material possuirá elétrons com spin para cima e para baixo em mesmo número, caracterizando uma corrente pura de carga. Já em materiais ferromagnéticos, a interação de troca entre os spins adjacentes desloca as bandas de energia, de modo que a banda de energia correspondente aos elétrons com spin para cima é deslocada para energias menores, tornando-os majoritários e possibilitando a existência de uma corrente de spin [21].

Sejam  $\mathbf{J}_\uparrow$  e  $\mathbf{J}_\downarrow$  respectivamente a densidade de corrente dos portadores de carga com spin para cima e para baixo, define-se a densidade de corrente de carga como

$$\mathbf{J}_C = \mathbf{J}_\uparrow + \mathbf{J}_\downarrow, \quad (2.45)$$

e a densidade de corrente de spin como

$$\mathbf{J}_S = \mathbf{J}_\uparrow - \mathbf{J}_\downarrow. \quad (2.46)$$

Como pode-se observar, a equação (2.46) implica que não há corrente de spin quando há um equilíbrio no número de portadores com spin para cima e para baixo, isto é, se  $\mathbf{J}_\uparrow = \mathbf{J}_\downarrow$  tem-se então uma corrente pura de carga, como ilustrado na figura 8(a). Todavia, se  $\mathbf{J}_\uparrow = -\mathbf{J}_\downarrow$ , então a densidade de corrente de carga anula-se e tem-se uma corrente pura de spin, como ilustrado na figura 8(b).

### 2.3.3 Conversão entre corrente de carga e corrente de spin

No final do século XIX, o físico E. H. Hall observou que quando uma corrente elétrica  $I$  flui em uma fita condutora na presença de um campo de indução magnética  $\mathbf{B}$  aplicado perpendicularmente ao plano em que a fita está contida, surge então no condutor uma tensão elétrica  $V_H$  transversal à direção da corrente elétrica [39]. Tal fenômeno, conhecido por efeito Hall clássico, apresenta diversas aplicações, especialmente em sensores para medição da magnitude de campos magnéticos. O efeito Hall é também amplamente empregado na classificação de materiais semicondutores entre tipo p e tipo n, visto que elétrons e buracos possuem carga com sinais opostos.

O efeito Hall clássico acontece porque, como se sabe da eletrodinâmica clássica, um campo de indução magnética  $\mathbf{B}$  exerce uma força  $\mathbf{F}$  em uma partícula com carga  $q$  que se movimenta com velocidade  $\mathbf{v}$ , de modo que

$$\mathbf{F} = q\mathbf{v} \times \mathbf{B}, \quad (2.47)$$

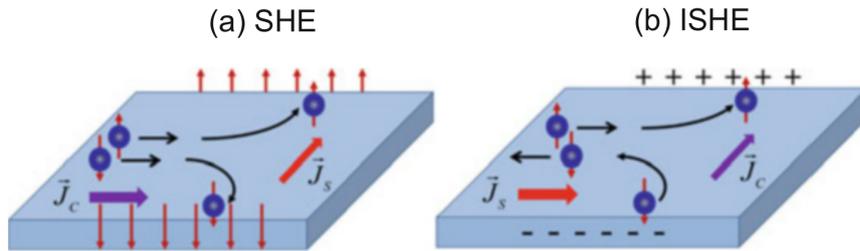
a qual recebe o nome de força de Lorentz. Assim, os portadores de carga são desviados, de tal maneira que ocorre uma acumulação de cargas, levando ao surgimento da tensão Hall. Ao considerar que a corrente elétrica flui na direção de  $\hat{x}$  e que  $\mathbf{B} = B\hat{z}$ , tem-se que a tensão Hall é dada por

$$V_H = \frac{IB}{nqd}, \quad (2.48)$$

com  $d$  a espessura da fita condutora e  $n$  a densidade de portadores de carga [5, 40].

Quando uma corrente de carga flui em um material condutor com alto acoplamento spin-órbita, os elétrons de condução com spin para cima e para baixo são espalhados em sentidos opostos e se acumulam nas bordas laterais da amostra, conforme ilustrado na figura 9(a). Assim, uma corrente de spin é produzida perpendicularmente à direção em que a corrente de carga flui, mesmo quando não há campo magnético externo aplicado. Tal fenômeno foi inicialmente predito teoricamente por Dyakonov e Perel em 1971 [41, 42], e recebeu o nome de efeito Hall de spin (em inglês *spin Hall effect*, SHE) por Hirsch em 1999 [43].

Figura 9 – Ilustração (a) do efeito Hall de spin (SHE) e (b) do efeito Hall de spin inverso (ISHE).



Fonte: Rezende, 2020 [21].

O efeito Hall de spin pode ser entendido, de forma simplificada, ao considerar que os elétrons não-polarizados no meio espalhador estão sujeitos a um potencial de interação coulombiano e a um potencial associado ao SOC. Como o potencial devido ao SOC é proporcional ao produto escalar  $\mathbf{S} \cdot \mathbf{L}$ , os elétrons com spin para cima e spin para baixo são espalhados em direções opostas quando a corrente elétrica é aplicada no material com alto acoplamento spin-órbita.

Tal fenômeno foi verificado experimentalmente por meio da detecção da polarização de spin com o efeito Kerr magneto-óptico (em inglês *magneto-optic Kerr effect*, MOKE) em semicondutores [44] e por medidas eletrônicas diretas em estruturas metálicas [45]. Dada uma densidade de corrente de carga  $\mathbf{J}_C$ , é possível mostrar que a densidade de corrente de spin gerada pelo SHE é dada por

$$\mathbf{J}_S = \frac{\hbar}{2e} \theta_{SH} (\hat{\sigma} \times \mathbf{J}_C), \quad (2.49)$$

sendo  $\hat{\sigma}$  o versor que aponta na direção da polarização de spin e  $\theta_{SH}$  o chamado ângulo Hall de spin, o qual descreve a eficiência de conversão [46].

O fenômeno recíproco do SHE é o efeito Hall de spin inverso (em inglês *inverse spin Hall effect*, ISHE), no qual ocorre a conversão parcial de corrente de spin em uma corrente de carga, também devido ao SOC, como representado na figura 9(b). O ISHE foi verificado experimentalmente no ano de 2005 por Azevedo *et al.* em tricamadas do tipo ferromagneto/metal normal/ferromagneto [11]. A densidade de corrente de carga devida ao ISHE é expressa por

$$\mathbf{J}_C = \frac{2e}{\hbar} \theta_{SH} (\mathbf{J}_S \times \hat{\boldsymbol{\sigma}}), \quad (2.50)$$

em analogia com a equação (2.49). O ISHE apresenta um importante papel na interpretação de experimentos de bombeamento de spin e do efeito Seebeck de spin, como será discutido nos capítulos 4 e 6.

## 2.4 TÉCNICAS EXPERIMENTAIS

Existem diversas técnicas de preparação de materiais amplamente empregadas na produção de dispositivos eletrônicos e de materiais magnéticos em geral. Em particular, esta subseção abordará brevemente duas técnicas fundamentais para a elaboração deste trabalho: o método de Czochralski para produção de monocristais de  $\text{RbMnF}_3$  e a deposição por vaporização catódica para a produção de filmes finos nanométricos de platina e *permalloy*. Uma extensa lista sobre métodos para crescimento de cristais pode ser encontrada, por exemplo, na referência [47]. Além disso, serão apresentadas as técnicas experimentais utilizadas para medidas em baixas temperaturas.

### 2.4.1 Técnicas de preparação de materiais

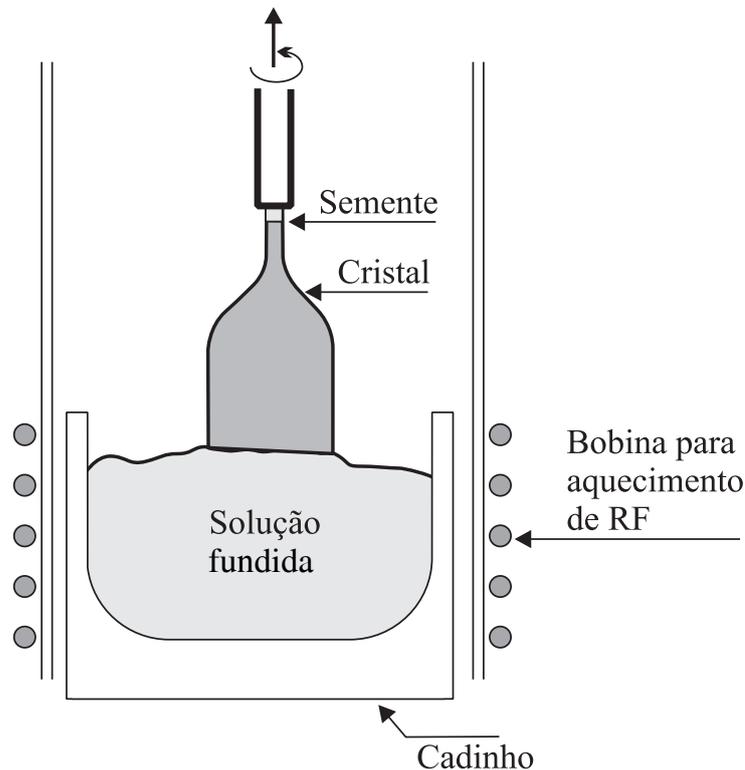
#### 2.4.1.1 Método de Czochralski

Um sólido monocristalino é um material cuja rede cristalina se estende de forma contínua por todo o seu volume, caracterizando-se pela ausência de defeitos cristalográficos. A produção de monocristais envolve geralmente a solidificação de um líquido que contém os elementos constituintes da rede cristalina. Para iniciar o processo, uma pequena amostra do cristal, conhecida como semente, é inserida na solução derretida sob condições controladas de concentração e volume. O objetivo é promover o crescimento do cristal a partir da semente, permitindo que os átomos da solução se unam gradualmente a ela [6]. Em um recipiente denominado de cadinho, a solução fundida é obtida através da fundição dos elementos constituintes utilizando uma bobina para aquecimento por radiofrequência (rf) ou um forno resistivo.

No chamado método de Czochralski, a semente é posicionada em contato com a superfície da solução por meio de uma haste que gira lentamente [6, 47, 48]. Conforme a haste é levantada gradualmente, o cristal aumenta de tamanho devido à solidificação da solução ao redor de semente, como ilustrado na figura 10. Esse processo cuidadoso e

controlado é fundamental para a obtenção de monocristais de alta qualidade, utilizados em diversas aplicações tecnológicas. As amostras de  $\text{RbMnF}_3$  utilizadas para a elaboração deste trabalho foram clivadas de um monocristal produzido pelo método de Czochralski no *Crystal Physics Laboratory* do *Massachusetts Institute of Technology* (MIT). A preparação de monocristais de  $\text{RbMnF}_3$  com esse método é descrita em detalhes na referência [49].

Figura 10 – Representação do método de Czochralski.



Fonte: adaptado de Rezende, 2004 [6].

#### 2.4.1.2 Deposição por vaporização catódica

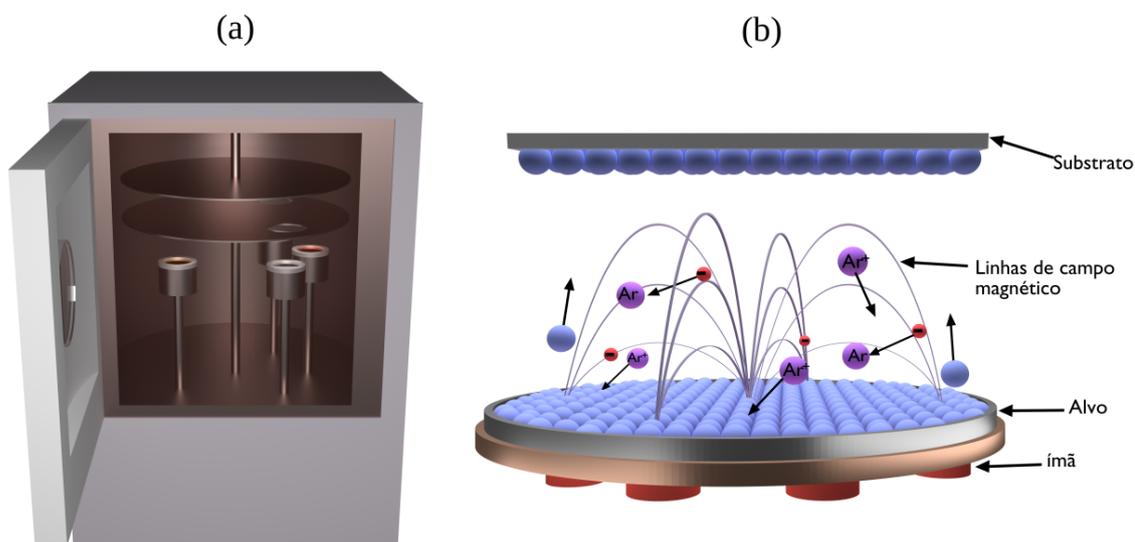
A produção de filmes finos com espessura nanométrica, na ordem de 1 nm (ou  $10^{-9}$  m), tem sido fundamental para o avanço de dispositivos eletrônicos mais sofisticados e para o desenvolvimento da spintrônica. Existem diversos métodos para a obtenção desses filmes finos, que se baseiam na deposição controlada de átomos ou moléculas de um material-alvo sobre a superfície de um substrato. Essas técnicas permitem a criação de camadas com propriedades específicas, essenciais para a miniaturização e a melhoria do desempenho de componentes eletrônicos [6].

Na técnica de deposição por vaporização catódica, ou simplesmente pulverização (em inglês *sputtering*), a primeira etapa consiste em remover o ar atmosférico da câmara (onde estão o substrato e o alvo) com o uso de uma bomba de vácuo, até uma pressão da ordem de  $10^{-7}$  Torr. Em seguida, injeta-se um gás nobre (tal como o argônio), até que se atinja uma pressão da ordem de  $10^{-3}$  Torr, para que se obtenha uma atmosfera inerte. A

aplicação de uma tensão elétrica da ordem de 500 V entre a base do substrato e o alvo faz com que o gás nobre se ionize, produzindo um plasma [47].

Tais íons colidem com os átomos ou moléculas do alvo, removendo-os e formando um vapor depositado sobre o substrato. Para assegurar o confinamento do plasma próximo aos alvos e aprimorar a eficiência da deposição, empregam-se ímãs permanentes, de modo que esse processo é conhecido por *magnetron sputtering* [50, 51], conforme ilustrado na figura 11. Os filmes finos de platina e *permalloy* utilizados para a elaboração deste trabalho foram produzidos no Laboratório de Preparação de Materiais do Departamento de Física da Universidade Federal de Pernambuco<sup>2</sup>.

Figura 11 – (a) Ilustração da câmara utilizada para a deposição e (b) representação do processo de *magnetron sputtering*.



Fonte: D. S. Maior, 2018 [51].

O equipamento utilizado para a produção dos filmes finos pela técnica de deposição de vaporização catódica foi fabricado pela empresa Balzers, modelo PLS 500. O primeiro passo antes da deposição consiste em realizar uma limpeza na amostra monocristalina de  $\text{RbMnF}_3$  por meio de um banho ultrassônico com acetona 99%, de modo a remover eventuais contaminações superficiais. Em seguida, a amostra é presa por uma fita dupla-face no prato do equipamento, ilustrado na figura 11(a). O alvo do material que se deseja depositar é posto em um dos quatro canhões presentes na câmara. Após a inserção do prato, faz-se vácuo na câmara e injeta-se o argônio, como descrito anteriormente. A espessura do material depositado é estimada pela taxa de deposição do material em função do tempo, a qual é previamente calibrada.

<sup>2</sup>O autor é grato a J. E. Abrão, E. Gomes da Silva, J. L. Costa, J. G. S. Santos e E. Santos pela preparação dos filmes finos utilizados neste trabalho.

### 2.4.2 Physical Property Measurement System (PPMS)

As medidas do efeito Seebeck de spin e de polarização de troca deste trabalho (ver capítulos 6 e 7) foram realizadas em um Physical Property Measurement System (PPMS) modelo 6000 da empresa Quantum Design (ver figura 12), utilizando respectivamente os módulos de resistividade e de magnetometria AC/DC. Com a utilização de hélio líquido, o PPMS permite um controle de temperatura que varia de 2 até 340 K, com uma acurácia de  $\pm 0,01$  K, o que garante uma ótima precisão nas medidas com variação de temperatura. Além disso, devido à presença de uma bobina supercondutora, é possível atingir campos magnéticos de até 9 T (90 kOe), proporcionando um ambiente experimental adequado para a investigação de fenômenos magnéticos em altos campos. O processo de aquisição de dados nesse equipamento é automatizado pelo programa MultiVu, que facilita o registro e a análise dos dados experimentais por meio de sequências programáveis na própria interface do *software*.

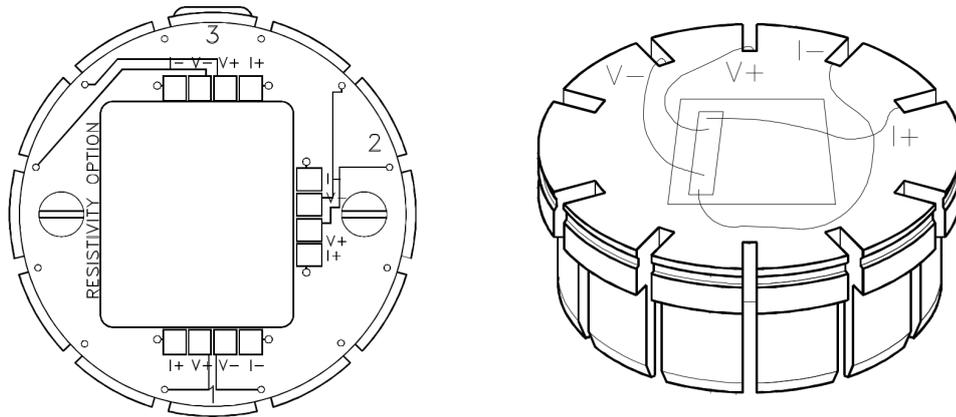
Figura 12 – *Physical Property Measurement System* (PPMS) modelo 6000.



Fonte: Quantum Design, 2009 [52].

Para as medidas de tensão elétrica do efeito Seebeck de spin, utilizou-se o módulo de resistividade. O porta-amostras (*sample puck*) deste módulo permite uma montagem que comporta até três medidas do tipo quatro pontas simultaneamente [52], conforme ilustrado na figura 13. O método de quatro pontas é amplamente utilizado em medidas de resistência, pois possibilita a obtenção de resultados precisos ao utilizar dois fios para conduzir a corrente elétrica na amostra e outros dois fios para medir a tensão elétrica no material. Dessa forma, a resistência dos fios e dos contatos elétricos é negligenciada, resultando em medidas mais confiáveis e representativas das propriedades da amostra em estudo.

Figura 13 – Ilustração do porta-amstras utilizado para as medidas no módulo de resistividade do PPMS.



Fonte: Quantum Design, 2009 [52].

As medidas de magnetização foram realizadas no módulo de magnetometria AC/DC, conhecido como *AC Measurement System (ACMS)*. O módulo ACMS pode ser utilizado tanto como magnetômetro DC quanto como susceptômetro AC, funcionando em conjunto com a automação da temperatura da câmara do PPMS e a varredura do campo magnético aplicado. Para garantir a integridade das medidas, a amostra é presa a uma haste de fibra de carbono utilizando uma cápsula gelatinosa não-magnética e fita de teflon. Após essa preparação, a amostra é inserida na câmara do PPMS, onde as condições experimentais são controladas.

As curvas de histerese são obtidas através de uma técnica conhecida como magnetometria por extração. Resumidamente, essa técnica emprega um motor de passo para movimentar rapidamente uma amostra magnetizada dentro de uma região onde estão dispostas um par de bobinas em série, enroladas em sentidos contrários. À medida que a amostra é movimentada, a variação do fluxo magnético induz uma força eletromotriz (fem) no circuito, a qual é proporcional à magnetização da amostra, de acordo com a lei de Faraday [1]. Essa abordagem permite a obtenção de dados precisos sobre o comportamento magnético da amostra sob diferentes condições de campo magnético, contribuindo para uma melhor compreensão dos fenômenos magnéticos em estudo.

### 2.4.3 Montagem experimental com o criostato

Para as medidas de ressonância magnética nuclear e do efeito de bombeamento de spins no antiferromagneto  $\text{RbMnF}_3$ , foi utilizado um criostato, conforme ilustrado na figura 14, modelo CS202-DMX-3 da empresa Advanced Research System (ARS). Ao acoplar um compressor de gás de hélio modelo ARS-4HW, é possível que o hélio líquido em ciclo fechado resfrie a ponta do criostato, permitindo a realização de experimentos em baixas temperaturas. Esse sistema é nominalmente capaz de alcançar temperaturas de até 4,2 K, que corresponde ao ponto de ebulição do  $^4\text{He}$  a pressão atmosférica.

Devido à sua alta versatilidade, o criostato permite ajustes na montagem de acordo com as necessidades específicas de cada medida experimental. Essa adaptabilidade é importante para a otimização dos experimentos, permitindo a configuração de diferentes geometrias e acessórios. Ademais, para manter o sistema em alto vácuo, na ordem de  $10^{-4}$  até  $10^{-6}$  mbar, foi utilizada uma bomba turbomolecular da Pfeiffer, garantindo assim um ambiente com o mínimo possível de gases atmosféricos, o que é essencial para medidas em baixas temperaturas.

Figura 14 – Criostato da Advanced Research System (ARS).



Fonte: Advanced Research System, 2024 [53].

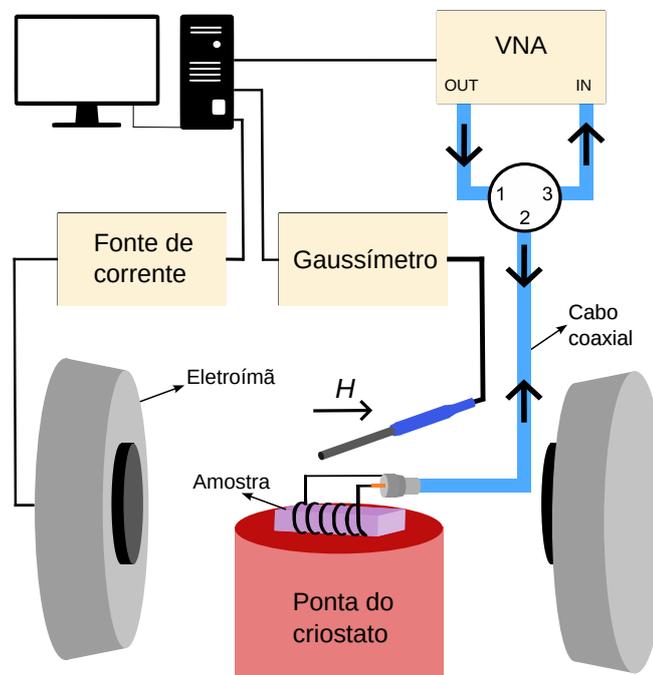
Um aquecedor resistivo de  $100 \Omega$  foi utilizado para aquecer a ponta do criostato, permitindo o aumento controlado da temperatura da amostra, mesmo com o compressor em operação durante a realização dos experimentos. Para a aplicação de um campo magnético externo, foi empregado um eletroímã modelo HV-5H da Walker Scientific, capaz de gerar um campo de até  $0,6 \text{ T}$  ( $6 \text{ kOe}$ ). O controle da corrente elétrica para o eletroímã é realizado por meio de duas fontes de corrente modelo N5769A da Agilent, conectadas em paralelo, o que proporciona um ajuste preciso do campo magnético. O campo magnético gerado foi medido utilizando um sensor de efeito Hall do gaussímetro modelo 7030 da empresa F. W. Bell.

A montagem experimental conta ainda com um analisador de rede vetorial (em inglês *vector network analyzer*, VNA) modelo 4396B da Agilent, o qual permite a realização de medidas de impedância e de ressonância magnética na faixa de frequências que varia de  $100 \text{ kHz}$  até  $1,8 \text{ GHz}$ , com uma potência máxima de  $20 \text{ dBm}$  ( $100 \text{ mW}$ ). A temperatura do sistema foi medida utilizando um termômetro do tipo Cernox (ver apêndice A), que oferece alta precisão em medidas em baixas temperaturas. Um teste de transmissão/reflexão modelo 87512A da Agilent foi acoplado ao VNA para a execução das medidas de transmissão e reflexão. Ademais, um nanovoltímetro modelo 2182A da Keithley foi utilizado para

as medidas de tensão elétrica do efeito de bombeamento de spin, garantindo a precisão necessária para a análise dos dados.

Os experimentos de ressonância magnética nuclear podem ser realizados simplesmente enrolando uma bobina de fio de cobre ao redor da amostra [54]. Através dessa bobina, aplica-se uma corrente alternada de radiofrequência (rf), conforme ilustrado na figura 15. Mais detalhes sobre essa montagem experimental serão apresentados no capítulo 4, onde serão discutidos os resultados obtidos acerca do efeito de bombeamento de spin eletrônico-nuclear no antiferromagneto  $\text{RbMnF}_3$ . A aquisição dos dados obtidos durante os experimentos foi completamente automatizada por meio da linguagem de programação gráfica LabVIEW, utilizando o padrão de comandos SCPI e cabos do tipo GPIB.

Figura 15 – Representação simplificada da montagem experimental para ressonância magnética nuclear.



Fonte: o autor, 2025.

Para a realização dos experimentos, foi necessária uma reformulação completa das conexões elétricas e de vácuo do criostato<sup>3</sup>. Os cabos coaxiais, juntamente com os fios de par trançado para baixas temperaturas, foram fixados ao criostato utilizando uma fina camada de verniz GE, que proporciona isolamento e proteção adequados nas condições experimentais. Além disso, foram adicionados dois sensores Hall para auxiliar no alinhamento da amostra com a direção do campo magnético gerado pelo eletroímã, garantindo uma configuração de alinhamento mais precisa para as medidas.

Para facilitar os contatos elétricos, foi confeccionado um porta-amostras utilizando uma placa de fibra de vidro cobreada, permitindo até doze contatos simultâneos. Essa configuração não só otimiza a eficiência dos experimentos, mas também assegura a versatilidade

<sup>3</sup>O autor é grato a D. S. Maior, E. C. Souza e D. R. Ratkovski pelas importantes contribuições na montagem experimental com o criostato.

do sistema. Dessa forma, a montagem do criostato poderá, no futuro, ser empregada em outros tipos de experimentos, como o efeito Seebeck de spin, ressonância ferromagnética com linha de fita, e magneto-impedância gigante em baixas temperaturas.

### 3 TEORIA SEMICLÁSSICA PARA RESSONÂNCIAS ANTIFERROMAGNÉTICA E NUCLEAR DO $\text{RbMnF}_3$

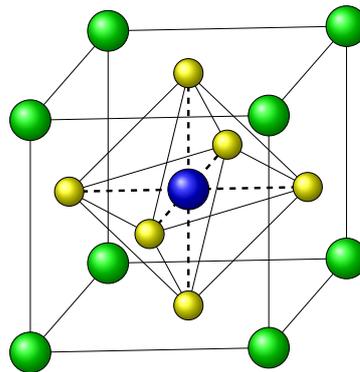
Durante a década de 1960, materiais antiferromagnéticos do tipo  $\text{XMnF}_3$  (com  $X = \text{Rb}, \text{K}, \text{Cs}$ ) foram extensivamente estudados em vários tipos de investigações [24, 55–60]. Esse grupo de materiais destaca-se principalmente pelo alto campo magnético de troca e baixo campo magnético de anisotropia, de forma que é possível realizar experimentos de ressonância antiferromagnética (AFMR) e de ressonância magnética nuclear (NMR) com valores de campos magnéticos externos relativamente baixos (da ordem de alguns kOe) [61]. O objetivo deste capítulo é apresentar a teoria semiclássica para descrever as frequências de AFMR e NMR do  $\text{RbMnF}_3$ , bem como compará-las com os dados experimentais.

#### 3.1 O ANTIFERROMAGNETO DE HEISENBERG $\text{RbMnF}_3$

##### 3.1.1 Propriedades magnéticas e estruturais

O trifluoromanganato(II) de rubídio ( $\text{RbMnF}_3$ ) é um material antiferromagnético isolante com temperatura de Néel  $T_N \approx 82,6 \text{ K}$  e que apresenta uma estrutura cristalina do tipo perovskita. Como representado na figura 16, o  $\text{RbMnF}_3$  é formado por uma rede cúbica com o parâmetro de rede  $a \approx 4,24 \text{ \AA}$ , cuja célula unitária apresenta um íon de  $\text{Mn}^{2+}$  no centro do cubo, íons de  $\text{Rb}^+$  nas bordas do cubo, e íons de  $\text{F}^-$  centrados nas faces do cubo [55, 60]. Conseqüentemente, os íons de  $\text{Mn}^{2+}$  no cristal formam duas sub-redes eletrônicas cujos momentos magnéticos dispõem-se antiparalelamente [25].

Figura 16 – Estrutura cristalina do antiferromagneto  $\text{RbMnF}_3$ . Os íons de  $\text{Rb}^+$ ,  $\text{F}^-$  e  $\text{Mn}^{2+}$  estão representados pelas esferas de cor verde, amarela e azul, respectivamente.



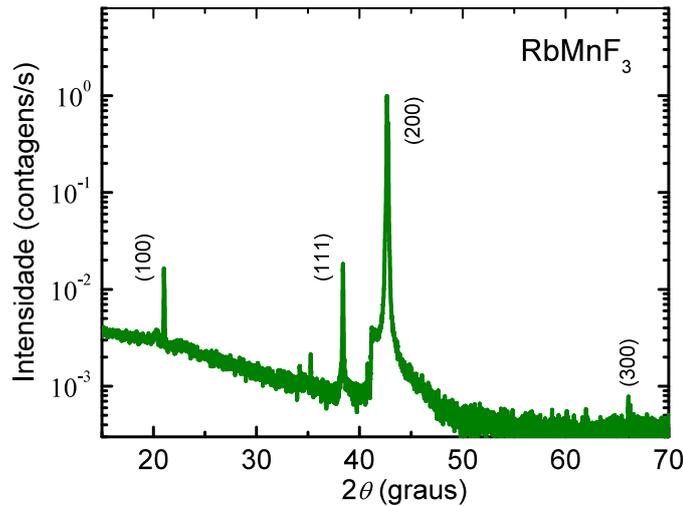
Fonte: o autor, 2025.

A estrutura cristalina do  $\text{RbMnF}_3$  não apresenta distorções mensuráveis da simetria cúbica, de tal forma que a anisotropia dipolar é praticamente nula. Devido à estrutura cristalina cúbica, onde o campo dipolar no centro da célula unitária se anula, e ao fato de que os íons magnéticos  $\text{Mn}^{2+}$  possuem o estado fundamental eletrônico  $3d^5(^6S_{5/2})$  sem momento angular orbital, a interação total de anisotropia é muito pequena, de modo que o

RbMnF<sub>3</sub> é um antiferromagneto tridimensional de Heisenberg quase ideal<sup>1</sup> [25, 62]. Dessa maneira, o RbMnF<sub>3</sub> apresenta um alto campo efetivo de troca ( $H_E \approx 8,16 \times 10^5$  Oe) e um baixo campo efetivo de anisotropia cristalina ( $H_A \approx 4,59$  Oe), sendo o seu campo de spin-*flop*  $H_{SF}$  apenas de 2,37 kOe. As respectivas magnetizações efetivas das sub-redes tendem a se alinhar na direção [111] na ausência de campo magnético, de modo que  $\langle 111 \rangle$  são os eixos fáceis de magnetização.

Os experimentos desta tese foram feitos com amostras de RbMnF<sub>3</sub> clivadas de prismas retangulares *bulk* com dimensões aproximadas de  $3 \times 4 \times 7$  mm<sup>3</sup>, com todas as faces nos planos  $\langle 110 \rangle$ , que foram cortadas de um monocristal crescido pelo método de Czochralski. As amostras foram caracterizadas por dois tipos de medidas: difração de raios X e magnetização. A figura 17 apresenta o padrão de difração de raio X do pó de RbMnF<sub>3</sub> medido com um difratômetro de raios X Rigaku modelo Smartlab, com a radiação K- $\alpha$  de Cu ( $\lambda = 1,5418$  Å), de modo que têm-se um pico proeminente correspondente ao plano (200) do RbMnF<sub>3</sub> e picos menores correspondentes aos planos (100), (111) e (300).

Figura 17 – Difração de raio X da amostra em pó de RbMnF<sub>3</sub> antes da clivagem.

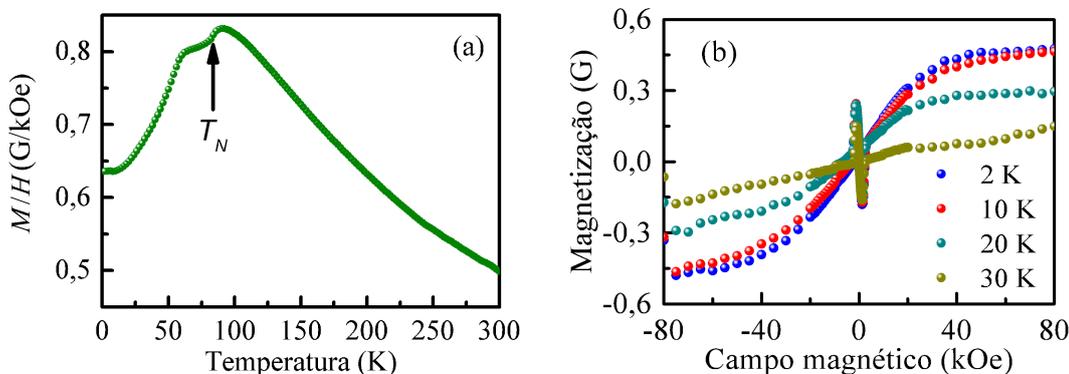


Fonte: o autor, 2025.

A figura 18(a) mostra medidas da variação da magnetização do RbMnF<sub>3</sub> com a temperatura para um campo magnético fixo de 1 kOe (fase antiferromagnética) ao longo do eixo [001], na qual é possível ver a mudança do comportamento da magnetização na transição para a fase paramagnética na temperatura de Néel [62]. Por sua vez, a figura 18(b) apresenta as medidas da magnetização em função do campo magnético aplicado ao longo do eixo [001] para várias temperaturas. A rápida variação de  $M$  próxima à origem é devida à transição para a fase spin-*flop* do material. As medidas foram realizadas com o módulo ACMS do PPMS.

<sup>1</sup>Um antiferromagneto ideal de Heisenberg é um sistema isotrópico que pode ser descrito pelo modelo de Heisenberg, que considera apenas as interações de troca entre os spins vizinhos.

Figura 18 – (a) Variação com a temperatura da magnetização do RbMnF<sub>3</sub> medida com um campo magnético de 1 kOe aplicado na direção [001]. (b) Magnetização em função do campo magnético para várias temperaturas.



Fonte: adaptado da referência [62].

Os estudos de AFMR nesse material foram inicialmente relatados na referência [60], na qual se observou que os modos de AFMR variam consideravelmente com a temperatura, sendo isso atribuído à interação hiperfina entre os momentos magnéticos nucleares e eletrônicos dos isótopos de <sup>55</sup>Mn. Já os primeiros experimentos de NMR no RbMnF<sub>3</sub> foram apresentados na referência [63] com o material na fase *spin-flop*. A teoria semiclássica baseada na equação Landau-Lifshitz para as ressonâncias antiferromagnética e nuclear acopladas no RbMnF<sub>3</sub> foi proposta por Cole e Ince nas referências [24, 25], e apresenta uma excelente concordância com os resultados experimentais relatados.

### 3.1.2 Energia magnética livre

Este capítulo seguirá a abordagem proposta nas referências [24, 25], as quais descrevem uma teoria semiclássica para obter as frequências de ressonância do RbMnF<sub>3</sub> em função do campo magnético aplicado. Será utilizado um sistema de coordenadas que coincide com as direções principais da rede cúbica, de modo que  $\hat{x}$ ,  $\hat{y}$  e  $\hat{z}$  são paralelos às direções [100], [010] e [001], respectivamente. A energia livre total do sistema é então dada por

$$E = E_Z + E_{\text{exc}} + E_{\text{an}} + E_{\text{hf}}, \quad (3.1)$$

com as energias de Zeeman  $E_Z$ , de troca  $E_{\text{exc}}$ , de anisotropia cúbica  $E_{\text{an}}$  e de interação hiperfina  $E_{\text{hf}}$ . Por conveniência, serão consideradas unidades no CGS, no qual  $\mu_0 = 1$ .

Denotam-se as magnetizações das sub-redes eletrônicas por  $\mathbf{M}_1$  e  $\mathbf{M}_2$  e as magnetizações das sub-redes nucleares por  $\mathbf{N}_1$  e  $\mathbf{N}_2$ , as quais são devidas aos íons de Mn<sup>2+</sup> no material [64]. Assim, para um determinado campo magnético externo estático  $\mathbf{H}$  aplicado em uma direção arbitrária, tem-se a energia de Zeeman

$$E_Z = -(\mathbf{M}_1 + \mathbf{M}_2) \cdot \mathbf{H} - (\mathbf{N}_1 + \mathbf{N}_2) \cdot \mathbf{H}. \quad (3.2)$$

Por sua vez, a energia de troca (em inglês *exchange*) descreve a interação entre as magnetizações das sub-redes eletrônicas, de modo que

$$E_{\text{exc}} = -W_{12}\mathbf{M}_1 \cdot \mathbf{M}_2, \quad (3.3)$$

no qual se tem a constante de troca do material  $W_{12} < 0$ . O termo de troca envolvendo os momentos magnéticos nucleares (o qual é proporcional a  $\mathbf{N}_1 \cdot \mathbf{N}_2$ ) é tido como desprezível.

A energia de anisotropia descreve o fato de que as propriedades magnéticas de um material dependem da direção na qual o campo magnético externo é aplicado. O termo de anisotropia cúbica para o RbMnF<sub>3</sub> é em primeira aproximação

$$E_{\text{an}} = -\sum_{i=1}^2 \frac{K}{M_i^4} \left( M_{ix}^2 M_{iy}^2 + M_{iy}^2 M_{iz}^2 + M_{iz}^2 M_{ix}^2 \right), \quad (3.4)$$

para  $K > 0$  a constante de anisotropia [4]. Em coordenadas esféricas, as componentes da magnetização podem ser escritas como  $M_{ix} = M_i \sin(\theta_i) \cos(\varphi_i)$ ,  $M_{iy} = M_i \sin(\theta_i) \sin(\varphi_i)$  e  $M_{iz} = M_i \cos(\theta_i)$ , sendo  $\theta_i$  o ângulo polar e  $\varphi_i$  o ângulo azimutal, de modo que a equação (3.4) torna-se então

$$E_{\text{an}} = -\frac{K}{4} \sum_{i=1}^2 \left[ \sin^4(\theta_i) \sin^2(2\varphi_i) + \sin^2(2\theta_i) \right]. \quad (3.5)$$

Por fim, a interação entre os momentos magnéticos eletrônicos e os respectivos momentos magnéticos nucleares é descrita pelo termo de interação hiperfina

$$E_{\text{hf}} = -\alpha(\mathbf{N}_1 \cdot \mathbf{M}_1 + \mathbf{N}_2 \cdot \mathbf{M}_2), \quad (3.6)$$

no qual  $\alpha$  é o coeficiente de acoplamento [25].

### 3.1.3 Configuração de equilíbrio

Por conseguinte, é necessário obter a configuração de equilíbrio da magnetização em função do campo magnético estático  $\mathbf{H}$  quando não há presença do campo magnético alternado de radiofrequência (rf), o que corresponde ao caso estacionário. O problema pode ser reduzido para duas dimensões ao considerar que  $\mathbf{H}$  é aplicado no plano (110), de modo que a magnetização de cada uma das sub-redes também está contida nesse plano. Os termos nucleares podem ser negligenciados no equilíbrio, visto que nesse caso as magnetizações das sub-redes nucleares estão paralelas às correspondentes magnetizações eletrônicas.

No plano (110), a direção de equilíbrio do vetor magnetização de cada sub-rede forma um ângulo  $\theta$  com a direção [001] do cristal, a qual corresponde ao eixo  $z$  do sistema de coordenadas escolhido (ver figura 19). Além disso, na presença de um campo magnético

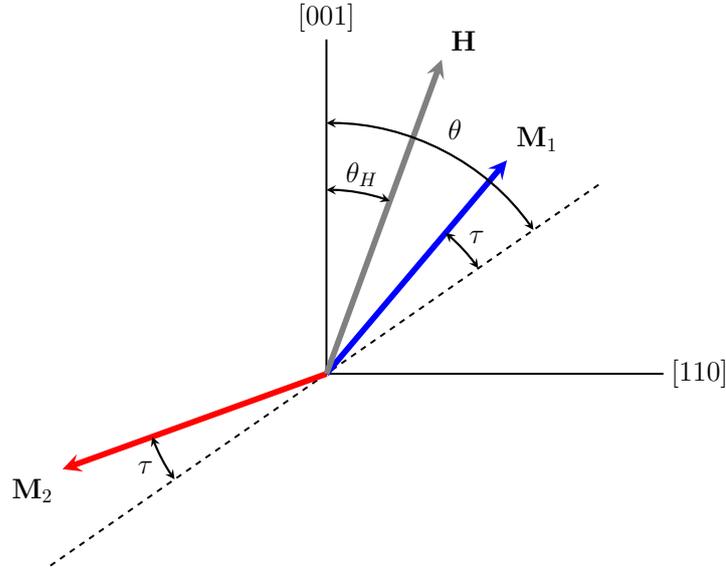
externo, a magnetização é desviada da direção de equilíbrio por um pequeno ângulo  $\tau$ . Caso seja necessário introduzir correções devidas à variação de temperatura do sistema, pode-se fazer

$$M_1 = M + \frac{1}{2}\chi_{\parallel}(T)H_{\parallel}, \quad (3.7a)$$

$$M_2 = M - \frac{1}{2}\chi_{\parallel}(T)H_{\parallel}, \quad (3.7b)$$

com  $H_{\parallel}$  a componente do campo magnético paralela à direção de equilíbrio e  $\chi_{\parallel}(T)$  a susceptibilidade paralela, a qual depende da temperatura [25, 30, 65]. No entanto, essa correção é desprezível para valores de temperatura suficientemente pequenos, de modo que para os interesses deste capítulo pode-se considerar  $M_1 = M_2 = M$ .

Figura 19 – Configuração de equilíbrio do RbMnF<sub>3</sub> no plano (110).



Fonte: o autor, 2025.

Negligenciando os termos provenientes das interações nucleares, a energia de Zeeman na equação (3.2) torna-se

$$E_Z = -MH \cos(\theta - \theta_H - \tau) - MH \cos(\theta - \theta_H + \pi + \tau), \quad (3.8)$$

a qual pode ser reescrita como

$$E_Z = -2MH \sin(\theta - \theta_H) \sin(\tau), \quad (3.9)$$

com  $\theta_H$  o ângulo entre o campo magnético aplicado e a direção [001]. Do mesmo modo, o termo de troca em (3.3) torna-se

$$E_{\text{exc}} = W_{12}M^2 \cos(2\tau). \quad (3.10)$$

O plano (110) corresponde a fazer  $\varphi_i = \pi/4$ , de modo que o termo de anisotropia em (3.5) pode ser escrito como

$$E_{\text{an}} = -\frac{K}{4} \left[ \sin^4(\theta - \tau) + \sin^2(2(\theta - \tau)) + \sin^4(\theta + \tau) + \sin^2(2(\theta + \tau)) \right]. \quad (3.11)$$

Como a contribuição da energia de anisotropia é muito pequena para o RbMnF<sub>3</sub>, pode-se desprezar o efeito de  $\tau$  em  $E_{\text{an}}$ , de modo que se tem

$$E_{\text{an}} \approx -\frac{K}{2} \left[ \sin^4(\theta) + \sin^2(2\theta) \right]. \quad (3.12)$$

Dessa forma, a energia livre total é

$$E = -2MH \sin(\theta - \theta_H) \sin(\tau) + W_{12}M^2 \cos(2\tau) - \frac{K}{2} \left[ \sin^4(\theta) + \sin^2(2\theta) \right]. \quad (3.13)$$

Ao minimizar a equação (3.13) com relação a  $\tau$  e usar as aproximações para pequenos ângulos,  $\cos(\tau) \approx 1$  e  $\sin(\tau) \approx \tau$ , encontra-se

$$\tau \approx \frac{H}{2H_E} \sin(\theta - \theta_H), \quad (3.14)$$

para  $H_E = |W_{12}|M$  o campo efetivo de troca. Substituindo a equação (3.14) na equação (3.13) e minimizando a energia livre total com relação a  $\theta$ , obtém-se

$$H^2 \sin(2(\theta - \theta_H)) = -\frac{1}{2} H_{SF}^2 \sin(2\theta) [1 + 3 \cos(2\theta)], \quad (3.15)$$

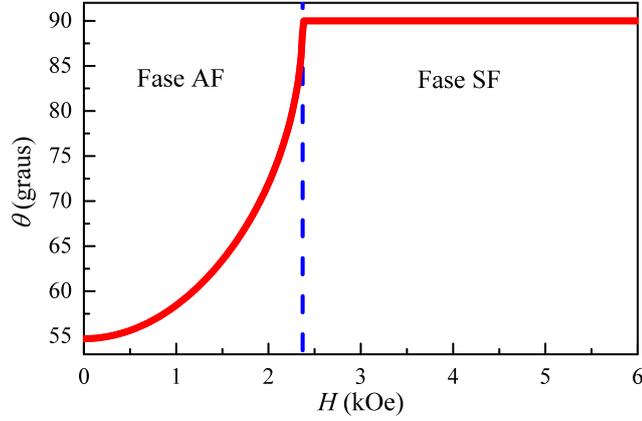
na qual  $H_{SF} = \sqrt{\frac{3}{2} H_A H_E}$  é o chamado campo de spin-*flop* e  $H_A = 2K/3M$  é o campo efetivo de anisotropia.

Neste trabalho, a análise será restrita ao caso em que o campo magnético é aplicado paralelamente à direção [001], isto é,  $\mathbf{H} = H\hat{z}$ , o que corresponde a  $\theta_H = 0$ . Portanto, a equação (3.15) tem as soluções

$$\theta = \begin{cases} \frac{\pi}{4} + \frac{1}{2} \arcsin \left( \frac{2H^2 + H_{SF}^2}{3H_{SF}^2} \right), & \text{para } H < H_{SF}, \\ \frac{\pi}{2}, & \text{para } H \geq H_{SF}. \end{cases} \quad (3.16)$$

O material está na fase antiferromagnética (AF) se  $H < H_{SF}$ , e está na fase spin-*flop* (SF) se  $H \geq H_{SF}$ . Na ausência de campo magnético externo, obtém-se  $\theta = \arccos(1/\sqrt{3}) \approx 54.7^\circ$ , o que corresponde à direção [111]. A figura 20 mostra a dependência do ângulo da direção de equilíbrio da magnetização em função do campo magnético aplicado na direção [001], para os valores de  $H_E = 8,16 \times 10^5$  Oe e  $H_A = 4,59$  Oe, de modo que o campo de spin-*flop* é  $H_{SF} \approx 2,37$  kOe.

Figura 20 – Ângulo  $\theta$  da direção de equilíbrio da magnetização em função do campo magnético  $H$  aplicado na direção [001].



Fonte: o autor, 2025.

### 3.2 RESSONÂNCIA ANTIFERROMAGNÉTICA: MODELO DE DUAS SUB-REDES

No caso da ressonância antiferromagnética (AFMR), o modelo de duas sub-redes eletrônicas é suficiente para descrever a dinâmica da magnetização do sistema, visto que as contribuições das sub-redes nucleares levam a correções desprezíveis [25, 59]. Para as magnetizações  $\mathbf{M}_i$  (com  $i = 1, 2$ ), tem-se a equação de Landau-Lifshitz

$$\frac{d\mathbf{M}_i}{dt} = -\gamma\mathbf{M}_i \times \mathbf{H}_i^{\text{eff}}, \quad (3.17)$$

na qual  $\mathbf{H}_i^{\text{eff}}$  é o campo magnético efetivo. Da equação (3.3), a contribuição da energia de troca<sup>2</sup> para o campo efetivo para a sub-rede  $i$  é

$$\mathbf{H}_i^{\text{exc}} = -\frac{\partial E_{\text{exc}}}{\partial \mathbf{M}_i} = W_{12}\mathbf{M}_j, \quad (3.18)$$

com  $j \neq i$ . Similarmente, com o uso da equação (3.6), a contribuição da interação hiperfina é dada por

$$\mathbf{H}_i^{\text{hf}} = -\frac{\partial E_{\text{hf}}}{\partial \mathbf{M}_i} = \alpha\mathbf{N}_i. \quad (3.19)$$

Da equação (3.4), obtém-se a contribuição do termo de anisotropia para o campo magnético efetivo como

$$\mathbf{H}_i^{\text{an}} = \frac{2K}{M^4} \left[ M_{ix}(M_{iy}^2 + M_{iz}^2)\hat{x} + M_{iy}(M_{iz}^2 + M_{ix}^2)\hat{y} + M_{iz}(M_{ix}^2 + M_{iy}^2)\hat{z} \right]. \quad (3.20)$$

<sup>2</sup>Aqui,  $\frac{\partial}{\partial \mathbf{M}_i}$  é o operador gradiente relativo às componentes do vetor magnetização, de modo que em coordenadas cartesianas tem-se

$$\frac{\partial}{\partial \mathbf{M}_i} = \hat{x} \frac{\partial}{\partial M_{ix}} + \hat{y} \frac{\partial}{\partial M_{iy}} + \hat{z} \frac{\partial}{\partial M_{iz}}.$$

Desse modo, o campo magnético efetivo total é dado por

$$\mathbf{H}_i^{\text{eff}} = \mathbf{H} + \mathbf{H}_i^{\text{exc}} + \mathbf{H}_i^{\text{hf}} + \mathbf{H}_i^{\text{an}}, \quad (3.21)$$

tal que a equação (3.17) torna-se

$$\frac{d\mathbf{M}_i}{dt} = -\gamma \mathbf{M}_i \times (\mathbf{H} + \mathbf{H}_i^{\text{exc}} + \mathbf{H}_i^{\text{hf}} + \mathbf{H}_i^{\text{an}}). \quad (3.22)$$

A equação (3.22) descreve a dinâmica de magnetização da sub-rede  $i$ , de modo que têm-se seis equações diferenciais usadas para obter  $M_{1x}$ ,  $M_{1y}$ ,  $M_{1z}$ ,  $M_{2x}$ ,  $M_{2y}$  e  $M_{2z}$ .

Na presença de um campo alternado  $\mathbf{h}_0 e^{-i\omega t}$  perpendicular ao campo magnético estático  $\mathbf{H}$ , de modo que  $\mathbf{h}_0 \ll \mathbf{H}$ , faz-se na equação de Landau-Lifshitz a substituição  $\mathbf{H} \rightarrow \mathbf{H} + \mathbf{h}_0 e^{-i\omega t}$ . Devido a isso, a magnetização sofre uma pequena perturbação tal que  $\mathbf{M}_i \rightarrow \mathbf{M}_i + \delta\mathbf{M}_i e^{-i\omega t}$ , com  $\delta\mathbf{M}_i$  perpendicular a  $\mathbf{M}_i$ . Assim, têm-se em primeira ordem

$$\mathbf{M}_i \times \mathbf{H} \rightarrow \mathbf{M}_i \times \mathbf{H} + (\delta\mathbf{M}_i \times \mathbf{H}) e^{-i\omega t}, \quad (3.23a)$$

$$\mathbf{M}_i \times \mathbf{H}_i^{\text{exc}} \rightarrow W_{12} \mathbf{M}_i \times \mathbf{M}_j + W_{12} (\mathbf{M}_i \times \delta\mathbf{M}_j + \delta\mathbf{M}_i \times \mathbf{M}_j) e^{-i\omega t}, \quad (3.23b)$$

$$\mathbf{M}_i \times \mathbf{H}_i^{\text{hf}} \rightarrow \alpha \mathbf{M}_i \times \mathbf{N}_i + \alpha (\delta\mathbf{M}_i \times \mathbf{N}_i) e^{-i\omega t}. \quad (3.23c)$$

Entretanto, as componentes cartesianas de  $\mathbf{M}_i \times \mathbf{H}_i^{\text{an}}$  devem ser tratadas separadamente.

As componentes dos termos não-perturbados de  $\mathbf{M}_i \times \mathbf{H}_i^{\text{an}}$  são

$$(\mathbf{M}_i \times \mathbf{H}_i^{\text{an}})_x = \frac{2K}{M^4} M_{iy} M_{iz} (M_{iy}^2 - M_{iz}^2), \quad (3.24a)$$

$$(\mathbf{M}_i \times \mathbf{H}_i^{\text{an}})_y = \frac{2K}{M^4} M_{iz} M_{ix} (M_{iz}^2 - M_{ix}^2), \quad (3.24b)$$

$$(\mathbf{M}_i \times \mathbf{H}_i^{\text{an}})_z = \frac{2K}{M^4} M_{ix} M_{iy} (M_{ix}^2 - M_{iy}^2). \quad (3.24c)$$

Logo, fazendo as mudanças  $M_{ix} \rightarrow M_{ix} + \delta M_{ix} e^{-i\omega t}$ ,  $M_{iy} \rightarrow M_{iy} + \delta M_{iy} e^{-i\omega t}$  e  $M_{iz} \rightarrow M_{iz} + \delta M_{iz} e^{-i\omega t}$  nas relações (3.24), obtém-se aproximadamente

$$\begin{aligned} (\mathbf{M}_i \times \mathbf{H}_i^{\text{an}})_x \rightarrow (\mathbf{M}_i \times \mathbf{H}_i^{\text{an}})_x + \frac{2K}{M^4} \left[ (3M_{iy}^2 - M_{iz}^2) M_{iz} \delta M_{iy} \right. \\ \left. - (3M_{iz}^2 - M_{iy}^2) M_{iy} \delta M_{iz} \right] e^{-i\omega t}, \end{aligned} \quad (3.25a)$$

$$\begin{aligned} (\mathbf{M}_i \times \mathbf{H}_i^{\text{an}})_y \rightarrow (\mathbf{M}_i \times \mathbf{H}_i^{\text{an}})_y + \frac{2K}{M^4} \left[ (3M_{iz}^2 - M_{ix}^2) M_{ix} \delta M_{iz} \right. \\ \left. - (3M_{ix}^2 - M_{iz}^2) M_{iz} \delta M_{ix} \right] e^{-i\omega t}, \end{aligned} \quad (3.25b)$$

$$\begin{aligned} (\mathbf{M}_i \times \mathbf{H}_i^{\text{an}})_z \rightarrow (\mathbf{M}_i \times \mathbf{H}_i^{\text{an}})_z + \frac{2K}{M^4} \left[ (3M_{ix}^2 - M_{iy}^2) M_{iy} \delta M_{ix} \right. \\ \left. - (3M_{iy}^2 - M_{ix}^2) M_{ix} \delta M_{iy} \right] e^{-i\omega t}. \end{aligned} \quad (3.25c)$$

Compactamente, tem-se

$$\mathbf{M}_i \times \mathbf{H}_i^{\text{an}} \rightarrow \mathbf{M}_i \times \mathbf{H}_i^{\text{an}} + \delta \mathbf{T}_i e^{-i\omega t}, \quad (3.26)$$

com  $\delta \mathbf{T}_i$  as contribuições dos termos oriundos da perturbação por radiofrequência na expressão (3.25).

Com a utilização da equação (3.22), é possível obter a condição de equilíbrio do sistema na forma

$$-\frac{1}{\gamma} \frac{d\mathbf{M}_i}{dt} = \mathbf{M}_i \times \mathbf{H} + W_{12} \mathbf{M}_i \times \mathbf{M}_j + \alpha \mathbf{M}_i \times \mathbf{N}_i + \mathbf{M}_i \times \mathbf{H}_i^{\text{an}} = 0, \quad (3.27)$$

que equivale ao cálculo para o equilíbrio feito na seção 3.1.3, no qual se minimizou a energia livre total do sistema. Do mesmo modo, a equação para os termos dinâmicos pode ser expressa como

$$i \frac{\omega}{\gamma} \delta \mathbf{M}_i = \delta \mathbf{M}_i \times (\mathbf{H} + \alpha \mathbf{N}_i + W_{12} \mathbf{M}_j) + W_{12} \mathbf{M}_i \times \delta \mathbf{M}_j + \delta \mathbf{T}_i. \quad (3.28)$$

Após a análise das componentes  $x$ ,  $y$  e  $z$  para os casos  $i = 1, 2$  com  $j \neq i$ , a equação (3.28) fornece uma equação matricial do tipo

$$i \frac{\omega}{\gamma} \delta M = A \delta M + B \delta M, \quad (3.29)$$

com a matriz coluna contendo as componentes perturbadas da magnetização

$$\delta M = \begin{pmatrix} \delta M_{1x} \\ \delta M_{1y} \\ \delta M_{1z} \\ \delta M_{2x} \\ \delta M_{2y} \\ \delta M_{2z} \end{pmatrix}. \quad (3.30)$$

A matriz  $A$  envolve somente as contribuições oriundas da energia de anisotropia, de tal forma que pode-se escrevê-la como

$$A = \frac{2K}{M^4} \begin{pmatrix} 0 & A_{1yz} & -A_{1zy} & 0 & 0 & 0 \\ -A_{1xz} & 0 & A_{1zx} & 0 & 0 & 0 \\ A_{1xy} & -A_{1yx} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & A_{2yz} & -A_{2zy} \\ 0 & 0 & 0 & -A_{2xz} & 0 & A_{2zx} \\ 0 & 0 & 0 & A_{2xy} & -A_{2yx} & 0 \end{pmatrix},$$

com  $A_{i\mu\nu} = (3M_{i\mu}^2 - M_{i\nu}^2)M_{i\nu}$ , para  $i = 1, 2$  e  $\mu, \nu = x, y, z$ . Por sua vez, a matriz  $B$  possui as contribuições das energias de Zeeman, de troca e de interação hiperfina, de modo que encontra-se

$$B = \begin{pmatrix} 0 & H_{12z} & -H_{12y} & 0 & -W_{12}M_{1z} & W_{12}M_{1y} \\ -H_{12z} & 0 & H_{12x} & W_{12}M_{1z} & 0 & -W_{12}M_{1x} \\ H_{12y} & -H_{12x} & 0 & -W_{12}M_{1y} & W_{12}M_{1x} & 0 \\ 0 & -W_{12}M_{2z} & W_{12}M_{2y} & 0 & H_{21z} & -H_{21y} \\ W_{12}M_{2z} & 0 & -W_{12}M_{2x} & -H_{21z} & 0 & H_{21x} \\ -W_{12}M_{2y} & W_{12}M_{2x} & 0 & H_{21y} & -H_{21x} & 0 \end{pmatrix},$$

com  $\mathbf{H}_{ij} = \mathbf{H} + \alpha\mathbf{N}_i + W_{12}\mathbf{M}_j$ , na qual  $j \neq i$ .

Com o uso das propriedades de matrizes em bloco, a equação (3.29) pode ser escrita na forma

$$i \frac{\omega}{\gamma} \begin{pmatrix} \boldsymbol{\alpha}_1 \\ \boldsymbol{\alpha}_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A_{11} + B_{11} & C_{12} \\ C_{21} & A_{22} + B_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \boldsymbol{\alpha}_1 \\ \boldsymbol{\alpha}_2 \end{pmatrix}, \quad (3.31)$$

com a matriz coluna

$$\boldsymbol{\alpha}_i = \begin{pmatrix} \delta M_{ix} \\ \delta M_{iy} \\ \delta M_{iz} \end{pmatrix}. \quad (3.32)$$

As matrizes  $A$  e  $B$  são “separadas” em matrizes  $3 \times 3$  tais que

$$\begin{aligned} A_{11} &= \frac{2K}{M^4} \begin{pmatrix} 0 & A_{1yz} & -A_{1zy} \\ -A_{1xz} & 0 & A_{1zx} \\ A_{1xy} & -A_{1yx} & 0 \end{pmatrix}, \\ A_{22} &= \frac{2K}{M^4} \begin{pmatrix} 0 & A_{2yz} & -A_{2zy} \\ -A_{2xz} & 0 & A_{2zx} \\ A_{2xy} & -A_{2yx} & 0 \end{pmatrix}, \\ B_{11} &= \begin{pmatrix} 0 & H_{12z} & -H_{12y} \\ -H_{12z} & 0 & H_{12x} \\ H_{12y} & -H_{12x} & 0 \end{pmatrix}, \\ B_{22} &= \begin{pmatrix} 0 & H_{21z} & -H_{21y} \\ -H_{21z} & 0 & H_{21x} \\ H_{21y} & -H_{21x} & 0 \end{pmatrix}, \\ C_{12} &= \begin{pmatrix} 0 & -W_{12}M_{1z} & W_{12}M_{1y} \\ W_{12}M_{1z} & 0 & -W_{12}M_{1x} \\ -W_{12}M_{1y} & W_{12}M_{1x} & 0 \end{pmatrix}, \end{aligned}$$

$$C_{21} = \begin{pmatrix} 0 & -W_{12}M_{2z} & W_{12}M_{2y} \\ W_{12}M_{2z} & 0 & -W_{12}M_{2x} \\ -W_{12}M_{2y} & W_{12}M_{2x} & 0 \end{pmatrix}.$$

Para simplificar o tratamento da equação matricial (3.31), dois novos sistemas de coordenadas para as magnetizações são introduzidos [24, 25]. Considerando a primeira sub-rede, aplica-se uma rotação de  $\varphi = \pi/4$ , que leva até o plano (110), no qual estão contidas as magnetizações. Para  $\mathbf{M}_1$ , faz-se no plano (110) uma rotação de  $\theta - \tau$  a partir do eixo  $z$ , de modo que se têm as novas coordenadas  $(x_1, y_1, z_1)$ , com  $z_1$  coincidindo com a direção de  $\mathbf{M}_1$ . Denotando as componentes da magnetização no novo sistema de coordenadas por  $\delta m_{1x}$ ,  $\delta m_{1y}$  e  $\delta m_{1z}$ , tem-se

$$\mathbf{a}_1 = \begin{pmatrix} \delta m_{1x} \\ \delta m_{1y} \\ \delta m_{1z} \end{pmatrix}, \quad (3.33)$$

de tal maneira que  $\mathbf{a}_1$  se relaciona com  $\boldsymbol{\alpha}_1$  por

$$\mathbf{a}_1 = R_1 \boldsymbol{\alpha}_1, \quad (3.34)$$

com a matriz de rotação para a primeira sub-rede

$$\begin{aligned} R_1 &= \begin{pmatrix} \cos(\theta - \tau) & 0 & -\sin(\theta - \tau) \\ 0 & 1 & 0 \\ \sin(\theta - \tau) & 0 & \cos(\theta - \tau) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{2} & 0 \\ -1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{2} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} \cos(\theta - \tau)/\sqrt{2} & \cos(\theta - \tau)/\sqrt{2} & -\sin(\theta - \tau) \\ -1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{2} & 0 \\ \sin(\theta - \tau)/\sqrt{2} & \sin(\theta - \tau)/\sqrt{2} & \cos(\theta - \tau) \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (3.35)$$

Para a segunda sub-rede, faz-se uma rotação até o plano (110) e uma rotação de  $\theta + \tau$  até a direção de  $-\mathbf{M}_2$ , de modo que se tem o novo sistema de coordenadas  $(x_2, y_2, z_2)$  e a matriz de rotação

$$R_2 = \begin{pmatrix} \cos(\theta + \tau)/\sqrt{2} & \cos(\theta + \tau)/\sqrt{2} & -\sin(\theta + \tau) \\ -1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{2} & 0 \\ \sin(\theta + \tau)/\sqrt{2} & \sin(\theta + \tau)/\sqrt{2} & \cos(\theta + \tau) \end{pmatrix}, \quad (3.36)$$

de tal forma que  $\mathbf{a}_2$  e  $\boldsymbol{\alpha}_2$  são relacionados por

$$\mathbf{a}_2 = R_2 \boldsymbol{\alpha}_2, \quad (3.37)$$

na qual

$$\mathbf{a}_2 = \begin{pmatrix} \delta m_{2x} \\ \delta m_{2y} \\ \delta m_{2z} \end{pmatrix}. \quad (3.38)$$

Com as equações (3.34) e (3.37), obtém-se

$$\begin{pmatrix} \mathbf{a}_1 \\ \mathbf{a}_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} R_1 & 0 \\ 0 & R_2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \boldsymbol{\alpha}_1 \\ \boldsymbol{\alpha}_2 \end{pmatrix}, \quad (3.39)$$

de modo que a equação (3.31) torna-se finalmente

$$i \frac{\omega}{\gamma} \begin{pmatrix} \mathbf{a}_1 \\ \mathbf{a}_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} R_1(A_{11} + B_{11})R_1^{-1} & R_1C_{12}R_2^{-1} \\ R_2C_{21}R_1^{-1} & R_2(A_{22} + B_{22})R_2^{-1} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathbf{a}_1 \\ \mathbf{a}_2 \end{pmatrix}. \quad (3.40)$$

Nos novos sistemas de coordenadas previamente descritos, obtêm-se as componentes estáticas da magnetização da primeira sub-rede como  $M_{1x} = M \sin(\theta - \tau)/\sqrt{2}$ ,  $M_{1y} = M \sin(\theta - \tau)/\sqrt{2}$ ,  $M_{1z} = M \cos(\theta - \tau)$ , e as da segunda sub-rede como  $M_{2x} = -M \sin(\theta + \tau)/\sqrt{2}$ ,  $M_{2y} = -M \sin(\theta + \tau)/\sqrt{2}$ ,  $M_{2z} = -M \cos(\theta + \tau)$ . As componentes de  $\mathbf{N}_1$  e  $\mathbf{N}_2$  são obtidas de forma completamente análoga. Além disso, as componentes do campo magnético externo são dadas por  $H_x = H \sin(\theta_H)/\sqrt{2}$ ,  $H_y = H \sin(\theta_H)/\sqrt{2}$ ,  $H_z = H \cos(\theta_H)$ .

Todavia, as componentes  $\delta m_{iz}$  são nulas, visto que no novo sistema de coordenadas elas correspondem à projeção de  $\delta \mathbf{m}_i$  no respectivo eixo  $z_i$ , o qual coincide com a direção da componente estática  $\mathbf{M}_i$ . Isso implica que a matriz quadrada em (3.40) pode ser efetivamente reduzida de  $6 \times 6$  para  $4 \times 4$ . Além disso, como tem-se  $H_A \ll H_E$ , o ângulo  $\tau$  pode ser desprezado nos termos oriundos da energia de anisotropia, de modo que obtém-se então

$$i \frac{\omega}{\gamma} \begin{pmatrix} \delta m_{1x} \\ \delta m_{1y} \\ \delta m_{2x} \\ \delta m_{2y} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & a_{12} + b_{12}^1 & 0 & -W_{12}M \\ -a_{21} - b_{12}^1 & 0 & W_{12}M \cos(2\tau) & 0 \\ 0 & W_{12}M & 0 & -a_{12} + b_{12}^2 \\ -W_{12}M \cos(2\tau) & 0 & a_{21} - b_{12}^2 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \delta m_{1x} \\ \delta m_{1y} \\ \delta m_{2x} \\ \delta m_{2y} \end{pmatrix}, \quad (3.41)$$

com os parâmetros

$$a_{12} = \frac{2K}{M} \left[ \frac{7}{2} \sin^2(\theta) - \frac{3}{2} \sin^4(\theta) - 1 \right], \quad (3.42a)$$

$$a_{21} = \frac{2K}{M} \left[ \frac{13}{2} \sin^2(\theta) - 6 \sin^4(\theta) - 1 \right], \quad (3.42b)$$

$$b_{12}^1 = H \cos(\theta - \theta_H - \tau) + \alpha N - W_{12}M \cos(2\tau), \quad (3.42c)$$

$$b_{12}^2 = H \cos(\theta - \theta_H + \tau) - \alpha N + W_{12}M \cos(2\tau). \quad (3.42d)$$

Dessa forma, os autovalores de (3.41) são obtidos através de

$$\det \begin{pmatrix} T & U \\ -U & V \end{pmatrix} = 0, \quad (3.43)$$

na qual se têm as matrizes  $2 \times 2$

$$T = \begin{pmatrix} -i\omega/\gamma & a_{12} + b_{12}^1 \\ -a_{21} - b_{12}^1 & -i\omega/\gamma \end{pmatrix}, \quad (3.44a)$$

$$U = \begin{pmatrix} 0 & -W_{12}M \\ W_{12}M \cos(2\tau) & 0 \end{pmatrix}, \quad (3.44b)$$

$$V = \begin{pmatrix} -i\omega/\gamma & -a_{12} + b_{12}^2 \\ a_{21} - b_{12}^2 & -i\omega/\gamma \end{pmatrix}. \quad (3.44c)$$

Utilizando as propriedades de matrizes em bloco, pode-se mostrar que a equação (3.43) é equivalente ao determinante

$$\det \begin{pmatrix} I & U^{-1}T \\ -U^{-1}V & I \end{pmatrix} = 0, \quad (3.45)$$

ou ainda

$$\det(I + U^{-1}TU^{-1}V) = 0, \quad (3.46)$$

com  $I$  a matriz identidade  $2 \times 2$ .

Definindo o campo magnético efetivo devido à magnetização nuclear por  $H_N = \alpha N$ , e considerando  $H_A$  e  $H_N$  muito menores que  $H_E$ , obtém-se a partir de (3.46) a equação biquadrática

$$(\omega^2 - \omega_1^2)(\omega^2 - \omega_2^2) - 4\gamma^2 H^2 \cos^2(\theta - \theta_H) \omega^2 = 0, \quad (3.47)$$

na qual

$$\omega_1^2 = 2\gamma^2 H_E(H_N + a_{21}) + \gamma^2 H^2 [2 \sin^2(\theta - \theta_H) - 1], \quad (3.48a)$$

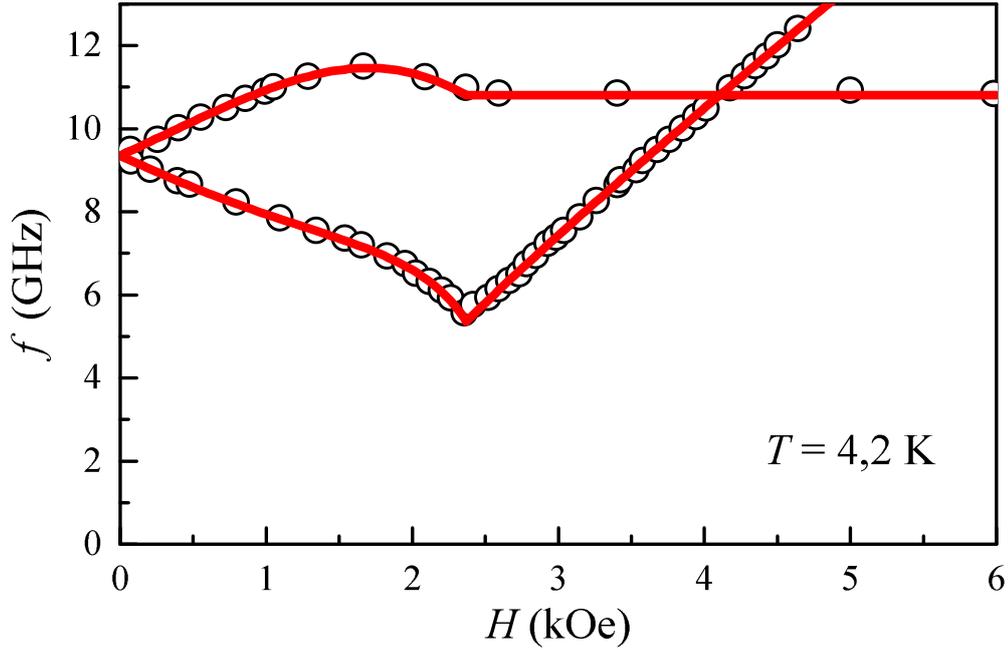
$$\omega_2^2 = 2\gamma^2 H_E(H_N + a_{12}) + \gamma^2 H^2 [\sin^2(\theta - \theta_H) - 1]. \quad (3.48b)$$

A equação (3.47) permite obter as frequências angulares  $\omega$  em função do campo magnético aplicado  $H$  no caso de AFMR em RbMnF<sub>3</sub>, tendo sido deduzida por Cole e Ince nas referências [24, 25]. É importante ressaltar que no caso em que o campo magnético  $H$  é aplicado ao longo da direção [001], de modo que  $\theta_H = 0$ , obtém-se que uma das soluções da equação (3.47) é independente de  $H$  na fase *spin-flop* ( $\theta = \pi/2$ ).

A figura 21 compara os resultados semiclássicos da equação (3.47) com os experimentos de AFMR relatados por Ince na referência [25] para o campo magnético externo aplicado ao longo da direção [001] do antiferromagneto RbMnF<sub>3</sub> e com a temperatura man-

tida fixa em 4,2 K. Como pode-se observar, a teoria semiclássica descrita pelo formalismo de Landau-Lifshitz apresenta uma excelente concordância com os dados experimentais. Para o ajuste numérico, utilizaram-se os parâmetros  $H_E = 8,16 \times 10^5$  Oe,  $H_A = 4,59$  Oe, e  $H_N = (9,43 \text{ K}/T)$  Oe, com  $T$  dado em K. As frequências de AFMR desse material serão revisitadas no capítulo 5 com o tratamento quântico de ondas de spin.

Figura 21 – Comparação entre os cálculos semiclássicos e os experimentos relatados em [25] para as frequências de AFMR do RbMnF<sub>3</sub> com o campo magnético na direção [001] em 4,2 K.



Fonte: o autor, 2025.

### 3.3 RESSONÂNCIA MAGNÉTICA NUCLEAR: MODELO DE QUATRO SUB-REDES

Para o estudo da ressonância magnética nuclear (NMR), é necessário considerar que as magnetizações nucleares são também perturbadas, de modo que  $\mathbf{N}_i \rightarrow \mathbf{N}_i + \delta\mathbf{N}_i e^{-i\omega t}$ . Essa contribuição é perfeitamente desprezível para o caso da AFMR, conforme visto na seção anterior. Assim, o modelo que descreve a NMR no antiferromagneto RbMnF<sub>3</sub> é composto por quatro sub-redes, duas eletrônicas e duas nucleares. Tem-se então a equação de Landau-Lifshitz para a magnetização nuclear

$$\frac{d\mathbf{N}_i}{dt} = \gamma_N \mathbf{N}_i \times \frac{\partial E}{\partial \mathbf{N}_i}, \quad (3.49)$$

com  $\gamma_N$  a razão giromagnética nuclear, de tal forma que se obtém para as componentes dinâmicas

$$i \frac{\omega}{\gamma_N} \delta\mathbf{N}_i = \delta\mathbf{N}_i \times (\mathbf{H} + \alpha\mathbf{M}_i) + \alpha\mathbf{N}_i \times \delta\mathbf{M}_i. \quad (3.50)$$

Para as magnetizações eletrônicas, segue que

$$i\frac{\omega}{\gamma} \delta\mathbf{M}_i = \delta\mathbf{M}_i \times (\mathbf{H} + \alpha\mathbf{N}_i + W_{12}\mathbf{M}_j) + \mathbf{M}_i \times (\alpha \delta\mathbf{N}_i + W_{12} \delta\mathbf{M}_j) + \delta\mathbf{T}_i, \quad (3.51)$$

a qual difere da equação (3.28) pelo termo oriundo da perturbação da magnetização nuclear,  $\delta\mathbf{N}_i$ .

Por conseguinte, em analogia com o procedimento realizado na seção 3.2, define-se o vetor coluna

$$\boldsymbol{\alpha}_i = \begin{pmatrix} \delta M_{ix} \\ \delta M_{iy} \\ \delta M_{iz} \\ \delta N_{ix} \\ \delta N_{iy} \\ \delta N_{iz} \end{pmatrix}, \quad (3.52)$$

para  $i = 1,2$ , de modo que as equações (3.50) e (3.51) resultam novamente em uma equação matricial que pode ser expressa na forma

$$i\omega \begin{pmatrix} \boldsymbol{\alpha}_1 \\ \boldsymbol{\alpha}_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A_{11} + B_{11} & C_{12} \\ C_{21} & A_{22} + B_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \boldsymbol{\alpha}_1 \\ \boldsymbol{\alpha}_2 \end{pmatrix}. \quad (3.53)$$

Entretanto, em vez das matrizes  $3 \times 3$  do modelo de duas sub-redes, o modelo de quatro sub-redes leva às matrizes  $6 \times 6$

$$A_{11} = \frac{2K\gamma}{M^4} \begin{pmatrix} 0 & A_{1yz} & -A_{1zy} & 0 & 0 & 0 \\ -A_{1xz} & 0 & A_{1zx} & 0 & 0 & 0 \\ A_{1xy} & -A_{1yx} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad (3.54)$$

$$B_{11} = \begin{pmatrix} 0 & \gamma H_{12z} & -\gamma H_{12y} & 0 & -\gamma\alpha M_{1z} & \gamma\alpha M_{1y} \\ -\gamma H_{12z} & 0 & \gamma H_{12x} & \gamma\alpha M_{1z} & 0 & -\gamma\alpha M_{1x} \\ \gamma H_{12y} & -\gamma H_{12x} & 0 & -\gamma\alpha M_{1y} & \gamma\alpha M_{1x} & 0 \\ 0 & -\gamma_N\alpha N_{1z} & \gamma_N\alpha N_{1y} & 0 & \gamma_N(H_z + \alpha M_{1z}) & -\gamma_N(H_y + \alpha M_{1y}) \\ \gamma_N\alpha N_{1z} & 0 & -\gamma_N\alpha N_{1x} & -\gamma_N(H_z + \alpha M_{1z}) & 0 & \gamma_N(H_x + \alpha M_{1x}) \\ -\gamma_N\alpha N_{1y} & \gamma_N\alpha N_{1x} & 0 & \gamma_N(H_y + \alpha M_{1y}) & -\gamma_N(H_x + \alpha M_{1x}) & 0 \end{pmatrix}, \quad (3.55)$$

$$C_{12} = \gamma \begin{pmatrix} 0 & -W_{12}M_{1z} & W_{12}M_{1y} & 0 & 0 & 0 \\ W_{12}M_{1z} & 0 & -W_{12}M_{1x} & 0 & 0 & 0 \\ -W_{12}M_{1y} & W_{12}M_{1x} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (3.56)$$

Como se pode observar, as matrizes  $A_{22}$ ,  $B_{22}$  e  $C_{21}$  são obtidas ao simplesmente permutar os subscritos  $i = 1,2$  nas respectivas matrizes  $A_{11}$ ,  $B_{11}$  e  $C_{12}$ .

O problema de obtenção dos autovalores  $\omega$  da equação (3.53) pode ser consideravelmente simplificado, como no modelo de duas sub-redes, ao definir convenientemente dois novos sistemas de coordenadas tais que

$$\mathbf{a}_i = R_i \boldsymbol{\alpha}_i, \quad (3.57)$$

para  $i = 1,2$ , com o vetor que contém as componentes das magnetizações eletrônicas e nucleares no novo sistema de coordenadas dado por

$$\mathbf{a}_i = \begin{pmatrix} \delta m_{ix} \\ \delta m_{iy} \\ \delta m_{iz} \\ \delta n_{ix} \\ \delta n_{iy} \\ \delta n_{iz} \end{pmatrix}. \quad (3.58)$$

Assim, têm-se a matriz de rotação

$$R_1 = \begin{pmatrix} \frac{\cos(\theta - \tau)}{\sqrt{2}} & \frac{\cos(\theta - \tau)}{\sqrt{2}} & -\sin(\theta - \tau) & 0 & 0 & 0 \\ -\frac{1}{\sqrt{2}} & \frac{1}{\sqrt{2}} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \frac{\sin(\theta - \tau)}{\sqrt{2}} & \frac{\sin(\theta - \tau)}{\sqrt{2}} & \cos(\theta - \tau) & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{\cos(\theta - \tau)}{\sqrt{2}} & \frac{\cos(\theta - \tau)}{\sqrt{2}} & -\sin(\theta - \tau) \\ 0 & 0 & 0 & -\frac{1}{\sqrt{2}} & \frac{1}{\sqrt{2}} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{\sin(\theta - \tau)}{\sqrt{2}} & \frac{\sin(\theta - \tau)}{\sqrt{2}} & \cos(\theta - \tau) \end{pmatrix}, \quad (3.59)$$

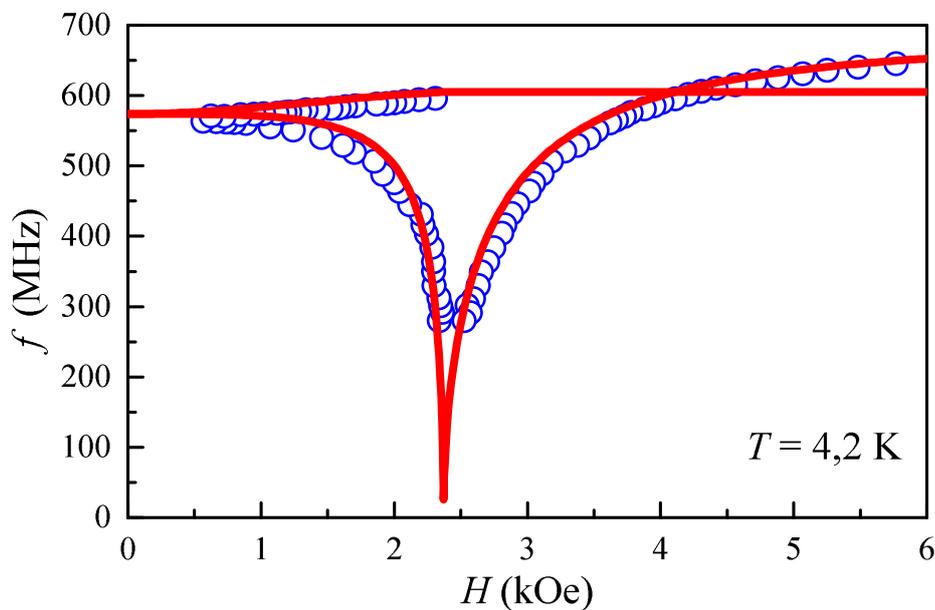
da qual se encontra  $R_2$  ao fazer a substituição  $\tau \rightarrow -\tau$ . Com isso, obtém-se de (3.53) mais uma vez a equação

$$i\omega \begin{pmatrix} \mathbf{a}_1 \\ \mathbf{a}_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} R_1(A_{11} + B_{11})R_1^{-1} & R_1 C_{12} R_2^{-1} \\ R_2 C_{21} R_1^{-1} & R_2(A_{22} + B_{22})R_2^{-1} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathbf{a}_1 \\ \mathbf{a}_2 \end{pmatrix}. \quad (3.60)$$

Como tem-se que  $\delta m_{iz} = \delta n_{iz} = 0$  para  $i = 1,2$ , o problema diagonalização é reduzido de uma matriz  $12 \times 12$  para uma matriz  $8 \times 8$ . No entanto, ao contrário do problema de duas sub-redes, a obtenção de uma expressão analítica para as frequências não é viável, de modo que o determinante precisa ser resolvido numericamente.

A figura 22 mostra os cálculos numéricos obtidos através das soluções da equação secular oriunda da equação matricial (3.60) (utilizando o *software* Maple) em comparação com os dados experimentais relatados por Ince na referência [25] para as frequências de NMR do RbMnF<sub>3</sub> com o campo magnético aplicado na direção [001] e com a temperatura de 4,2 K. Novamente, utilizaram-se os valores numéricos  $H_E = 8,16 \times 10^5$  Oe,  $H_A = 4,59$  Oe,  $H_{NN} = \alpha M = 6,5 \times 10^5$  Oe e  $H_N = \alpha N = (9,43 \text{ K}/T)$  Oe, bem como a razão giromagnética nuclear do <sup>55</sup>Mn como  $\gamma_N = 2\pi \times 1,05$  MHz/kOe [66]. Como pode-se observar, o modelo de quatro sub-redes apresenta uma ótima concordância com os resultados experimentais. É importante ressaltar a equação (3.60) também fornece as soluções para as frequências de AFMR, uma vez que tal modelo generaliza o de duas sub-redes.

Figura 22 – Comparação entre os cálculos semiclássicos e os experimentos relatados em [25] para as frequências de NMR do RbMnF<sub>3</sub> com o campo magnético na direção [001] em 4,2 K.



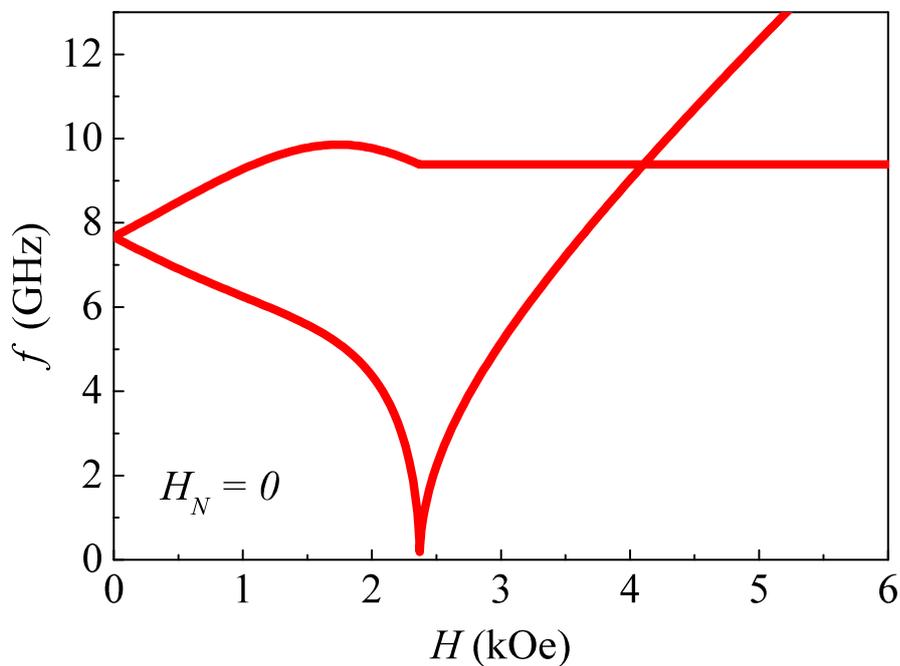
Fonte: o autor, 2025.

Em suma, por possuir uma rede cristalina cúbica simples, o antiferromagneto RbMnF<sub>3</sub> apresenta características interessantes tanto teórica quanto experimentalmente, que possibilitam o estudo de AFMR e NMR em valores de frequência e campo magnético ordens de grandeza menores do que outros tipos de antiferromagnetos. É importante ressaltar que devido ao seu baixo campo efetivo de anisotropia  $H_A$ , o campo de interação hiperfina  $H_N$  dos íons de Mn<sup>2+</sup> no RbMnF<sub>3</sub> não pode ser negligenciado nos cálculos das frequências de AFMR. Em antiferromagnetos como o MnF<sub>2</sub>, as frequências de AFMR tendem a zero na fase *spin-flop*, enquanto no RbMnF<sub>3</sub> elas são deslocadas para valores não-nulos devido à interação hiperfina. De fato, como  $H_N$  varia com o inverso de  $T$  [25,60], as frequências dos modos de AFMR são fortemente dependentes da temperatura.

Tais resultados mostram o forte efeito da interação entre os spins eletrônicos e nucleares nesse antiferromagneto. Para ilustrar como a interação hiperfina apresenta

um importante papel nas frequências de ressonância, a figura 23 mostra as frequências calculadas supondo  $H_N = 0$ , ou seja, sem acoplamento dinâmico entre as excitações eletrônicas e nucleares. Nesse caso, na fase antiferromagnética, a frequência do modo eletrônico inferior diminui com o aumento do campo magnético e chega a zero em  $H = H_{SF}$ , de forma similar aos antiferromagnetos uniaxiais [21]. Em seguida, na fase spin-*flop*, para  $H \geq H_{SF}$ , a frequência aumenta com o aumento do campo, enquanto a frequência do modo superior não varia com o campo. Por outro lado, sem a interação hiperfina, as frequências dos dois modos nucleares seriam simplesmente dadas por  $\omega = \gamma_N(H_{NN} \pm H)$ , de modo que elas variariam apenas ligeiramente com o campo.

Figura 23 – Frequências de AFMR do RbMnF<sub>3</sub> caso a interação hiperfina fosse desprezível ( $H_N = 0$ ).



Fonte: o autor, 2025.

A figura 21 mostra a dependência das frequências em função do campo magnético, calculadas considerando o acoplamento real entre as magnetizações eletrônica e nuclear, de modo que dois efeitos importantes ocorrem. A frequência do modo eletrônico inferior, próxima à transição spin-*flop*, é puxada para cima pela interação com a excitação nuclear, de modo que o valor mínimo é bastante grande, acima de 4 GHz. Por outro lado, a variação das frequências dos modos nucleares muda devido à interação hiperfina, de modo que na proximidade da transição spin-*flop* a frequência do modo nuclear inferior é puxada para baixo pela interação dinâmica com o modo eletrônico inferior.

No capítulo 4, serão relatados os experimentos sobre o efeito de bombeamento de spin no antiferromagneto RbMnF<sub>3</sub>, conjuntamente com as curvas de ressonância magnética nuclear desse material tanto na fase antiferromagnética quanto na fase spin-*flop*. Portanto, os cálculos semiclássicos apresentados neste capítulo são essenciais para a compreensão do

comportamento das frequências de ressonância em função do campo magnético aplicado, o que auxilia no delicado processo de alinhamento da direção [001] da amostra com  $H$ .

## 4 BOMBEAMENTO DE SPIN NUCLEAR-ELETRÔNICO NO ANTIFERROMAGNETO $\text{RbMnF}_3$

Neste capítulo, será relatada a observação de efeitos gigantes de bombeamento de spin nuclear-eletrônico induzidos por radiofrequências no antiferromagneto tridimensional de Heisenberg  $\text{RbMnF}_3$ . Neste material, os pequenos valores das frequências dos mágnons eletrônicos nas proximidades da transição da fase antiferromagnética para a *spin-flop* resultam em um aumento do desvio das frequências de ressonância magnética nuclear, o que produz um acoplamento forte entre os graus de liberdade dos spins nucleares e eletrônicos. Isso resulta em sinais de tensão elétrica associados ao efeito de bombeamento de spin nuclear-eletrônico no antiferromagneto de Heisenberg  $\text{RbMnF}_3$  que são de duas a três ordens de magnitude maiores do que no  $\text{MnCO}_3$  e que permanecem visíveis a temperaturas quase dez vezes maiores.

### 4.1 EFEITO DE BOMBEAMENTO DE SPIN

#### 4.1.1 Efeito de bombeamento de spin eletrônico

O processo de bombeamento de spin em um material magnético consiste na produção de uma corrente de momento angular de spin eletrônico, ou simplesmente corrente de spin, por meio de uma magnetização que varia no tempo, tal qual a dinâmica de precessão produzida pela ressonância magnética. O bombeamento de spin eletrônico foi concebido há duas décadas como um mecanismo para o amortecimento da magnetização em bicamadas do tipo metal ferromagnético (FM)/não-magnético (NM) [67–69]. No entanto, um efeito mais interessante do bombeamento de spin foi logo descoberto experimentalmente, a saber, a geração de uma tensão elétrica na camada NM resultante da conversão da corrente de spin injetada em uma corrente de carga por meio do efeito Hall de spin inverso (ISHE) [11, 46, 70–74].

Posteriormente, esse fenômeno foi previsto [75] e demonstrado experimentalmente em bicamadas compostas por um isolante antiferromagnético (AFI) e uma camada NM [76–78], contribuindo para impulsionar o campo emergente da spintrônica antiferromagnética. Esses efeitos se tornaram alguns dos mais importantes no campo ativo da spintrônica, que tem aplicação em dispositivos de memória magnética e a possibilidade de se tornar uma maneira robusta e energeticamente eficiente de lidar com informações clássicas e quânticas, de modo geral.

Para compreender conceitualmente o fenômeno de bombeamento de spin, será considerado por simplicidade uma bicamada de um material ferromagnético (FM) em contato com uma camada metálica não-magnética (NM). Como mostrado nas referências [67–69], a densidade de corrente de spin que é injetada na camada NM pela precessão da

magnetização pode ser escrita como sendo

$$\mathbf{J}_S^{\text{pump}} = \frac{\hbar}{4\pi M} \left( \frac{g_r^{\uparrow\downarrow}}{M} \mathbf{M} \times \frac{d\mathbf{M}}{dt} - g_i^{\uparrow\downarrow} \frac{d\mathbf{M}}{dt} \right), \quad (4.1)$$

da qual a quantidade  $g^{\uparrow\downarrow} = g_r^{\uparrow\downarrow} + ig_i^{\uparrow\downarrow}$  recebe o nome de condutância de mistura de spins (dada em  $\text{cm}^{-2}$ ), que descreve a “transparência” da interface quanto à injeção da corrente de spin.

O primeiro termo na equação (4.1) funciona como um fator de amortecimento, assim como o fator adicionado por Gilbert no formalismo de Landau–Lifshitz–Gilbert para a dinâmica de magnetização. O segundo termo, associado às dissipações no sistema, é geralmente negligenciável, uma vez que  $g_r^{\uparrow\downarrow} \gg g_i^{\uparrow\downarrow}$ , de forma que em boa parte dos casos de interesse, apenas a parte real da condutância de mistura de spins é considerada. A corrente de spin que é bombeada até a interface da bicamada FM/NM produz uma acumulação de spins na camada NM.

Tal acumulação de spins gera outra corrente de spin de retorno,  $\mathbf{J}_S^{\text{back}}$ , que flui de volta para a camada ferromagnética, de modo que a densidade de corrente de spin líquida na interface é dada por  $\mathbf{J}_S^{\text{pump}} - \mathbf{J}_S^{\text{back}}$ . Com isso, utilizando a equação de difusão para a acumulação de spins, pode-se mostrar que a densidade de corrente de spin efetiva na interface é dada por

$$\mathbf{J}_S(0) = \frac{\hbar g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}}{4\pi M^2} \left( \mathbf{M} \times \frac{d\mathbf{M}}{dt} \right), \quad (4.2)$$

na qual

$$g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} \approx \frac{g_r^{\uparrow\downarrow}}{1 + \left( 2\sqrt{\tau_{el}/3\tau_{sf}} \tanh(\kappa t_N) \right)^{-1}} \quad (4.3)$$

é a parte real da condutância de mistura de spins efetiva, com  $\tau_{el}$  o tempo de espalhamento elástico dos elétrons,  $\tau_{sf}$  o chamado tempo de relaxação de spin-*flip*,  $\kappa$  o número de onda efetivo e  $t_N$  a espessura da camada NM (ver a referência [21]).

Por se tratar de um fenômeno interfacial, o amortecimento introduzido pelo efeito de bombeamento de spin é inversamente proporcional à espessura da camada ferromagnética. Conseqüentemente, a deposição de uma camada NM em uma camada FM faz com que, por meio do processo de bombeamento de spin, a largura de linha do FM aumente de um certo valor  $\Delta H_{FM}$  para

$$\Delta H_T = \Delta H_{FM} + \frac{\hbar\omega g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}}{4\pi M t_{FM}}, \quad (4.4)$$

com  $\omega = 2\pi f$  a frequência angular da radiofrequência. Assim, a equação (4.4) possibilita que a parte real da condutância de mistura de spins seja obtida experimentalmente ao comparar a largura de linha do material ferromagnético com e sem a presença de uma camada não-magnética [79].

No entanto, o fenômeno mais interessante gerado pelo efeito de bombeamento de spin é produção de um sinal de tensão elétrica na camada NM devido ao ISHE. Tal tensão elétrica é relacionada com os parâmetros dos materiais por

$$V_{SPE} = \frac{2q_e}{\hbar} R_N w \lambda_N \theta_{SH} \tanh\left(\frac{t_N}{2\lambda_N}\right) J_S(0), \quad (4.5)$$

onde  $q_e$  representa a carga do elétron,  $\theta_{SH}$  é o ângulo Hall de spin,  $J_S(0)$  é a densidade de corrente de spin bombeada na interface, e os parâmetros  $\lambda_N$ ,  $R_N$ ,  $t_N$  e  $w$  correspondem ao comprimento de difusão, resistência, espessura e largura do filme metálico não-magnético, nesta ordem [21].

#### 4.1.2 Efeito de bombeamento de spin nuclear

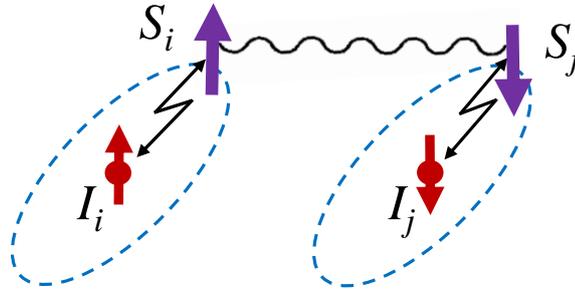
Excitações coletivas de spins nucleares, chamadas de ondas de spins nucleares ou ainda mágnons nucleares, são possibilitadas em materiais magnéticos pelo alto acoplamento hiperfino entre os spins nucleares e eletrônicos em um átomo, e pela interação de troca entre os spins eletrônicos. A investigação das ondas de spin nuclear teve grande interesse entre pesquisadores teóricos e experimentais em todo o mundo durante as décadas de 1970 e 1980, mas gradualmente foi perdendo proeminência com o passar do tempo. No entanto, foi recentemente relatado que a ressonância magnética nuclear no antiferromagneto inclinado (*canted*) MnCO<sub>3</sub> produz efeitos de bombeamento de spin semelhantes aos estudados há décadas em materiais ferromagnéticos e antiferromagnéticos [26], conectando duas áreas da física até então consideravelmente independentes: a das excitações de spins nucleares e a da spintrônica.

No trabalho de Shiomi *et al.* [26], foi relatado que a ressonância magnética nuclear (NMR) no antiferromagneto isolante MnCO<sub>3</sub> também pode produzir o efeito de bombeamento de spin, que, por meio da interação hiperfina, é convertido em uma corrente de spin eletrônico que é então injetada em uma camada metálica adjacente e detectada por meio de uma tensão elétrica gerada pelo ISHE. O material utilizado em tais experimentos é um antiferromagneto anisotrópico que possui os spins das duas sub-redes em uma configuração inclinada devido à presença de uma interação volumétrica do tipo Dzyaloshinskii-Moriya [80–83], independentemente do valor do campo magnético externo que esteja aplicado.

Conforme discutido de forma detalhada no capítulo 3, a ressonância magnética nuclear depende de vários tipo de interações, mas a interação hiperfina apresenta um papel central na dinâmica dos spins nucleares. Em materiais paramagnéticos, os spins nucleares são independentes devido ao desordenamento dos spins eletrônicos, de modo que não se tem excitações coletivas. No entanto, devido à interação de troca em ferromagnetos e antiferromagnetos, os spins nucleares nesses materiais interagem indiretamente entre si,

caracterizando a chamada interação de Suhl-Nakamura [66], como está ilustrado na figura 24.

Figura 24 – Representação da interação de Suhl-Nakamura em um material com ordenamento antiferromagnético.



Fonte: Rezende, 2022 [66].

Como em outros materiais magnéticos, no MnCO<sub>3</sub> a interação de Suhl-Nakamura [84–86] leva a um acoplamento indireto entre os spins nucleares, o que dá origem a ondas de spins nucleares que têm atraído considerável atenção por vários anos [66, 87–102]. As observações de fenômenos spintrônicos produzidos por ondas de spins nucleares em antiferromagnetos abrem novas possibilidades na spintrônica, combinando as vantagens dos estados de spin nuclear de longa duração com a tecnologia da informação prontamente disponível por meio de dispositivos spintrônicos [103].

## 4.2 EXPERIMENTOS DE RESSONÂNCIA MAGNÉTICA NUCLEAR

Na fase antiferromagnética ( $H < H_{SF}$ ) do RbMnF<sub>3</sub>, à medida que a intensidade do campo magnético aumenta, a frequência de AFMR (dominada pelos elétrons) de um modo aumenta enquanto a do outro diminui, e o mesmo ocorre com as frequências de NMR (dominadas pelos núcleos), como discutido no capítulo 3. Na fase *spin-flop* ( $H \geq H_{SF}$ ), à medida que a intensidade do campo magnético aumenta, a frequência de um modo de AFMR aumenta enquanto a do outro permanece praticamente constante, e o mesmo ocorre com os dois modos de NMR.

Na fase *spin-flop*, a frequência  $\omega_N$  do modo nuclear inferior está relacionada à frequência  $\omega_e$  do modo eletrônico inferior aproximadamente por [66]

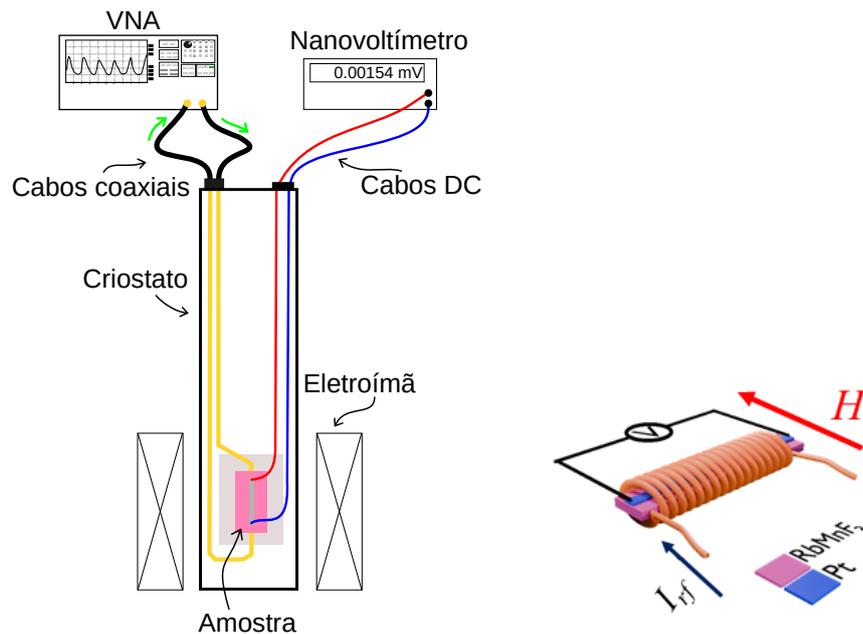
$$\omega_N \approx \gamma_N H_{NN} \left( 1 - \frac{2\gamma^2 H_E H_N}{\omega_e^2} \right)^{1/2}, \quad (4.6)$$

onde  $\gamma_N$  e  $\gamma$  são, respectivamente, a razão giromagnética nuclear e eletrônica,  $H_E$  e  $H_N$  são os campos de troca e hiperfino. A equação (4.6) mostra que, nas proximidades da transição *spin-flop*, a queda acentuada na frequência nuclear é devida à diminuição da

frequência eletrônica. Esse desvio da frequência nuclear é uma característica única do  $\text{RbMnF}_3$ , o que o torna mais interessante do que o  $\text{MnCO}_3$  para estudos de bombeamento de spin nuclear-eletrônico, pois produz um acoplamento forte entre os graus de liberdade dos spins nucleares e eletrônicos.

Os experimentos de ressonância magnética nuclear do antiferromagneto  $\text{RbMnF}_3$  foram realizados acionando a ressonância magnética dos spins nucleares dos íons de  $^{55}\text{Mn}$  usando uma bobina de fio de cobre com vinte voltas ao redor da amostra, que foi alimentada com uma corrente de radiofrequência na faixa de 200 MHz a 700 MHz. O alinhamento da amostra foi feito girando o criostato no plano horizontal com um passo de  $0,5^\circ$ , de modo a maximizar a separação dos picos das fases AF e SF. A figura 25 ilustra a montagem experimental utilizada para as medidas de ressonância magnética nuclear e de bombeamento de spin relatadas neste capítulo. Mais detalhes sobre a montagem experimental estão descritos na subseção 2.4.3.

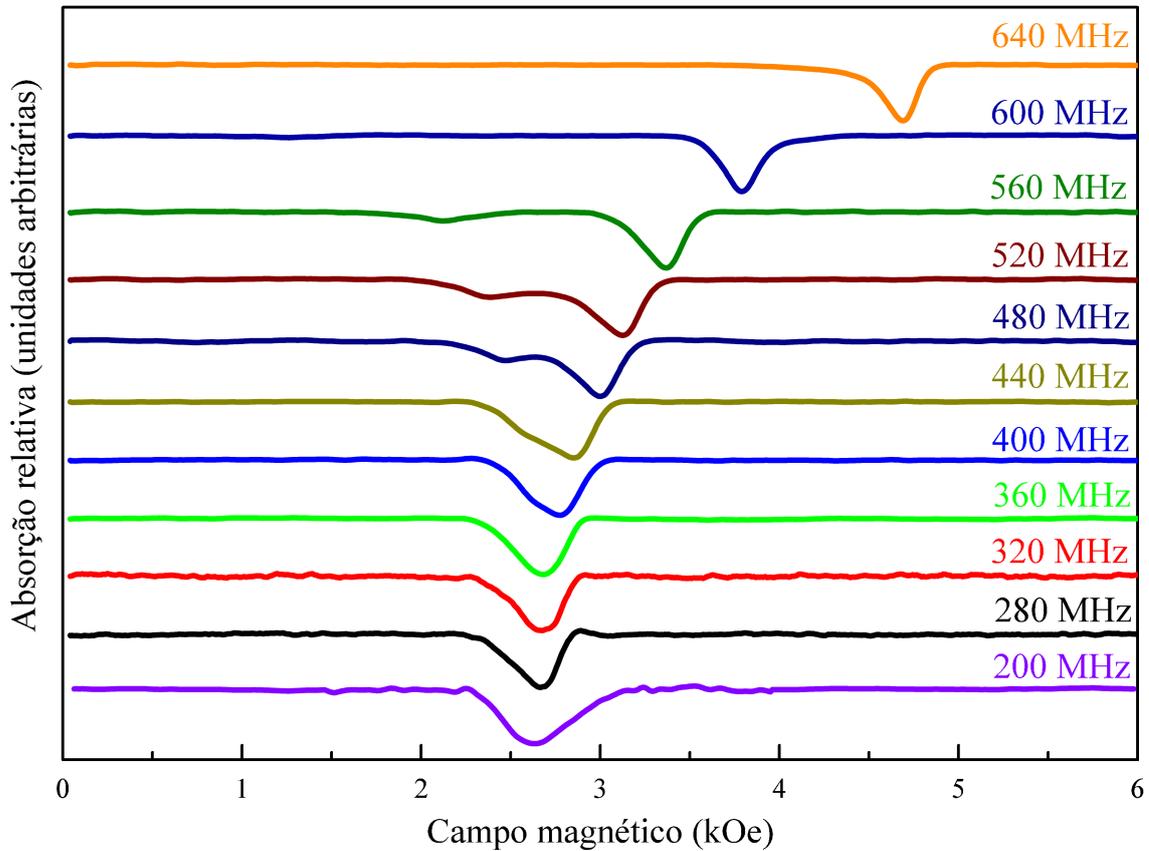
Figura 25 – Ilustração esquemática da montagem experimental usada para alimentar a bobina com a corrente de radiofrequência e para detectar o sinal de radiofrequência transmitido e a tensão de bombeamento de spin.



Fonte: cortesia de D. S. Maior e E. C. Souza (2024).

A figura 26 mostra as medidas de espectro de NMR com as varreduras do campo magnético ao longo da direção  $[001]$  da amostra para os sinais de radiofrequência medidos utilizando um VNA na configuração de reflexão, para várias frequências, com a amostra de  $\text{RbMnF}_3$  no criostato a uma temperatura fixa de  $T = 11\text{ K}$ , mantendo a potência da radiofrequência em  $1\text{ mW}$ . Resultados equivalentes também foram observados utilizando um gerador de radiofrequência e detectando o sinal com um diodo de barreira Schottky, na chamada configuração de transmissão, como se é esperado.

Figura 26 – Espectro de NMR da amostra de  $\text{RbMnF}_3$  a 11 K em função do campo magnético aplicado ao longo da direção [001] para várias frequências com a potência de 1 mW.



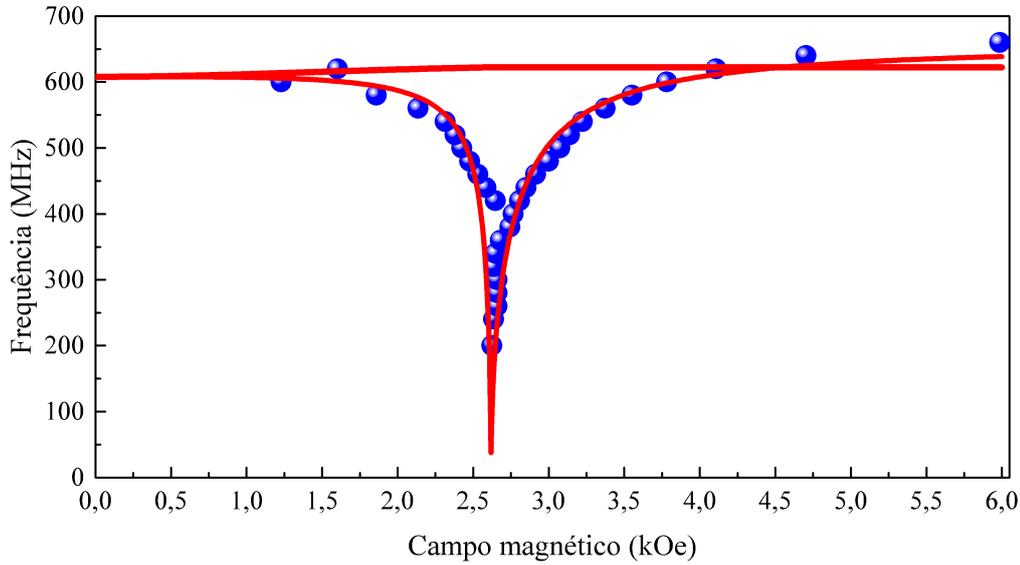
Fonte: o autor, 2025.

Esses sinais são claramente devido à absorção do campo magnético de radiofrequência pelos dois modos de ressonância nuclear, um na fase antiferromagnética e o outro na fase *spin-flop*. À medida que a frequência de excitação diminui, os dois modos se aproximam e colapsam no campo da transição *spin-flop*,  $H_{SF}$ . A figura 27 mostra a comparação dos dados experimentais com as frequências calculadas numericamente para o  $\text{RbMnF}_3$  por meio da teoria semiclássica descrita no capítulo 3. Claramente, os resultados mostrados aqui estão em boa concordância com os experimentos de NMR relatados por Ince na referência [25], conforme mostrados no capítulo 3. O ajuste da curva teórica foi feito utilizando o *software* Maple com os seguintes valores numéricos:  $H_E = 839$  kOe,  $H_A = 5,44$  Oe e  $H_{NN} = 623$  kOe.

### 4.3 EXPERIMENTOS DO EFEITO DE BOMBEAMENTO DE SPIN NUCLEAR-ELETRÔNICO

Nesta seção, será relatada a observação de efeitos de bombeamento de spin nuclear-eletrônico (em inglês *nuclear-electronic spin pumping*, NESP) no antiferromagneto isolante  $\text{RbMnF}_3$ . Devido ao seu pequeno campo de *spin-flop*, pode-se investigar o fenômeno de

Figura 27 – Comparação da dependência com o campo magnético das medidas das frequências de NMR do  $\text{RbMnF}_3$  a 11 K com os cálculos numéricos do modelo de quatro sub-redes.



Fonte: o autor, 2025.

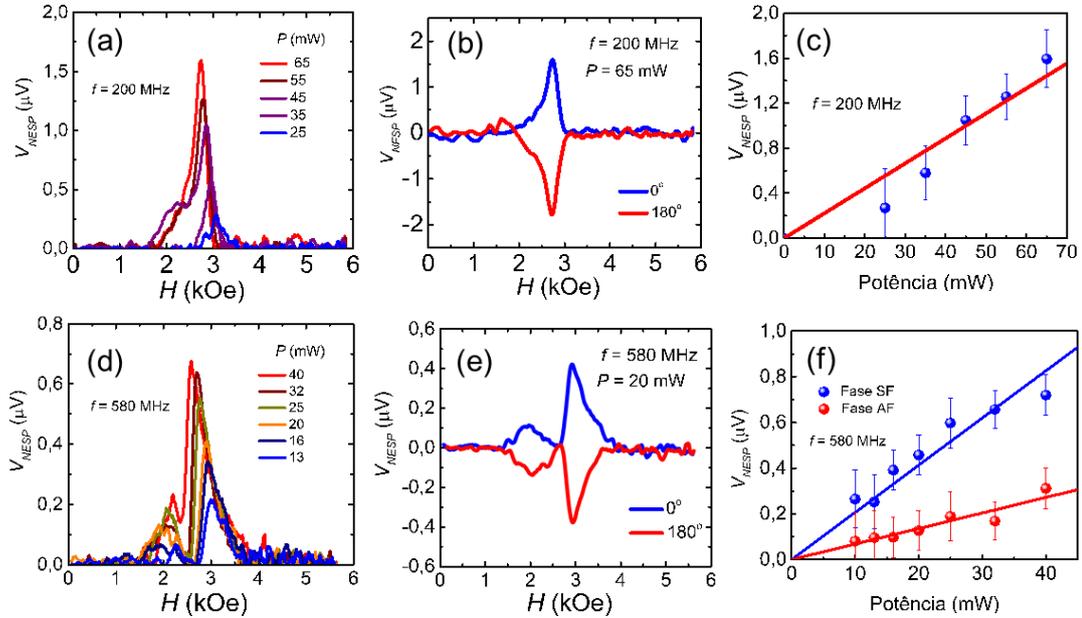
bombeamento de spin nuclear-eletrônico tanto nas fases AF quanto SF em uma região de campo magnético na qual as frequências dos mágnons eletrônicos são pequenas, resultando em um acoplamento forte entre as excitações nucleares e eletrônicas.

O processo de bombeamento de spin é detectado medindo a tensão DC produzida ao longo do filme fino de Pt na amostra diretamente com um voltímetro durante o processo de ressonância magnética nuclear, conforme ilustrado na figura 25. A figura 28 mostra os resultados obtidos em duas frequências, 200 MHz e 580 MHz, todas com o filme de Pt perpendicular ao campo magnético criado por um eletroímã. Os resultados aqui relatados foram obtidos usando um dispositivo no qual um filme fino de Pt com 5 nm de espessura e 1,2 mm de largura foi depositado por vaporização catódica na superfície clivada ao longo da dimensão mais longa da amostra do antiferromagneto.

A figura 28(a) mostra o sinal de tensão elétrica medido em função do campo magnético aplicado para vários valores de potência de excitação a  $T = 11$  K. A figura 28(b) mostra que o sinal de tensão do NESP medido a 200 MHz e potência de radiofrequência de  $P = 65$  mW inverte seu sinal se a direção do campo for invertida, o que é uma característica do processo de bombeamento de spin. Outra característica do processo de NESP, a variação linear do valor do pico de tensão com a potência de excitação, é mostrada na figura 28(c).

As figuras 28(d)-(f) mostram os sinais de tensão elétrica de NESP obtidos com uma frequência de excitação de 580 MHz. Como pode ser visto na figura 27, neste caso, dois picos de absorção de NMR são observados à medida que o campo magnético é varrido, um na fase antiferromagnética e outro na fase spin-*flop*. Assim, dois picos de tensão NESP são também observados aqui, enquanto no  $\text{MnCO}_3$  apenas um pico é observado, porque o sistema de spins eletrônicos está somente na configuração inclinada.

Figura 28 – Medidas da tensão elétrica do efeito de bombeamento de spin eletrônico-nuclear (NESP) em uma bicamada de RbMnF<sub>3</sub>/Pt. (a) Tensão de NESP medida a  $T = 11$  K com o NMR excitado por radiação de radiofrequência de 200 MHz para vários valores de potência. (b) Demonstração da mudança no sinal da tensão de NESP com a reversão da direção do campo magnético. (c) Variação linear da tensão do pico de NESP com a potência aplicada. (d)-(f) Dados similares obtidos com a frequência de 580 MHz, na qual dois picos são excitados, um na fase AF e outro na fase SF.



Fonte: o autor, 2025.

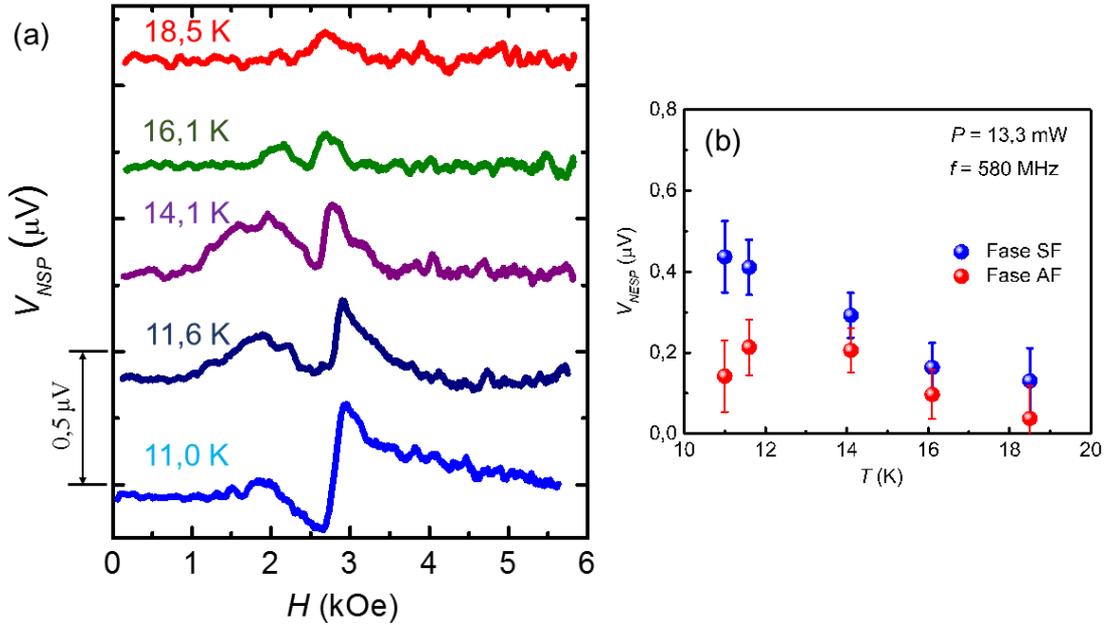
Outra diferença notável aqui é que, enquanto as amplitudes dos sinais de tensão de NESP no MnCO<sub>3</sub> estão na faixa apenas alguns poucos nV, no RbMnF<sub>3</sub> os sinais são surpreendentemente da ordem de 1  $\mu$ V. Os valores gigantes observados aqui são devidos ao fato de que, nas proximidades da transição da fase antiferromagnética para a spin-*flop* do RbMnF<sub>3</sub>, as frequências de mágnons eletrônicos diminuem substancialmente, produzindo um grande desvio nas frequências de NMR, indicando um forte acoplamento entre os graus de liberdade eletrônicos e nucleares.

Como explicado por Shiomu *et al.* na referência [26], os spins nucleares em precessão sob NMR conduzem a dinâmica dos spins eletrônicos, os quais produzem uma corrente de spin eletrônico, assim como no processo de bombeamento de spin em antiferromagnetos [75]. A corrente de spin eletrônico com densidade  $\mathbf{J}_S$  é injetada no filme fino de Pt, onde gera uma corrente de carga com densidade  $\mathbf{J}_C = \theta_{SH}(2e/\hbar)(\mathbf{J}_S \times \hat{\sigma})$ . Como  $\hat{\sigma}$  é paralelo ao campo magnético externo, essa expressão mostra que a tensão do efeito NESP muda de sinal com a reversão do campo magnético e desaparece se o campo for paralelo ao filme fino de Pt, assim como no efeito de bombeamento de spin eletrônico.

Finalmente, as medidas de tensão de NESP foram feitas para várias temperaturas fixas. A figura 29 mostra os dados obtidos com uma frequência de excitação de 580 MHz e potência radiofrequência de 13,3 mW, onde dois picos de NESP são claramente visíveis

até  $T = 18,5$  K. Como esperado, as intensidades dos picos diminuem com o aumento da temperatura devido à diminuição da polarização nuclear, visto que o acoplamento entre as magnetizações nucleares e eletrônicas é representado pelo campo hiperfino  $H_N = (9,43 \text{ K}/T) \text{ Oe}$ , que decresce com a temperatura.

Figura 29 – (a) Tensão elétrica de NESP medida com varredura de campo para várias temperaturas da amostra de  $\text{RbMnF}_3$ . (b) Variação das intensidades dos dois picos com a temperatura.



Fonte: o autor, 2025.

Aqui, novamente, há uma diferença notável em relação aos estudos anteriores de bombeamento de spin por ondas de spins nucleares na referência [26]. Enquanto no antiferromagneto  $\text{MnCO}_3$  o pico de tensão de NESP é observado apenas na faixa de temperatura de 1,5 K a 2,5 K, no  $\text{RbMnF}_3$  os dois picos decaem com o aumento da temperatura, como esperado, mas são observados até uma temperatura de quase 20 K, uma ordem de magnitude maior do que no  $\text{MnCO}_3$ . Como explicado anteriormente, isso se deve ao acoplamento muito mais forte entre os graus de liberdade eletrônicos e nucleares do  $\text{RbMnF}_3$ , o que resulta em uma polarização nuclear que permanece considerável em temperaturas maiores.

Embora também tenham sido feitas várias tentativas para medir sinais de bombeamento de spin eletrônico no antiferromagneto  $\text{RbMnF}_3$  com um filme fino de Pt, não foi possível obter resultados conclusivos devido às limitações experimentais da montagem com o criostato. Os cabos coaxiais para baixas temperaturas disponíveis atenuam o sinal de radiofrequência em várias ordens de grandeza para frequências acima de 1 GHz, enquanto o uso dos cabos coaxiais para micro-ondas em temperatura ambiente não permitem um controle de temperatura adequado no criostato, devido à alta condutividade térmica dos metais que constituem o cabo.

Todavia, espera-se que o sinal de tensão elétrica gerado pelo efeito de bombeamento de spins eletrônicos seja de ordens de grandezas maior do que o de bombeamento de spins nucleares no antiferromagneto  $\text{RbMnF}_3$ . Até onde o autor deste trabalho tem conhecimento, a realização de tais experimentos seria a primeira verificação de bombeamento de spins eletrônicos em antiferromagnetos na faixa de 4 a 12 GHz, visto que antiferromagnetos como o  $\text{MnF}_2$  têm suas frequências de AFMR na faixa de subterahertz, como relatado na referência [77]. Portanto, trata-se de mais uma montagem experimental que pode ser abordada para trabalhos futuros.

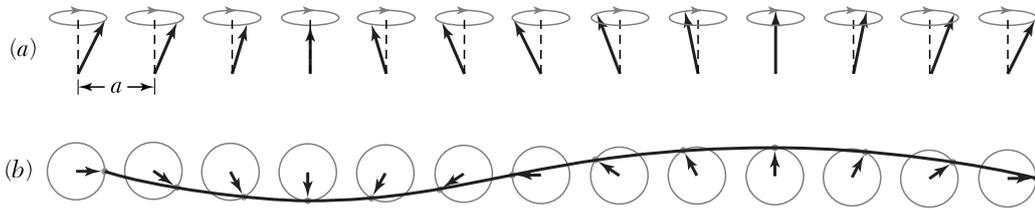
## 5 TEORIA QUÂNTICA DE ONDAS DE SPINS ELETRÔNICOS NO ANTIFERROMAGNETO $\text{RbMnF}_3$

O desenvolvimento da teoria quântica de ondas de spins eletrônicos no antiferromagneto de Heisenberg  $\text{RbMnF}_3$  leva às relações das frequências de mágnons em função do campo magnético externo e do número de onda. Na seção 5.1 será feita uma descrição geral sobre o tratamento quântico de ondas de spin, incluindo a transformação de Holstein-Primakoff. Na seção 5.2 será apresentado o Hamiltoniano que descreve o antiferromagneto  $\text{RbMnF}_3$ , considerando as mudanças de coordenadas e a introdução dos operadores de mágnons. O Hamiltoniano é então diagonalizado na seção 5.3 e os resultados são aplicados para o  $\text{RbMnF}_3$ . Por fim, a teoria de renormalização de energia de mágnons a campo nulo é apresentada na seção 5.4.

### 5.1 TRATAMENTO QUÂNTICO DE ONDAS DE SPIN

De um ponto de vista clássico, as ondas de spin referem-se às excitações coletivas na orientação da magnetização de materiais magnéticos (ver figura 30). Assim, de forma análoga aos fônons, que são as quase-partículas associadas às vibrações elásticas em redes cristalinas, os mágnons são as quase-partículas associadas às ondas de spin. A quantização de ondas de spin é, dessa maneira, decorrente da quantização do momento angular de spin. Tais desvios de spin se propagam por toda a rede com uma certa energia  $\varepsilon_{\mathbf{k}} = \hbar\omega_{\mathbf{k}}$ , sendo  $\mathbf{k}$  o vetor de onda e  $\omega_{\mathbf{k}}$  a frequência angular associada à excitação [4, 21, 38]. Antes de discutir acerca das ondas de spins eletrônicos em  $\text{RbMnF}_3$ , é importante apresentar uma visão geral sobre o tratamento quântico a ser empregado.

Figura 30 – Representação de uma onda de spins para uma rede vista (a) de uma perspectiva tridimensional e (b) de cima.



Fonte: Kittel, 2005 [54].

Para um sítio  $i$  com número de spin  $S$  em uma rede cristalina, o operador de spin é representado pelo vetor  $\hat{\mathbf{S}}_i = (\hat{S}_i^x, \hat{S}_i^y, \hat{S}_i^z)$ , cujas componentes obedecem às relações de comutação  $[\hat{S}_i^x, \hat{S}_i^y] = i\hat{S}_i^z$ ,  $[\hat{S}_i^y, \hat{S}_i^z] = i\hat{S}_i^x$  e  $[\hat{S}_i^z, \hat{S}_i^x] = i\hat{S}_i^y$ . Como os operadores  $\hat{S}_i^z$  e  $\hat{S}_i^2 = \hat{\mathbf{S}}_i \cdot \hat{\mathbf{S}}_i$  comutam, podem-se definir autovetores  $|S_i^z\rangle$  tais que

$$\hat{S}_i^z |S_i^z\rangle = S_i^z |S_i^z\rangle, \quad (5.1a)$$

$$\hat{S}_i^2 |S_i^z\rangle = S(S+1) |S_i^z\rangle, \quad (5.1b)$$

com  $S_i^z = -S, -S + 1, \dots, 0, \dots, S - 1, S$ . É também conveniente introduzir os operadores escada na forma  $\hat{S}_i^\pm = \hat{S}_i^x \pm i\hat{S}_i^y$ , cujas aplicações em  $|S_i^z\rangle$  levam a

$$\hat{S}_i^\pm |S_i^z\rangle = \sqrt{S(S+1) - S_i^z(S_i^z \pm 1)} |S_i^z \pm 1\rangle. \quad (5.2)$$

Para uma discussão mais detalhada sobre operadores de spin, ver, por exemplo, as referências [37, 104].

O caso mais simples para exemplificar o tratamento quântico de uma onda de spin é o modelo de um ferromagneto isotrópico unidimensional com interações de troca apenas entre os primeiros vizinhos, o qual é descrito pelo Hamiltoniano de Heisenberg

$$\hat{H} = -2J \sum_i \hat{\mathbf{S}}_i \cdot \hat{\mathbf{S}}_{i+1}, \quad (5.3)$$

que por sua vez pode ser reescrito em termos dos operadores escada como

$$\hat{H} = -J \sum_i \left( \hat{S}_i^+ \hat{S}_{i+1}^- + \hat{S}_i^- \hat{S}_{i+1}^+ + 2\hat{S}_i^z \hat{S}_{i+1}^z \right). \quad (5.4)$$

Os estados de tal sistema são descritos por *kets* do tipo  $|S_1^z, S_2^z, \dots, S_N^z\rangle$ , no qual cada  $S_i^z$  tem valores inteiros que podem variar de  $-S$  até  $S$ .

No estado fundamental de tal sistema, todos os  $N$  spins apontam na mesma direção, como representado na figura 31(a), sendo tal configuração designada por  $|0\rangle = |S, S, \dots, S\rangle$ . Disso, a aplicação do operador de abaixamento  $\hat{S}_i^-$  no autovetor  $|0\rangle$  consiste em um desvio de spin (ver figura 31(b)). No entanto, isso não descreve o primeiro estado excitado, visto que  $\hat{S}_i^- |0\rangle = |S, S, \dots, S - 1, \dots, S\rangle$  não é um autovetor do Hamiltoniano (5.4). Na verdade, o autovetor correto para o primeiro estado excitado é

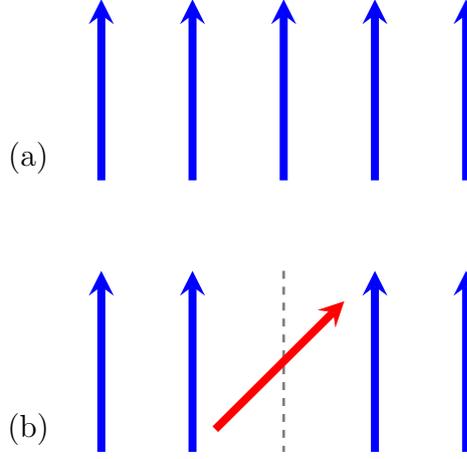
$$|1k\rangle = \frac{1}{\sqrt{2SN}} \sum_i e^{ikr_i} \hat{S}_i^- |0\rangle, \quad (5.5)$$

com  $r_i$  a posição do  $i$ -ésimo spin. O estado  $|1k\rangle$  descreve uma onda de spin com um certo número de onda  $k$ . Isso significa que o desvio de spin não é localizado em um único sítio, mas sim propagado por toda a rede [27, 54]. Todavia, o autovetor que descreve o segundo estado excitado não pode ser descrito como uma combinação linear de  $(\hat{S}_i^-)^2 |0\rangle$ , o que significa que uma abordagem mais apropriada e que seja válida também para sistemas mais complicados é necessária.

No escopo da segunda quantização, definem-se os operadores de criação e aniquilação de mágnons (isto é, os operadores de desvios de spin) no sítio  $i$  respectivamente por  $\hat{a}_i^\dagger$  e  $\hat{a}_i$ , de modo que o operador de número de desvios de spin no sítio é  $\hat{n}_i = \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i$ , que se relaciona com os operadores de spin por

$$\hat{n}_i = S - \hat{S}_i^z. \quad (5.6)$$

Figura 31 – (a) Representação clássica da direção dos spins em um material ferromagnético no estado fundamental. (b) Representação de um desvio de spin em um determinado sítio.



Fonte: o autor, 2025.

Como mágnons são quase-partículas bosônicas, os operadores  $\hat{a}_i^\dagger$  e  $\hat{a}_i$  devem obedecer às relações de comutação (ver, por exemplo, a referência [105])

$$[\hat{a}_i, \hat{a}_{i'}^\dagger] = \delta_{i,i'}, \quad (5.7a)$$

$$[\hat{a}_i, \hat{a}_{i'}] = [\hat{a}_i^\dagger, \hat{a}_{i'}^\dagger] = 0. \quad (5.7b)$$

Da equação (5.6), segue que  $\hat{n}_i$  e  $\hat{S}_i^z$  comutam, o que implica que os autovetores de  $\hat{n}_i$  são  $|n_i\rangle = |S_i^z\rangle$ , de tal maneira que

$$\hat{a}_i^\dagger |n_i\rangle = \sqrt{n_i + 1} |n_i + 1\rangle, \quad (5.8a)$$

$$\hat{a}_i |n_i\rangle = \sqrt{n_i} |n_i - 1\rangle. \quad (5.8b)$$

O mapeamento dos operadores  $\hat{S}_i^\pm$  e  $\hat{S}_i^z$  para os operadores bosônicos deve obedecer às relações de comutação dos operadores de spin. Isso é satisfeito pela chamada transformação de Holstein-Primakoff [21, 106], na qual

$$\hat{S}_i^+ = \sqrt{2S - \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i} \hat{a}_i, \quad (5.9a)$$

$$\hat{S}_i^- = \hat{a}_i^\dagger \sqrt{2S - \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i}, \quad (5.9b)$$

$$\hat{S}_i^z = S - \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i. \quad (5.9c)$$

Para os casos em que  $\langle \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i \rangle \ll 2S$  é válido [107], pode-se utilizar a expansão em série de Taylor na forma

$$\sqrt{2S - \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i} = \sqrt{2S} \left( 1 - \frac{\hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i}{2S} \right)^{1/2} = \sqrt{2S} \left( 1 - \frac{1}{4S} \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i - \frac{1}{32S^2} \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i - \dots \right). \quad (5.10)$$

Por conseguinte, em primeira aproximação, a transformação dada pelas equações (5.9) torna-se simplesmente

$$\hat{S}_i^+ \approx \sqrt{2S} \hat{a}_i, \quad (5.11a)$$

$$\hat{S}_i^- \approx \sqrt{2S} \hat{a}_i^\dagger, \quad (5.11b)$$

$$\hat{S}_i^z \approx S - \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i. \quad (5.11c)$$

De modo geral, esse procedimento leva a aproximações cada vez melhores à medida que a temperatura diminui com relação à temperatura de ordenamento magnético do material de interesse (a temperatura de Curie para ferromagnetos ou a temperatura de Néel para antiferromagnetos).

Em uma primeira aproximação, com o uso das equações (5.11), consideram-se no Hamiltoniano apenas os termos quadráticos (isto é, os termos que envolvem apenas  $\hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i$ ,  $\hat{a}_i \hat{a}_i$  ou  $\hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i^\dagger$ ) para obter a relação de dispersão. Os termos de outras ordens têm um importante papel no cálculo de renormalização de energia e da taxa de relaxação de mágnons [108, 109]. Aqui o objetivo passa a ser a diagonalização do Hamiltoniano com os termos quadráticos, o que envolve a utilização de transformadas de Fourier e transformações de Bogoliubov. No decorrer deste capítulo, serão estudadas ondas de spin em materiais antiferromagnéticos de rede cúbica, em especial o antiferromagneto RbMnF<sub>3</sub>, tanto na fase antiferromagnética quanto na fase *spin-flop*.

## 5.2 HAMILTONIANO DO SISTEMA

O objetivo deste capítulo é realizar a diagonalização do Hamiltoniano quântico que descreve os spins eletrônicos para o RbMnF<sub>3</sub> nas fases antiferromagnéticas e *spin-flop*, embora a discussão apresentada aqui seja também válida para qualquer antiferromagneto de rede cúbica simples. Para fins de simplificação da notação, os operadores associados à primeira sub-rede serão representados pelos índices  $i$ , enquanto os da segunda serão representados pelos índices  $j$ . Será considerado o Hamiltoniano eletrônico  $\hat{\mathcal{H}}_{\text{total}}$  com os termos de Zeeman  $\hat{\mathcal{H}}_Z$ , de interação de troca  $\hat{\mathcal{H}}_{\text{exc}}$ , de anisotropia cúbica  $\hat{\mathcal{H}}_{\text{an}}$  e de interação hiperfina  $\hat{\mathcal{H}}_{\text{hf}}$  de modo que

$$\hat{\mathcal{H}}_{\text{total}} = \hat{\mathcal{H}}_Z + \hat{\mathcal{H}}_{\text{exc}} + \hat{\mathcal{H}}_{\text{an}} + \hat{\mathcal{H}}_{\text{hf}}. \quad (5.12)$$

Para um determinado campo magnético externo  $\mathbf{H}$ , a contribuição do termo de Zeeman para o Hamiltoniano é dada por

$$\hat{\mathcal{H}}_Z = -\gamma\hbar \sum_i \hat{\mathbf{S}}_i \cdot \mathbf{H} - \gamma\hbar \sum_j \hat{\mathbf{S}}_j \cdot \mathbf{H}, \quad (5.13)$$

enquanto o termo de interação de troca no antiferromagneto é descrito pela equação (mais detalhes podem ser encontrados na referência [110])

$$\hat{\mathcal{H}}_{\text{exc}} = -2 \sum_{i>j} J_{ij} \hat{\mathbf{S}}_i \cdot \hat{\mathbf{S}}_j, \quad (5.14)$$

com  $J_{ij} < 0$  a chamada constante de troca. Entretanto, é importante ressaltar que o termo de anisotropia depende da estrutura cristalina do material. Como o interesse deste capítulo é descrever ondas de spin no RbMnF<sub>3</sub>, será tratado aqui apenas o termo de anisotropia cúbica. Por uma questão de conveniência, o tratamento do termo de interação hiperfina será discutido mais adiante.

No caso de um antiferromagneto de rede cúbica, o termo de anisotropia é descrito pela expressão

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_{\text{an}} = & -\frac{K}{2S^4} \sum_i \left[ (\hat{S}_i^x)^2 (\hat{S}_i^y)^2 + (\hat{S}_i^y)^2 (\hat{S}_i^z)^2 + (\hat{S}_i^z)^2 (\hat{S}_i^x)^2 \right. \\ & \left. + (\hat{S}_i^y)^2 (\hat{S}_i^x)^2 + (\hat{S}_i^z)^2 (\hat{S}_i^y)^2 + (\hat{S}_i^x)^2 (\hat{S}_i^z)^2 \right] \\ & -\frac{K}{2S^4} \sum_j \left[ (\hat{S}_j^x)^2 (\hat{S}_j^y)^2 + (\hat{S}_j^y)^2 (\hat{S}_j^z)^2 + (\hat{S}_j^z)^2 (\hat{S}_j^x)^2 \right. \\ & \left. + (\hat{S}_j^y)^2 (\hat{S}_j^x)^2 + (\hat{S}_j^z)^2 (\hat{S}_j^y)^2 + (\hat{S}_j^x)^2 (\hat{S}_j^z)^2 \right], \end{aligned} \quad (5.15)$$

na qual  $K > 0$  é a chamada constante de anisotropia do material [21, 111–114]. Essa expressão pode, no entanto, ser escrita numa forma mais conveniente para as discussões deste capítulo ao recordar que  $\hat{S}_i^2 = (\hat{S}_i^x)^2 + (\hat{S}_i^y)^2 + (\hat{S}_i^z)^2$ , de tal maneira que é possível obter diretamente uma relação entre as componentes a partir de

$$\begin{aligned} \hat{S}_i^4 = & (\hat{S}_i^x)^2 (\hat{S}_i^y)^2 + (\hat{S}_i^y)^2 (\hat{S}_i^z)^2 + (\hat{S}_i^z)^2 (\hat{S}_i^x)^2 + (\hat{S}_i^y)^2 (\hat{S}_i^x)^2 \\ & + (\hat{S}_i^z)^2 (\hat{S}_i^y)^2 + (\hat{S}_i^x)^2 (\hat{S}_i^z)^2 + (\hat{S}_i^x)^4 + (\hat{S}_i^y)^4 + (\hat{S}_i^z)^4. \end{aligned} \quad (5.16)$$

Como o módulo do vetor  $\hat{\mathbf{S}}_i$  é constante, então  $\hat{S}_i^4$  corresponde a uma mera constante aditiva no Hamiltoniano do sistema. Portanto, segue que equação (5.15) pode ser reescrita na forma simplificada

$$\hat{\mathcal{H}}_{\text{an}} = \frac{K}{2S^4} \sum_i \left[ (\hat{S}_i^x)^4 + (\hat{S}_i^y)^4 + (\hat{S}_i^z)^4 \right] + \frac{K}{2S^4} \sum_j \left[ (\hat{S}_j^x)^4 + (\hat{S}_j^y)^4 + (\hat{S}_j^z)^4 \right]. \quad (5.17)$$

Análogo ao procedimento realizado no capítulo 3 nos cálculos semiclássicos para a obtenção das frequências de ressonância antiferromagnética e de ressonância magnética nuclear, define-se um novo sistema de coordenadas  $(\hat{x}', \hat{y}', \hat{z}')$  para a primeira sub-rede, o qual corresponde a uma rotação até o plano (110) e então a uma rotação nesse plano de

um ângulo  $\theta - \tau$  a partir do eixo  $\hat{z}$ , de modo que obtém-se

$$\begin{pmatrix} \hat{S}_i^x \\ \hat{S}_i^y \\ \hat{S}_i^z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{\cos(\theta - \tau)}{\sqrt{2}} & -\frac{1}{\sqrt{2}} & \frac{\sin(\theta - \tau)}{\sqrt{2}} \\ \frac{\cos(\theta - \tau)}{\sqrt{2}} & \frac{1}{\sqrt{2}} & \frac{\sin(\theta - \tau)}{\sqrt{2}} \\ -\sin(\theta - \tau) & 0 & \cos(\theta - \tau) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \hat{S}_i^{x'} \\ \hat{S}_i^{y'} \\ \hat{S}_i^{z'} \end{pmatrix}. \quad (5.18)$$

Similarmente, para a segunda sub-rede tem-se o sistema de coordenadas  $(\hat{x}'', \hat{y}'', \hat{z}'')$ , o que corresponde a uma rotação até o plano (110) e então uma rotação nesse plano de  $\theta + \pi + \tau$  a partir do eixo  $z$ , tal que

$$\begin{pmatrix} \hat{S}_j^x \\ \hat{S}_j^y \\ \hat{S}_j^z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\frac{\cos(\theta + \tau)}{\sqrt{2}} & -\frac{1}{\sqrt{2}} & -\frac{\sin(\theta + \tau)}{\sqrt{2}} \\ -\frac{\cos(\theta + \tau)}{\sqrt{2}} & \frac{1}{\sqrt{2}} & -\frac{\sin(\theta + \tau)}{\sqrt{2}} \\ \sin(\theta + \tau) & 0 & -\cos(\theta + \tau) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \hat{S}_j^{x''} \\ \hat{S}_j^{y''} \\ \hat{S}_j^{z''} \end{pmatrix}. \quad (5.19)$$

Também definem-se os operadores escada como  $\hat{S}_i^\pm = \hat{S}_i^{x'} \pm i\hat{S}_i^{y'}$  e  $\hat{S}_j^\pm = \hat{S}_j^{x''} \pm i\hat{S}_j^{y''}$ .

Supondo que o campo magnético seja aplicado ao longo da direção [110], o termo de Zeeman (5.13) torna-se

$$\begin{aligned} \hat{H}_Z &= -\gamma\hbar H \sum_i \hat{S}_i^z - \gamma\hbar H \sum_j \hat{S}_j^z \\ &= -\gamma\hbar H \sum_i \left[ -\sin(\theta - \tau)\hat{S}_i^{x'} + \cos(\theta - \tau)\hat{S}_i^{z'} \right] \\ &\quad - \gamma\hbar H \sum_j \left[ \sin(\theta + \tau)\hat{S}_j^{x''} - \cos(\theta + \tau)\hat{S}_j^{z''} \right]. \end{aligned} \quad (5.20)$$

Após algumas manipulações algébricas, o termo de troca (5.14) torna-se

$$\begin{aligned} \hat{H}_{\text{exc}} &= -2 \sum_{i>j} J_{ij} \left[ \hat{S}_i^{y'} \hat{S}_j^{y''} - \cos(2\tau) \left( \hat{S}_i^{x'} \hat{S}_j^{x''} + \hat{S}_i^{z'} \hat{S}_j^{z''} \right) \right. \\ &\quad \left. - \sin(2\tau) \left( \hat{S}_i^{x'} \hat{S}_j^{z''} - \hat{S}_i^{z'} \hat{S}_j^{x''} \right) \right]. \end{aligned} \quad (5.21)$$

O termo de anisotropia cúbica no novo sistema de coordenadas é consideravelmente mais complicado, mas pode ser simplificado com o auxílio das transformações de Holstein-Primakoff.

Para um material antiferromagnético, definem-se por  $\hat{a}_i$  e  $\hat{b}_j$  os operadores bosônicos associados aos desvios de spin na primeira e na segunda sub-redes, respectivamente. Como tais operadores estão associados a spins pertencentes a sub-redes distintas, têm-se diretamente as relações de comutação

$$[\hat{a}_i, \hat{b}_j] = [\hat{a}_i^\dagger, \hat{b}_j^\dagger] = [\hat{a}_i, \hat{b}_j^\dagger] = [\hat{a}_i^\dagger, \hat{b}_j] = 0. \quad (5.22)$$

Além disso, de forma completamente análoga à discussão apresentada na seção 5.1, o próximo passo consiste em considerar a transformação de Holstein–Primakoff para a primeira sub-rede do material como sendo

$$\hat{S}_i^+ \approx \sqrt{2S} \hat{a}_i, \quad (5.23a)$$

$$\hat{S}_i^- \approx \sqrt{2S} \hat{a}_i^\dagger, \quad (5.23b)$$

$$\hat{S}_i^{z'} \approx S - \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i, \quad (5.23c)$$

e para a segunda sub-rede como

$$\hat{S}_j^+ \approx \sqrt{2S} \hat{b}_j, \quad (5.24a)$$

$$\hat{S}_j^- \approx \sqrt{2S} \hat{b}_j^\dagger, \quad (5.24b)$$

$$\hat{S}_j^{z''} \approx S - \hat{b}_j^\dagger \hat{b}_j. \quad (5.24c)$$

Com a transformação de Holstein–Primakoff, segue da equação (5.20) que a parte quadrática do termo de Zeeman é

$$\hat{\mathcal{H}}_Z^{(2)} = \gamma \hbar H \left[ \cos(\theta - \tau) \sum_i \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i - \cos(\theta + \tau) \sum_j \hat{b}_j^\dagger \hat{b}_j \right]. \quad (5.25)$$

enquanto da equação (5.21) obtém-se a parte quadrática do termo de troca como sendo

$$\hat{\mathcal{H}}_{\text{exc}}^{(2)} = -2S \sum_{i>j} J_{ij} \left[ \cos(2\tau) (\hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i + \hat{b}_j^\dagger \hat{b}_j) - \cos^2(\tau) (\hat{a}_i \hat{b}_j + \hat{a}_i^\dagger \hat{b}_j^\dagger) + \sin^2(\tau) (\hat{a}_i \hat{b}_j^\dagger + \hat{a}_i^\dagger \hat{b}_j) \right]. \quad (5.26)$$

Como  $H_A$  é muito pequeno para o RbMnF<sub>3</sub>, pode-se seguramente negligenciar os efeitos de  $\tau$  na equação (5.17). Após uma série de manipulações algébricas, a parte quadrática do termo de anisotropia pode ser escrita como

$$\hat{\mathcal{H}}_{\text{an}}^{(2)} = \gamma \hbar H_A \sum_i \left[ f_A(\theta) \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i + g_A(\theta) (\hat{a}_i^2 + \hat{a}_i^{\dagger 2}) \right] + \gamma \hbar H_A \sum_j \left[ f_A(\theta) \hat{b}_j^\dagger \hat{b}_j + g_A(\theta) (\hat{b}_j^2 + \hat{b}_j^{\dagger 2}) \right], \quad (5.27)$$

no qual  $H_A = \frac{4K}{3S\gamma\hbar}$  é o campo de anisotropia na direção [111], e

$$f_A(\theta) = \frac{3}{8} \left[ \frac{3}{8} - \frac{5}{2} \cos(2\theta) - \frac{15}{8} \cos(4\theta) \right], \quad (5.28a)$$

$$g_A(\theta) = \frac{9}{32} \sin^2(\theta) [1 + 3 \cos(2\theta)]. \quad (5.28b)$$

A contribuição hiperfina dá origem a termos envolvendo operadores de mágnons eletrônicos e nucleares, de modo que serão retidos os termos que possuem apenas operadores de mágnons eletrônicos, conforme discutido na referência [115].

Conforme discutido na seção 5.1, a base de estados para a diagonalização do Hamiltoniano é formada por excitações coletivas (que correspondem aos mágnons) envolvendo todos os spins que compõem o sistema [116]. Isso sugere, então, a utilização das transformadas de Fourier em termos dos operadores bosônicos coletivos  $\hat{a}_{\mathbf{k}}$  e  $\hat{b}_{\mathbf{k}}$ , de tal maneira que têm-se

$$\hat{a}_i = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_i} \hat{a}_{\mathbf{k}}, \quad (5.29a)$$

$$\hat{b}_j = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_j} \hat{b}_{\mathbf{k}}, \quad (5.29b)$$

sendo  $N$  o número total de spins em cada sub-rede. A partir disso, a condição de orthonormalidade (a qual é completamente análoga para os spins na sub-rede  $j$ ) é dada por

$$\frac{1}{N} \sum_i e^{i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\cdot\mathbf{r}_i} = \delta_{\mathbf{k},\mathbf{k}'}. \quad (5.30)$$

Das equações (5.29) e (5.30), segue que

$$\begin{aligned} \sum_i \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i &= \sum_i \left( \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{k}'} e^{-i\mathbf{k}'\cdot\mathbf{r}_i} \hat{a}_{\mathbf{k}'}^\dagger \right) \left( \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_i} \hat{a}_{\mathbf{k}} \right) \\ &= \sum_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} \left( \frac{1}{N} \sum_i e^{i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\cdot\mathbf{r}_i} \right) \hat{a}_{\mathbf{k}'}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} \\ &= \sum_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}}, \end{aligned} \quad (5.31)$$

e por analogia, encontra-se também a relação

$$\sum_j \hat{b}_j^\dagger \hat{b}_j = \sum_{\mathbf{k}} \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}}. \quad (5.32)$$

Os termos associados à contribuição de troca requerem um pouco mais de cuidado. Supondo que a constante de troca seja não-nula apenas para os primeiros vizinhos, tem-se  $J_{ij} = -|J|$  para todo par de primeiros vizinhos  $(i,j)$ . Define-se também o vetor  $\boldsymbol{\delta}$  que conecta os primeiros vizinhos de cada um dos spins, tal que  $\mathbf{r}_j = \mathbf{r}_i + \boldsymbol{\delta}$ . Assim, isso permite escrever

$$\sum_{i,j} J_{i,j} \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i = -|J| \sum_i \sum_{\boldsymbol{\delta}} \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i = -z_0 |J| \sum_i \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i = -z_0 |J| \sum_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}}, \quad (5.33)$$

bem como tem-se por analogia que

$$\sum_{i,j} J_{i,j} \hat{b}_j^\dagger \hat{b}_j = -z_0 |J| \sum_{\mathbf{k}} \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}}, \quad (5.34)$$

com  $z_0$  o número de primeiros vizinhos. Além disso,

$$\begin{aligned}
 \sum_{i,j} J_{i,j} \hat{a}_i \hat{b}_j &= -|J| \sum_i \sum_{\delta} \left( \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_i} \hat{a}_{\mathbf{k}} \right) \left( \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{k}'} e^{i\mathbf{k}'\cdot(\mathbf{r}_i+\delta)} \hat{b}_{\mathbf{k}'} \right) \\
 &= -|J| \sum_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} \left( \frac{1}{N} \sum_i e^{i(\mathbf{k}+\mathbf{k}')\cdot\mathbf{r}_i} \right) \left( \sum_{\delta} e^{i\mathbf{k}'\cdot\delta} \right) \hat{a}_{\mathbf{k}} \hat{b}_{\mathbf{k}'} \\
 &= -z_0 |J| \sum_{\mathbf{k}} \gamma_{-\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}} \hat{b}_{-\mathbf{k}},
 \end{aligned} \tag{5.35}$$

na qual se tem o chamado fator de estrutura

$$\gamma_{\mathbf{k}} = \frac{1}{z_0} \sum_{\delta} e^{i\mathbf{k}\cdot\delta}. \tag{5.36}$$

Para uma rede cúbica com parâmetro de rede  $a$ , tem-se  $z_0 = 6$ , com os vetores  $\delta$  que ligam os primeiros vizinhos dados por  $\pm a \hat{x}$ ,  $\pm a \hat{y}$ ,  $\pm a \hat{z}$ , tal que se obtém da equação (5.36) o fator de estrutura

$$\gamma_{\mathbf{k}} = \frac{1}{3} [\cos(k_x a) + \cos(k_y a) + \cos(k_z a)], \tag{5.37}$$

da qual se tem  $\gamma_{\mathbf{k}} = \gamma_{-\mathbf{k}}$ . Assim, a equação (5.35) torna-se

$$\sum_{i,j} J_{i,j} \hat{a}_i \hat{b}_j = -z_0 |J| \sum_{\mathbf{k}} \gamma_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}} \hat{b}_{-\mathbf{k}}, \tag{5.38}$$

bem como se encontram as relações

$$\sum_{i,j} J_{i,j} \hat{a}_i^{\dagger} \hat{b}_j^{\dagger} = -z_0 |J| \sum_{\mathbf{k}} \gamma_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}}^{\dagger} \hat{b}_{-\mathbf{k}}^{\dagger}, \tag{5.39}$$

$$\sum_{i,j} J_{i,j} \hat{a}_i \hat{b}_j^{\dagger} = -z_0 |J| \sum_{\mathbf{k}} \gamma_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}} \hat{b}_{\mathbf{k}}^{\dagger}, \tag{5.40}$$

$$\sum_{i,j} J_{i,j} \hat{a}_i^{\dagger} \hat{b}_j = -z_0 |J| \sum_{\mathbf{k}} \gamma_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}}^{\dagger} \hat{b}_{\mathbf{k}}. \tag{5.41}$$

Finalmente, os termos relacionados apenas com a anisotropia têm a forma

$$\sum_i \hat{a}_i^2 = \sum_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}} \hat{a}_{-\mathbf{k}}, \tag{5.42}$$

$$\sum_i \hat{a}_i^{\dagger 2} = \sum_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}}^{\dagger} \hat{a}_{-\mathbf{k}}^{\dagger}, \tag{5.43}$$

sendo análogos os cálculos para  $\hat{b}_j^2$  e  $\hat{b}_j^{\dagger 2}$ .

Da equação (5.25), o termo de Zeeman torna-se finalmente

$$\hat{\mathcal{H}}_Z^{(2)} = \gamma \hbar H \sum_{\mathbf{k}} [\cos(\theta - \tau) \hat{a}_{\mathbf{k}}^{\dagger} \hat{a}_{\mathbf{k}} - \cos(\theta + \tau) \hat{a}_{\mathbf{k}}^{\dagger} \hat{b}_{\mathbf{k}}], \tag{5.44}$$

enquanto o termo de troca (5.26) torna-se

$$\hat{\mathcal{H}}_{\text{exc}}^{(2)} = \gamma \hbar H_E \sum_{\mathbf{k}} \left[ \cos(2\tau) \left( \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} + \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}} \right) - \cos^2(\tau) \gamma_{\mathbf{k}} \left( \hat{a}_{\mathbf{k}} \hat{b}_{-\mathbf{k}} + \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{-\mathbf{k}}^\dagger \right) + \sin^2(\tau) \gamma_{\mathbf{k}} \left( \hat{a}_{\mathbf{k}} \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger + \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}} \right) \right], \quad (5.45)$$

com o campo de troca  $H_E = 2z_0 S |J| / (\gamma \hbar)$ . Da equação (5.27), obtém-se

$$\hat{\mathcal{H}}_{\text{an}}^{(2)} = \gamma \hbar H_A \sum_{\mathbf{k}} \left[ f_A(\theta) (\hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} + \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}}) + g_A(\theta) (\hat{a}_{\mathbf{k}} \hat{a}_{-\mathbf{k}} + \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{-\mathbf{k}}^\dagger + \hat{b}_{\mathbf{k}} \hat{b}_{-\mathbf{k}} + \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{-\mathbf{k}}^\dagger) \right]. \quad (5.46)$$

Como mostrado na referência [115], os termos relevantes da interação hiperfina são

$$\hat{\mathcal{H}}_{\text{hf}}^{(2)} = \gamma \hbar H_N \sum_{\mathbf{k}} (\hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} + \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}}), \quad (5.47)$$

com  $H_N$  o campo magnético efetivo devido à interação hiperfina. Portanto, a parte quadrática do Hamiltoniano é dada por

$$\hat{\mathcal{H}}^{(2)} = \hbar \sum_{\mathbf{k}} \left[ A_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} + B_{\mathbf{k}} \left( \hat{a}_{\mathbf{k}} \hat{b}_{-\mathbf{k}} + \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{-\mathbf{k}}^\dagger \right) + \frac{C_{\mathbf{k}}}{2} \left( \hat{a}_{\mathbf{k}} \hat{a}_{-\mathbf{k}} + \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{-\mathbf{k}}^\dagger + \hat{b}_{\mathbf{k}} \hat{b}_{-\mathbf{k}} + \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{-\mathbf{k}}^\dagger \right) + D_{\mathbf{k}} \left( \hat{a}_{\mathbf{k}} \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger + \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}} \right) + E_{\mathbf{k}} \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}} \right], \quad (5.48)$$

com os parâmetros

$$A_{\mathbf{k}} = \gamma [H \cos(\theta - \tau) + H_E \cos(2\tau) + H_N + H_A f_A(\theta)], \quad (5.49a)$$

$$B_{\mathbf{k}} = -\gamma H_E \gamma_{\mathbf{k}} \cos^2(\tau), \quad (5.49b)$$

$$C_{\mathbf{k}} = 2\gamma H_A g_A(\theta), \quad (5.49c)$$

$$D_{\mathbf{k}} = \gamma H_E \gamma_{\mathbf{k}} \sin^2(\tau), \quad (5.49d)$$

$$E_{\mathbf{k}} = \gamma [-H \cos(\theta + \tau) + H_E \cos(2\tau) + H_N + H_A f_A(\theta)]. \quad (5.49e)$$

### 5.3 DIAGONALIZAÇÃO DO HAMILTONIANO

#### 5.3.1 Procedimento de diagonalização

O objetivo agora passa a ser diagonalizar a equação (5.48) em termos de novos operadores de modos normais,  $\hat{\alpha}_{\mathbf{k}}$  e  $\hat{\beta}_{\mathbf{k}}$ , isto é, deseja-se escrever  $\hat{\mathcal{H}}^{(2)}$  como

$$\hat{\mathcal{H}}^{(2)} = \hbar \sum_{\mathbf{k}} \left( \omega_{\alpha_{\mathbf{k}}} \hat{\alpha}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{\alpha}_{\mathbf{k}} + \omega_{\beta_{\mathbf{k}}} \hat{\beta}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{\beta}_{\mathbf{k}} \right), \quad (5.50)$$

com  $\omega_{\alpha_{\mathbf{k}}}$  e  $\omega_{\beta_{\mathbf{k}}}$  as frequências angulares dos modos normais. Será seguido o procedimento proposto por White *et al.*, que fornece um método geral de diagonalização desse tipo de

Hamiltoniano com a utilização de transformações de Bogoliubov [21, 117]. Escreve-se a equação (5.48) na forma

$$\hat{\mathcal{H}}^{(2)} = \sum_{\mathbf{k}>0} \hat{\mathcal{H}}_{\mathbf{k}}^{(2)}, \quad (5.51)$$

de modo que o operador  $\hat{\mathcal{H}}_{\mathbf{k}}^{(2)}$  pode ser escrito na forma matricial

$$\mathcal{H}_{\mathbf{k}}^{(2)} = X^\dagger \mathcal{H} X, \quad (5.52)$$

na qual tem-se a matriz quadrada  $4 \times 4$

$$\mathcal{H} = \hbar \begin{pmatrix} A_{\mathbf{k}} & D_{\mathbf{k}} & C_{\mathbf{k}} & B_{\mathbf{k}} \\ D_{\mathbf{k}} & E_{\mathbf{k}} & B_{\mathbf{k}} & C_{\mathbf{k}} \\ C_{\mathbf{k}} & B_{\mathbf{k}} & A_{\mathbf{k}} & D_{\mathbf{k}} \\ B_{\mathbf{k}} & C_{\mathbf{k}} & D_{\mathbf{k}} & E_{\mathbf{k}} \end{pmatrix}, \quad (5.53)$$

e a matriz coluna

$$X = \begin{pmatrix} \hat{a}_{\mathbf{k}} \\ \hat{b}_{\mathbf{k}} \\ \hat{a}_{-\mathbf{k}}^\dagger \\ \hat{b}_{-\mathbf{k}}^\dagger \end{pmatrix}. \quad (5.54)$$

Por conseguinte, para obter a equação (5.50) na forma matricial, introduz-se uma matriz de transformação  $Q$  tal que  $X = QY$ , na qual se tem a matriz coluna

$$Y = \begin{pmatrix} \hat{\alpha}_{\mathbf{k}} \\ \hat{\beta}_{\mathbf{k}} \\ \hat{\alpha}_{-\mathbf{k}}^\dagger \\ \hat{\beta}_{-\mathbf{k}}^\dagger \end{pmatrix}, \quad (5.55)$$

de modo que a diagonalização significa que se pode escrever  $\mathcal{H}_{\mathbf{k}}^{(2)} = Y^\dagger \Omega_H Y$ , com a matriz

$$\Omega_H = \hbar \begin{pmatrix} \omega_{\alpha_{\mathbf{k}}} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \omega_{\beta_{\mathbf{k}}} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \omega_{\alpha_{\mathbf{k}}} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \omega_{\beta_{\mathbf{k}}} \end{pmatrix}. \quad (5.56)$$

Com o uso das relações de comutação para os operadores bosônicos, pode-se mostrar que

$$g = [X, X^\dagger] = [Y, Y^\dagger] = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 \end{pmatrix}. \quad (5.57)$$

Obtém-se da equação (5.52) que  $\mathcal{H}_{\mathbf{k}} = Y^\dagger(Q^\dagger\mathcal{H}Q)Y$ , o que implica em

$$\mathcal{H}Q = (Q^{-1})^\dagger\Omega_H. \quad (5.58)$$

Além disso, encontra-se a importante relação

$$g = [X, X^\dagger] = [QY, Y^\dagger Q^\dagger] = Q[Y, Y^\dagger]Q^\dagger = QgQ^\dagger, \quad (5.59)$$

de modo que se pode escrever  $Q^{-1} = gQ^\dagger g^{-1}$ , ou ainda,

$$(Q^{-1})^\dagger = g^{-1}Qg. \quad (5.60)$$

Substituindo a equação (5.60) na equação (5.58), obtém-se finalmente

$$\mathcal{H}Q = (g^{-1}Qg)\Omega_H, \quad (5.61)$$

a qual fornece um conjunto de equações lineares homogêneas.

A equação (5.53) pode ser escrita na forma de matrizes em bloco

$$\mathcal{H} = \hbar \begin{pmatrix} \mathcal{H}_1 & \mathcal{H}_2 \\ \mathcal{H}_2 & \mathcal{H}_1 \end{pmatrix}, \quad (5.62)$$

na qual

$$\mathcal{H}_1 = \begin{pmatrix} A_{\mathbf{k}} & D_{\mathbf{k}} \\ D_{\mathbf{k}} & E_{\mathbf{k}} \end{pmatrix}, \quad (5.63a)$$

$$\mathcal{H}_2 = \begin{pmatrix} C_{\mathbf{k}} & B_{\mathbf{k}} \\ B_{\mathbf{k}} & C_{\mathbf{k}} \end{pmatrix}. \quad (5.63b)$$

Similarmente, tem-se

$$\Omega_H = \hbar \begin{pmatrix} \omega_1 & 0 \\ 0 & \omega_1 \end{pmatrix}, \quad (5.64)$$

para a matriz diagonal com os autovalores

$$\omega_1 = \begin{pmatrix} \omega_{\alpha\mathbf{k}} & 0 \\ 0 & \omega_{\beta\mathbf{k}} \end{pmatrix}. \quad (5.65)$$

Devido à simetria de  $X$  e  $Y$ , pode-se escrever a matriz de transformação  $Q$  como a matriz em bloco

$$Q = \begin{pmatrix} Q_1 & Q_2 \\ Q_2^* & Q_1^* \end{pmatrix}, \quad (5.66)$$

com as matrizes  $2 \times 2$

$$Q_1 = \begin{pmatrix} Q_{11} & Q_{12} \\ Q_{21} & Q_{22} \end{pmatrix}, \quad (5.67a)$$

$$Q_2 = \begin{pmatrix} Q_{13} & Q_{14} \\ Q_{23} & Q_{24} \end{pmatrix}, \quad (5.67b)$$

com os elementos  $Q_{ll'}$  a determinar. Finalmente, pode-se também escrever a matriz em (5.57) como

$$g = \begin{pmatrix} I & 0 \\ 0 & -I \end{pmatrix}, \quad (5.68)$$

para  $I$  a matriz identidade  $2 \times 2$ . Consequentemente, obtêm-se da equação (5.61)

$$\mathcal{H}_1 Q_1 + \mathcal{H}_2 Q_2^* = Q_1 \omega_1, \quad (5.69a)$$

$$\mathcal{H}_1 Q_2^* + \mathcal{H}_2 Q_1 = -Q_2^* \omega_1. \quad (5.69b)$$

As equações (5.69a) e (5.69b) levam à equação secular

$$\det \begin{pmatrix} \mathcal{H}_1 - \omega_{\mu_{\mathbf{k}}} I & \mathcal{H}_2 \\ \mathcal{H}_2 & \mathcal{H}_1 + \omega_{\mu_{\mathbf{k}}} I \end{pmatrix} = 0, \quad (5.70)$$

para  $\mu_{\mathbf{k}} = \alpha_{\mathbf{k}}, \beta_{\mathbf{k}}$ . Supondo que  $\mathcal{H}_2^{-1}$  exista, e após algumas manipulações algébricas, a equação (5.70) torna-se

$$\det \left( I - \mathcal{H}_2^{-1} (\mathcal{H}_1 - \omega_{\mu_{\mathbf{k}}} I) \mathcal{H}_2^{-1} (\mathcal{H}_1 + \omega_{\mu_{\mathbf{k}}} I) \right) = 0. \quad (5.71)$$

Assim, encontra-se

$$\omega_{\mu_{\mathbf{k}}}^4 + \tilde{B}_{\mathbf{k}} \omega_{\mu_{\mathbf{k}}}^2 + \tilde{C}_{\mathbf{k}} = 0, \quad (5.72)$$

com os parâmetros

$$\tilde{B}_{\mathbf{k}} = -A_{\mathbf{k}}^2 + 2B_{\mathbf{k}}^2 + 2C_{\mathbf{k}}^2 - 2D_{\mathbf{k}}^2 - E_{\mathbf{k}}^2, \quad (5.73a)$$

$$\begin{aligned} \tilde{C}_{\mathbf{k}} &= (A_{\mathbf{k}} E_{\mathbf{k}} - D_{\mathbf{k}}^2)^2 + (C_{\mathbf{k}}^2 - B_{\mathbf{k}}^2)^2 - 2B_{\mathbf{k}}^2 (A_{\mathbf{k}} E_{\mathbf{k}} + D_{\mathbf{k}}^2) \\ &\quad - C_{\mathbf{k}}^2 (A_{\mathbf{k}}^2 + 2D_{\mathbf{k}}^2 + E_{\mathbf{k}}^2) + 4(A_{\mathbf{k}} + E_{\mathbf{k}}) B_{\mathbf{k}} C_{\mathbf{k}} D_{\mathbf{k}}. \end{aligned} \quad (5.73b)$$

Ao impor que  $\omega_{\alpha_{\mathbf{k}}}$  e  $\omega_{\beta_{\mathbf{k}}}$  são em geral não-degenerados, obtêm-se da equação (5.72)

$$\omega_{\alpha_{\mathbf{k}}}^2 = -\frac{\tilde{B}_{\mathbf{k}}}{2} + \frac{1}{2} \sqrt{\tilde{B}_{\mathbf{k}}^2 - 4\tilde{C}_{\mathbf{k}}}, \quad (5.74a)$$

$$\omega_{\beta_{\mathbf{k}}}^2 = -\frac{\tilde{B}_{\mathbf{k}}}{2} - \frac{1}{2} \sqrt{\tilde{B}_{\mathbf{k}}^2 - 4\tilde{C}_{\mathbf{k}}}, \quad (5.74b)$$

as quais são válidas tanto para a fase antiferromagnética quanto para a fase *spin-flop*.

Na fase *spin-flop*, tem-se  $\theta = \pi/2$ , de modo que segue das equações (5.49) que

$$A_{\mathbf{k}} = \gamma [H \sin(\tau) + H_E \cos(2\tau) + H_N + 3H_A/8], \quad (5.75a)$$

$$B_{\mathbf{k}} = -\gamma H_E \gamma_{\mathbf{k}} \cos^2(\tau), \quad (5.75b)$$

$$C_{\mathbf{k}} = -9\gamma H_A/8, \quad (5.75c)$$

$$D_{\mathbf{k}} = \gamma H_E \gamma_{\mathbf{k}} \sin^2(\tau), \quad (5.75d)$$

$$E_{\mathbf{k}} = A_{\mathbf{k}}, \quad (5.75e)$$

com  $\tau \approx H/2H_E$ . Desse modo, as soluções (5.74) para a fase *spin-flop* têm a forma

$$\omega_{\alpha_{\mathbf{k}}}^2 = (A_{\mathbf{k}} - D_{\mathbf{k}})^2 - (B_{\mathbf{k}} - C_{\mathbf{k}})^2, \quad (5.76a)$$

$$\omega_{\beta_{\mathbf{k}}}^2 = (A_{\mathbf{k}} + D_{\mathbf{k}})^2 - (B_{\mathbf{k}} + C_{\mathbf{k}})^2, \quad (5.76b)$$

em concordância com a referência [21].

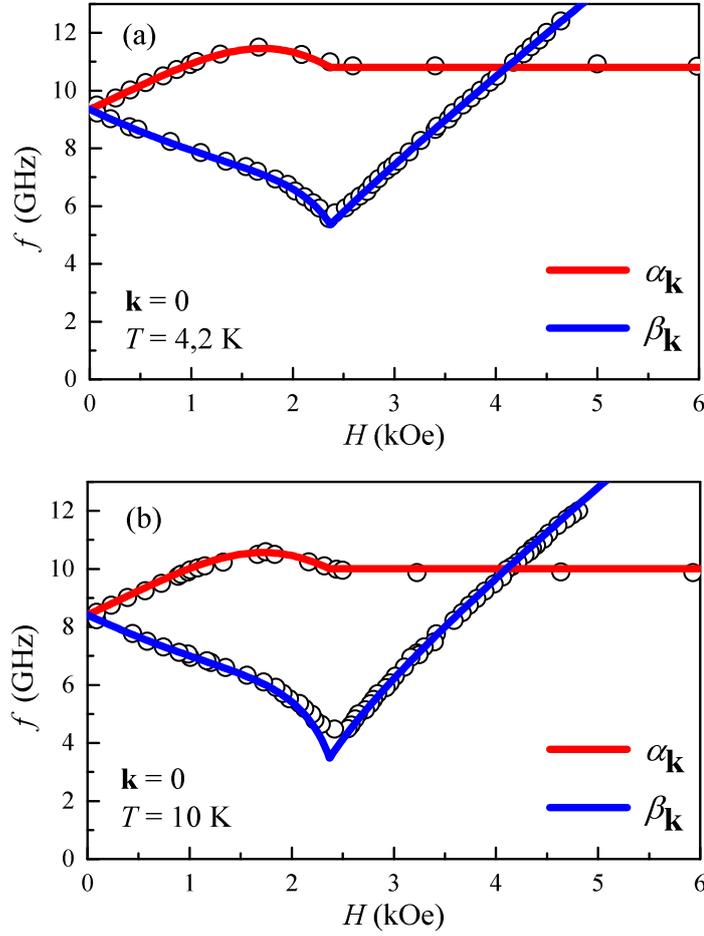
### 5.3.2 Aplicação para o RbMnF<sub>3</sub>

Os modos de mágnons com vetor de onda  $\mathbf{k} = 0$  são tais que todos os spins de uma sub-rede estão na mesma fase de precessão, caracterizando a ressonância antiferromagnética (AFMR). Nessa situação, a equação (5.37) resulta em um fator de estrutura  $\gamma_{\mathbf{k}} = 1$ . Com o uso das equações (5.74), a figura 32 mostra as frequências de AFMR ( $f = \omega_{\mu_{\mathbf{k}}}/2\pi$ ) do RbMnF<sub>3</sub> para (a) 4,2 K e (b) 10 K em função do campo magnético  $H$  aplicado ao longo da direção [001], de modo que  $\tau$  e  $\theta$  são respectivamente dados pelas equações (3.14) e (3.16). Os pontos experimentais foram relatados por Ince na referência [25]. Em concordância com as referências [24, 25], utilizaram-se aqui os valores numéricos  $H_E = 8,16 \times 10^5$  Oe,  $H_A = 4,59$  Oe, e  $H_N = (9,43 \text{ K}/T)$  Oe, com  $T$  dado em K.

À medida que  $T$  aumenta, a variação de  $\omega_{\mu_{\mathbf{k}}}$  com a temperatura não pode ser negligenciada para valores de campo da ordem de alguns kOe. Na realidade, o tratamento realizado neste capítulo considerou apenas os termos de segunda ordem do Hamiltoniano, de tal maneira que os modos coletivos foram tidos como independentes. Isso corresponde a uma boa aproximação para baixas temperaturas, conforme visto na figura 32. No entanto, os mágnons interagem entre si e possuem tempo de vida finito, o que não pode ser desprezado em temperaturas mais altas.

Os efeitos das interações são introduzidos ao considerar termos de ordem superior na expansão (5.10) para a aproximação de Holstein–Primakoff [21, 108, 109, 116, 118]. Dessa forma, os cálculos de relaxação e de renormalização de energia de mágnons para o RbMnF<sub>3</sub> são complicados, visto que a introdução das transformadas de Fourier e das transformações para os operadores de modos normais que foram definidos na equação (5.55) levam a uma

Figura 32 – Frequências de AFMR do antiferromagneto RbMnF<sub>3</sub> com  $H$  aplicado na direção [001] para (a) 4,2 K e (b) 10 K. Os pontos experimentais foram relatados por Ince na referência [25].



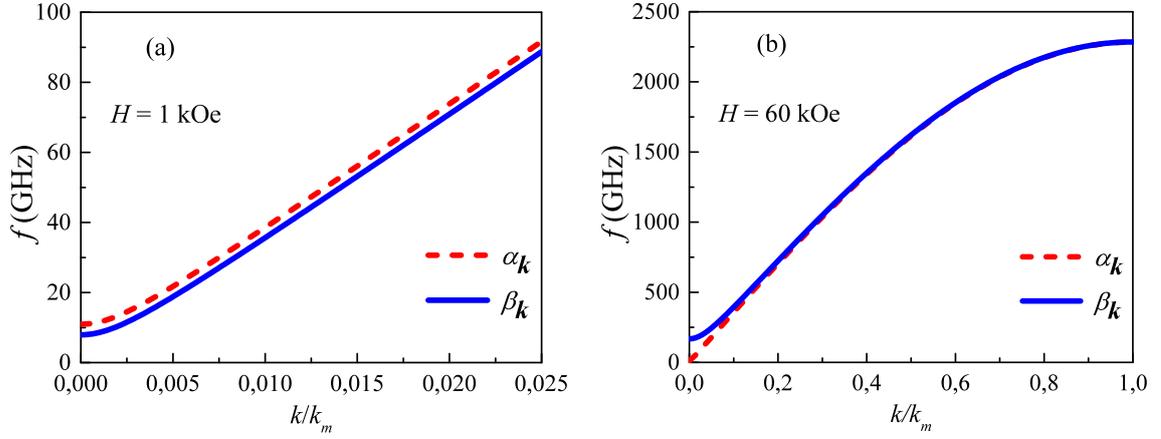
Fonte: o autor, 2025.

elevada quantidade de termos a serem considerados, sendo este então um problema ainda em aberto para  $H \neq 0$  (ver a seção 5.4).

É também interessante observar o comportamento da frequência em função do número de onda  $k = \sqrt{k_x^2 + k_y^2 + k_z^2}$ . Como proposto na referência [118], o fator de estrutura dado na equação (5.37) pode ser aproximado por

$$\gamma_{\mathbf{k}} \approx \cos\left(\frac{\pi k}{2 k_m}\right), \quad (5.77)$$

com  $k_m \approx \pi/a$  o raio máximo do número de onda em uma zona de Brillouin esférica. A figura 33 mostra as frequências de mágnons de RbMnF<sub>3</sub> para 4,2 K em função do número de onda normalizado  $k/k_m$  no caso em que o campo magnético externo é aplicado ao longo da direção [001] para (a)  $H = 1$  kOe e (b)  $H = 60$  kOe, que correspondem respectivamente às fases antiferromagnética e spin-*flop*. Em ambos os casos, os modos tornam-se praticamente indistinguíveis à medida que  $k$  se aproxima de  $k_m$ .

Figura 33 – Frequências de mágnons no antiferromagneto RbMnF<sub>3</sub> para (a)  $H = 1$  kOe e (b)  $H = 60$  kOe ao longo da direção [001] para 4,2 K.


Fonte: o autor, 2025.

Os resultados apresentados neste capítulo estão conforme o tratamento quântico de ondas de spin descrito nas referências [66, 119] para a fase *spin-flop* do RbMnF<sub>3</sub>. Até onde o autor deste trabalho tem conhecimento, esta é a primeira investigação a abordar conjuntamente as fases antiferromagnética e *spin-flop* de materiais com anisotropia cúbica considerando o tratamento quântico de ondas de spin. Além disso, os resultados obtidos aqui são consistentes com os cálculos semiclássicos realizados por Cole e Ince, conforme discutido detalhadamente no capítulo 3 e referenciados em [24, 25].

#### 5.4 RENORMALIZAÇÃO DE ENERGIA DE MÁGNONS NO ANTIFERROMAGNETO RbMnF<sub>3</sub>

O tratamento realizado anteriormente considerou apenas os termos de segunda ordem do Hamiltoniano, de modo que as interações entre mágnons foram desprezadas. As interações são introduzidas por meio dos termos de ordem superior na expansão (5.10) da aproximação de Holstein–Primakoff. Nesta seção serão estudadas as interações de mágnons no antiferromagneto RbMnF<sub>3</sub>, as quais permitem obter os cálculos de renormalização de energia.

##### 5.4.1 Interações entre quatro mágnons

Considerando o segundo termo da expansão em (5.10), tem-se para a primeira sub-rede

$$\hat{S}_i^+ \approx \sqrt{2S} \hat{a}_i - \frac{\sqrt{2S}}{4S} \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i \hat{a}_i, \quad (5.78a)$$

$$\hat{S}_i^- \approx \sqrt{2S} \hat{a}_i^\dagger - \frac{\sqrt{2S}}{4S} \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i, \quad (5.78b)$$

$$\hat{S}_i^z \approx S - \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i, \quad (5.78c)$$

e para a segunda sub-rede encontra-se analogamente

$$\hat{S}_j^+ \approx \sqrt{2S} \hat{b}_j - \frac{\sqrt{2S}}{4S} \hat{b}_j^\dagger \hat{b}_j \hat{b}_j, \quad (5.79a)$$

$$\hat{S}_j^- \approx \sqrt{2S} \hat{b}_j^\dagger - \frac{\sqrt{2S}}{4S} \hat{b}_j^\dagger \hat{b}_j^\dagger \hat{b}_j, \quad (5.79b)$$

$$\hat{S}_j^{z''} \approx S - \hat{b}_j^\dagger \hat{b}_j. \quad (5.79c)$$

Com isso, obtém-se da equação (5.21) o termo de quarta ordem do Hamiltoniano de troca como sendo

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_{\text{exc}}^{(4)} = & - \sum_{i>j} \frac{J_{ij}}{2} \left[ \cos^2(\tau) \left( \hat{a}_i \hat{b}_j^\dagger \hat{b}_j \hat{b}_j + \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i \hat{a}_i \hat{b}_j + \hat{a}_i^\dagger \hat{b}_j^\dagger \hat{b}_j^\dagger \hat{b}_j + \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i \hat{b}_j^\dagger \right) \right. \\ & - \sin^2(\tau) \left( \hat{a}_i \hat{b}_j^\dagger \hat{b}_j^\dagger \hat{b}_j + \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i \hat{a}_i \hat{b}_j^\dagger + \hat{a}_i^\dagger \hat{b}_j^\dagger \hat{b}_j \hat{b}_j + \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i \hat{b}_j \right) \\ & \left. - 4 \cos(2\tau) \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i \hat{b}_j^\dagger \hat{b}_j \right]. \end{aligned} \quad (5.80)$$

Como  $H_E \gg H_A, H_N$  para o RbMnF<sub>3</sub>, as contribuições de ordem não-quadrática das energias de anisotropia e de interação hiperfina podem ser negligenciadas. Pode-se observar da equação (5.20) que a energia de Zeeman também não contribui com termos de quarta ordem.

A renormalização da energia dos mágnons, calculada a partir da equação (5.80), é um processo dificultoso. Isso ocorre porque, ao aplicar as transformadas de Fourier e as transformações para os operadores de modos normais definidos em (5.55), é necessário considerar muitos termos. Entretanto, desprezando os efeitos do campo magnético externo para os termos de quarta ordem, segue de (3.14) que  $\tau = 0$ , de modo a equação (5.80) é simplificada para a forma

$$\hat{\mathcal{H}}_{\text{exc}}^{(4)} = - \sum_{i>j} \frac{J_{ij}}{2} \left( \hat{a}_i \hat{b}_j^\dagger \hat{b}_j \hat{b}_j + \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i \hat{a}_i \hat{b}_j + \hat{a}_i^\dagger \hat{b}_j^\dagger \hat{b}_j^\dagger \hat{b}_j + \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i \hat{b}_j^\dagger - 4 \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i \hat{b}_j^\dagger \hat{b}_j \right), \quad (5.81)$$

o que corresponde aos Hamiltonianos de interação entre quatro mágnons estudados nas referências [108,109,118] ao desprezar as contribuições da energia de anisotropia do material. A aproximação  $\tau \approx 0$  é suficientemente boa para  $H \ll H_E$ , visto que  $\tau \approx \frac{H}{2H_E} \sin(\theta)$  para o antiferromagneto RbMnF<sub>3</sub>.

Na ausência do campo magnético externo,  $H = 0$ , os parâmetros do Hamiltoniano quadrático dado em (5.48) tornam-se simplesmente  $A_{\mathbf{k}} = E_{\mathbf{k}} = \gamma(H_E + H_N + H_A)$ ,  $B_{\mathbf{k}} = -\gamma H_E \gamma_{\mathbf{k}}$  e  $C_{\mathbf{k}} = D_{\mathbf{k}} = 0$ . Nesse caso, as frequências dos dois modos de mágnons são degeneradas e dadas por

$$\omega_{\mathbf{k}} = \gamma \sqrt{H_E^2 (1 - \gamma_{\mathbf{k}}^2) + (H_N + H_A)(2H_E + H_N + H_A)}, \quad (5.82)$$

com a transformação de Bogoliubov

$$\hat{a}_{\mathbf{k}} = u_{\mathbf{k}}\hat{\alpha}_{\mathbf{k}} - v_{\mathbf{k}}\hat{\beta}_{-\mathbf{k}}^{\dagger}, \quad (5.83a)$$

$$\hat{b}_{-\mathbf{k}}^{\dagger} = -v_{\mathbf{k}}\hat{\alpha}_{\mathbf{k}} + u_{\mathbf{k}}\hat{\beta}_{-\mathbf{k}}^{\dagger}, \quad (5.83b)$$

para os coeficientes

$$u_{\mathbf{k}} = \sqrt{\frac{A_{\mathbf{k}} + \omega_{\mathbf{k}}}{2\omega_{\mathbf{k}}}}, \quad (5.84a)$$

$$v_{\mathbf{k}} = \sqrt{\frac{A_{\mathbf{k}} - \omega_{\mathbf{k}}}{2\omega_{\mathbf{k}}}}. \quad (5.84b)$$

Com as transformadas (5.29) no primeiro termo do Hamiltoniano (5.81), obtém-se

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_I^{(4)} &= -\sum_{i>j} \frac{J_{ij}}{2} \hat{a}_i \hat{b}_j^{\dagger} \hat{b}_j \hat{b}_i \\ &= \frac{|J|}{2N^2} \sum_{i,\delta} \left( \sum_{\mathbf{k}_1} e^{i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}_i} \hat{a}_{\mathbf{k}_1} \right) \left( \sum_{\mathbf{k}_2} e^{-i\mathbf{k}_2 \cdot (\mathbf{r}_i + \delta)} \hat{b}_{\mathbf{k}_2}^{\dagger} \right) \left( \sum_{\mathbf{k}_3} e^{i\mathbf{k}_3 \cdot (\mathbf{r}_i + \delta)} \hat{b}_{\mathbf{k}_3} \right) \left( \sum_{\mathbf{k}_4} e^{i\mathbf{k}_4 \cdot (\mathbf{r}_i + \delta)} \hat{b}_{\mathbf{k}_4} \right) \\ &= \frac{z_0 |J|}{2N} \sum_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3, \mathbf{k}_4} \Delta(-\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_4) \gamma_{\mathbf{k}_1} \hat{a}_{\mathbf{k}_1} \hat{b}_{\mathbf{k}_2}^{\dagger} \hat{b}_{\mathbf{k}_3} \hat{b}_{\mathbf{k}_4}, \end{aligned} \quad (5.85)$$

na qual tem-se o fator de estrutura  $\gamma_{\mathbf{k}_1} = \gamma_{-\mathbf{k}_1}$ , e o delta de Kronecker escrito na forma

$$\Delta(-\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_4) = \delta_{-\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_4, 0} = \frac{1}{N} \sum_i e^{-i(-\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_4) \cdot \mathbf{r}_i}. \quad (5.86)$$

Por consequência, apenas os termos de  $\hat{\mathcal{H}}_I^{(4)}$  que obedecem à condição de conservação de momento  $-\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_4 = 0$  não são nulos.

A introdução das transformações (5.83) em (5.85) leva a termos que envolvem combinações dos operadores  $\hat{\alpha}_{\mathbf{k}}$ ,  $\hat{\beta}_{\mathbf{k}}$ ,  $\hat{\alpha}_{\mathbf{k}}^{\dagger}$  e  $\hat{\beta}_{\mathbf{k}}^{\dagger}$ . Todavia, conforme discutido nas referências [109,120], apenas os termos do tipo  $\hat{\alpha}_{\mathbf{k}_1}^{\dagger} \hat{\alpha}_{\mathbf{k}_2}^{\dagger} \hat{\alpha}_{\mathbf{k}_3} \hat{\alpha}_{\mathbf{k}_4}$ ,  $\hat{\beta}_{\mathbf{k}_1}^{\dagger} \hat{\beta}_{\mathbf{k}_2}^{\dagger} \hat{\beta}_{\mathbf{k}_3} \hat{\beta}_{\mathbf{k}_4}$  e  $\hat{\alpha}_{\mathbf{k}_1}^{\dagger} \hat{\beta}_{\mathbf{k}_2}^{\dagger} \hat{\alpha}_{\mathbf{k}_3} \hat{\beta}_{\mathbf{k}_4}$  contribuem para os cálculos de renormalização de energia e de relaxação envolvendo quatro mágnons. Fazendo  $\mathbf{k}_1 \rightarrow -\mathbf{k}_1$  (visto que o somatório varre tanto valores positivos quanto negativos do vetor de onda) e reordenando convenientemente os índices  $\mathbf{k}_1$ ,  $\mathbf{k}_2$ ,  $\mathbf{k}_3$  e  $\mathbf{k}_4$ , segue da equação (5.85) que

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_I^{(4)} &= -\frac{z_0 |J|}{2N} \sum_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3, \mathbf{k}_4} \left[ v_{\mathbf{k}_1} v_{\mathbf{k}_2} u_{\mathbf{k}_3} v_{\mathbf{k}_4} \gamma_{\mathbf{k}_3} \hat{\alpha}_{\mathbf{k}_1}^{\dagger} \hat{\alpha}_{\mathbf{k}_2}^{\dagger} \hat{\alpha}_{\mathbf{k}_3} \hat{\alpha}_{\mathbf{k}_4} + v_{\mathbf{k}_1} u_{\mathbf{k}_2} u_{\mathbf{k}_3} u_{\mathbf{k}_4} \gamma_{\mathbf{k}_1} \hat{\beta}_{\mathbf{k}_1}^{\dagger} \hat{\beta}_{\mathbf{k}_2}^{\dagger} \hat{\beta}_{\mathbf{k}_3} \hat{\beta}_{\mathbf{k}_4} \right. \\ &\quad \left. + 2(v_{\mathbf{k}_1} u_{\mathbf{k}_2} u_{\mathbf{k}_3} u_{\mathbf{k}_4} \gamma_{\mathbf{k}_3} + v_{\mathbf{k}_1} v_{\mathbf{k}_3} v_{\mathbf{k}_3} u_{\mathbf{k}_4} \gamma_{\mathbf{k}_2}) \hat{\alpha}_{\mathbf{k}_1}^{\dagger} \hat{\beta}_{\mathbf{k}_2}^{\dagger} \hat{\alpha}_{\mathbf{k}_3} \hat{\beta}_{\mathbf{k}_4} + \dots \right] \Delta(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_4). \end{aligned} \quad (5.87)$$

Repetindo o procedimento para os demais termos de (5.81), obtém-se

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_{\text{exc}}^{(4)} = \sum_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3, \mathbf{k}_4} & \left( C_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3, \mathbf{k}_4}^{\alpha-\alpha} \hat{a}_{\mathbf{k}_1}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}_2}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}_3} \hat{a}_{\mathbf{k}_4} + C_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3, \mathbf{k}_4}^{\beta-\beta} \hat{\beta}_{\mathbf{k}_1}^\dagger \hat{\beta}_{\mathbf{k}_2}^\dagger \hat{\beta}_{\mathbf{k}_3} \hat{\beta}_{\mathbf{k}_4} \right. \\ & \left. + C_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3, \mathbf{k}_4}^{\alpha-\beta} \hat{a}_{\mathbf{k}_1}^\dagger \hat{\beta}_{\mathbf{k}_2}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}_3} \hat{\beta}_{\mathbf{k}_4} + \dots \right) \Delta(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_4), \end{aligned} \quad (5.88)$$

com os coeficientes (ver referência [109])

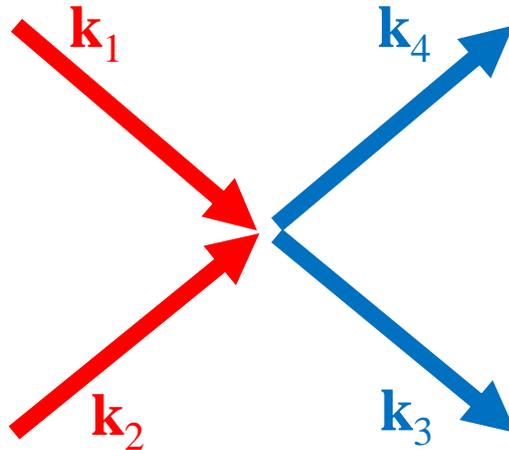
$$C_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3, \mathbf{k}_4}^{\alpha-\alpha} = -\frac{z_0 |J|}{2N} \left[ u_{\mathbf{k}_1} v_{\mathbf{k}_2} v_{\mathbf{k}_3} v_{\mathbf{k}_4} \gamma_{\mathbf{k}_1} + u_{\mathbf{k}_1} v_{\mathbf{k}_2} u_{\mathbf{k}_3} u_{\mathbf{k}_4} \gamma_{\mathbf{k}_2} + v_{\mathbf{k}_1} v_{\mathbf{k}_2} u_{\mathbf{k}_3} u_{\mathbf{k}_4} \gamma_{\mathbf{k}_3} \right. \\ \left. + u_{\mathbf{k}_1} u_{\mathbf{k}_2} u_{\mathbf{k}_3} v_{\mathbf{k}_4} \gamma_{\mathbf{k}_4} - 4u_{\mathbf{k}_1} v_{\mathbf{k}_2} u_{\mathbf{k}_3} v_{\mathbf{k}_4} \gamma_{\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_4} \right], \quad (5.89a)$$

$$C_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3, \mathbf{k}_4}^{\beta-\beta} = -\frac{z_0 |J|}{2N} \left[ v_{\mathbf{k}_1} u_{\mathbf{k}_2} u_{\mathbf{k}_3} u_{\mathbf{k}_4} \gamma_{\mathbf{k}_1} + v_{\mathbf{k}_1} u_{\mathbf{k}_2} v_{\mathbf{k}_3} v_{\mathbf{k}_4} \gamma_{\mathbf{k}_2} + u_{\mathbf{k}_1} u_{\mathbf{k}_2} v_{\mathbf{k}_3} u_{\mathbf{k}_4} \gamma_{\mathbf{k}_3} \right. \\ \left. + v_{\mathbf{k}_1} v_{\mathbf{k}_2} v_{\mathbf{k}_3} u_{\mathbf{k}_4} \gamma_{\mathbf{k}_4} - 4v_{\mathbf{k}_1} u_{\mathbf{k}_2} v_{\mathbf{k}_3} u_{\mathbf{k}_4} \gamma_{\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_4} \right], \quad (5.89b)$$

$$C_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3, \mathbf{k}_4}^{\alpha-\beta} = -\frac{z_0 |J|}{N} \left[ (u_{\mathbf{k}_1} u_{\mathbf{k}_2} v_{\mathbf{k}_3} u_{\mathbf{k}_4} + v_{\mathbf{k}_1} v_{\mathbf{k}_2} u_{\mathbf{k}_3} v_{\mathbf{k}_4}) \gamma_{\mathbf{k}_1} + (u_{\mathbf{k}_1} u_{\mathbf{k}_2} u_{\mathbf{k}_3} v_{\mathbf{k}_4} + v_{\mathbf{k}_1} v_{\mathbf{k}_2} v_{\mathbf{k}_3} u_{\mathbf{k}_4}) \gamma_{\mathbf{k}_2} \right. \\ \left. + (u_{\mathbf{k}_1} v_{\mathbf{k}_2} v_{\mathbf{k}_3} v_{\mathbf{k}_4} + v_{\mathbf{k}_1} u_{\mathbf{k}_2} u_{\mathbf{k}_3} u_{\mathbf{k}_4}) \gamma_{\mathbf{k}_3} + (u_{\mathbf{k}_1} v_{\mathbf{k}_2} u_{\mathbf{k}_3} u_{\mathbf{k}_4} + v_{\mathbf{k}_1} u_{\mathbf{k}_2} v_{\mathbf{k}_3} v_{\mathbf{k}_4}) \gamma_{\mathbf{k}_4} \right. \\ \left. - 2v_{\mathbf{k}_1} u_{\mathbf{k}_2} u_{\mathbf{k}_3} v_{\mathbf{k}_4} \gamma_{\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2} - 2u_{\mathbf{k}_1} v_{\mathbf{k}_2} v_{\mathbf{k}_3} u_{\mathbf{k}_4} \gamma_{\mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_4} \right. \\ \left. - 2v_{\mathbf{k}_1} v_{\mathbf{k}_2} v_{\mathbf{k}_3} v_{\mathbf{k}_4} \gamma_{\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_3} - 2u_{\mathbf{k}_1} u_{\mathbf{k}_2} u_{\mathbf{k}_3} u_{\mathbf{k}_4} \gamma_{\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_4} \right]. \quad (5.89c)$$

Um processo direto do tipo  $\hat{a}_{\mathbf{k}_1} \hat{a}_{\mathbf{k}_2} \hat{a}_{\mathbf{k}_3}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}_4}^\dagger$ , por exemplo, corresponde à destruição de dois mágnons com vetores de onda  $\mathbf{k}_1$  e  $\mathbf{k}_2$  no modo  $\alpha$  e a criação de dois novos mágnons com vetores de onda  $\mathbf{k}_3$  e  $\mathbf{k}_4$  também no modo  $\alpha$  (ver figura 34).

Figura 34 – Representação de um processo direto da interação entre quatro mágnons.



## 5.4.2 Renormalização de energia de mágnons

As correções da energia devidas aos termos de quarta ordem em diante do Hamiltoniano recebem o nome de renormalização de energia de mágnons, a qual permite introduzir os efeitos da temperatura na relação de dispersão do material. Isso é feito por meio da chamada aproximação de fase aleatória [21, 121–123], em que um par de operadores de mágnons é substituído por sua média térmica em cada um dos termos do Hamiltoniano em (5.88). Ao considerar todos os possíveis pares, segue que

$$\begin{aligned}
 \hat{\mathcal{H}}^{\alpha-\alpha} &= \sum_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3, \mathbf{k}_4} C_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3, \mathbf{k}_4}^{\alpha-\alpha} \hat{a}_{\mathbf{k}_1}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}_2}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}_3} \hat{a}_{\mathbf{k}_4} \Delta(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_4) \\
 &\rightarrow \sum_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3, \mathbf{k}_4} C_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3, \mathbf{k}_4}^{\alpha-\alpha} \left( \langle \hat{a}_{\mathbf{k}_1}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}_3} \rangle \hat{a}_{\mathbf{k}_2}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}_4} \delta_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_3} \delta_{\mathbf{k}_2, \mathbf{k}_4} + \langle \hat{a}_{\mathbf{k}_1}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}_4} \rangle \hat{a}_{\mathbf{k}_2}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}_3} \delta_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_4} \delta_{\mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3} \right. \\
 &\quad \left. + \hat{a}_{\mathbf{k}_1}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}_3} \langle \hat{a}_{\mathbf{k}_2}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}_4} \rangle \delta_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_3} \delta_{\mathbf{k}_2, \mathbf{k}_4} + \hat{a}_{\mathbf{k}_1}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}_4} \langle \hat{a}_{\mathbf{k}_2}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}_3} \rangle \delta_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_4} \delta_{\mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3} \right) \\
 &= \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} C_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'}^{\alpha-\alpha} \bar{n}_{\alpha_{\mathbf{k}'}} \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}},
 \end{aligned} \tag{5.90}$$

com a distribuição de Bose-Einstein  $\bar{n}_{\alpha_{\mathbf{k}}} = \langle \hat{\alpha}_{\mathbf{k}} \hat{\alpha}_{\mathbf{k}} \rangle = 1/(e^{\hbar\omega_{\alpha_{\mathbf{k}}}/k_B T} - 1)$  e o coeficiente

$$\begin{aligned}
 C_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'}^{\alpha-\alpha} &= C_{\mathbf{k}', \mathbf{k}, \mathbf{k}, \mathbf{k}'}^{\alpha-\alpha} + C_{\mathbf{k}', \mathbf{k}, \mathbf{k}, \mathbf{k}'}^{\alpha-\alpha} + C_{\mathbf{k}, \mathbf{k}', \mathbf{k}, \mathbf{k}'}^{\alpha-\alpha} + C_{\mathbf{k}, \mathbf{k}', \mathbf{k}, \mathbf{k}'}^{\alpha-\alpha} \\
 &= -\frac{2z_0|J|}{N} \left[ u_{\mathbf{k}'} v_{\mathbf{k}'} (u_{\mathbf{k}}^2 + v_{\mathbf{k}}^2) \gamma_{\mathbf{k}'} + u_{\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}} (u_{\mathbf{k}'}^2 + v_{\mathbf{k}'}^2) \gamma_{\mathbf{k}} - u_{\mathbf{k}'}^2 v_{\mathbf{k}}^2 - u_{\mathbf{k}}^2 v_{\mathbf{k}'}^2 \right. \\
 &\quad \left. - 2u_{\mathbf{k}'} v_{\mathbf{k}'} u_{\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}} \gamma_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} \right].
 \end{aligned} \tag{5.91}$$

Do mesmo modo,

$$\begin{aligned}
 \hat{\mathcal{H}}^{\alpha-\beta} &= \sum_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3, \mathbf{k}_4} C_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3, \mathbf{k}_4}^{\alpha-\beta} \hat{a}_{\mathbf{k}_1}^\dagger \hat{\beta}_{\mathbf{k}_2}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}_3} \hat{\beta}_{\mathbf{k}_4} \Delta(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_4) \\
 &\rightarrow \sum_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3, \mathbf{k}_4} C_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3, \mathbf{k}_4}^{\alpha-\beta} \left( \hat{a}_{\mathbf{k}_1}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}_3} \langle \hat{\beta}_{\mathbf{k}_2}^\dagger \hat{\beta}_{\mathbf{k}_4} \rangle \delta_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_3} \delta_{\mathbf{k}_2, \mathbf{k}_4} + \langle \hat{a}_{\mathbf{k}_1}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}_3} \rangle \hat{\beta}_{\mathbf{k}_2}^\dagger \hat{\beta}_{\mathbf{k}_4} \delta_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_3} \delta_{\mathbf{k}_2, \mathbf{k}_4} \right) \\
 &= \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} C_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'}^{\alpha-\beta} \left( \bar{n}_{\beta_{\mathbf{k}'}} \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} + \bar{n}_{\alpha_{\mathbf{k}'}} \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} \right),
 \end{aligned} \tag{5.92}$$

com o coeficiente

$$\begin{aligned}
 C_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'}^{\alpha-\beta} &= -\frac{2z_0|J|}{N} \left[ u_{\mathbf{k}'} v_{\mathbf{k}'} (u_{\mathbf{k}}^2 + v_{\mathbf{k}}^2) \gamma_{\mathbf{k}'} + u_{\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}} (u_{\mathbf{k}'}^2 + v_{\mathbf{k}'}^2) \gamma_{\mathbf{k}} - u_{\mathbf{k}'}^2 u_{\mathbf{k}}^2 - v_{\mathbf{k}}^2 v_{\mathbf{k}'}^2 \right. \\
 &\quad \left. - 2u_{\mathbf{k}'} v_{\mathbf{k}'} u_{\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}} \gamma_{\mathbf{k}+\mathbf{k}'} \right].
 \end{aligned} \tag{5.93}$$

O termo com  $\beta - \beta$  é obtido de (5.90) ao simplesmente fazer a substituição de  $\alpha$  por  $\beta$ .

Conseqüentemente, o Hamiltoniano com os termos de quarta ordem na equação (5.87) toma a forma diagonalizada

$$\hat{\mathcal{H}}_{\text{exc}}^{(4)} = \hbar \sum_{\mathbf{k}} \left( \Delta\omega_{\alpha_{\mathbf{k}}} \hat{\alpha}_{\mathbf{k}}^{\dagger} \hat{\alpha}_{\mathbf{k}} + \Delta\omega_{\beta_{\mathbf{k}}} \hat{\beta}_{\mathbf{k}}^{\dagger} \hat{\beta}_{\mathbf{k}} \right), \quad (5.94)$$

com as correções para a frequência

$$\Delta\omega_{\alpha_{\mathbf{k}}} = \frac{1}{\hbar} \sum_{\mathbf{k}'} (C_{\mathbf{k},\mathbf{k}'}^{\alpha-\alpha} \bar{n}_{\alpha_{\mathbf{k}'}} + C_{\mathbf{k},\mathbf{k}'}^{\alpha-\beta} \bar{n}_{\beta_{\mathbf{k}'}}), \quad (5.95a)$$

$$\Delta\omega_{\beta_{\mathbf{k}}} = \frac{1}{\hbar} \sum_{\mathbf{k}'} (C_{\mathbf{k},\mathbf{k}'}^{\beta-\beta} \bar{n}_{\beta_{\mathbf{k}'}} + C_{\mathbf{k},\mathbf{k}'}^{\alpha-\beta} \bar{n}_{\alpha_{\mathbf{k}'}}). \quad (5.95b)$$

Fazendo a substituição  $\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}'} \rightarrow \frac{a^3}{(2\pi)^3} \int_0^1 d^3\mathbf{k}'$  e novamente introduzindo  $q = k/k_m$ , com  $k_m = \pi/a$ , segue em coordenadas esféricas que  $\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}'} \rightarrow \frac{\pi}{2} \int dq' q'^2$ . Assim, com a aproximação  $\gamma_{\mathbf{k}\pm\mathbf{k}'} \approx \gamma_{\mathbf{k}}\gamma_{\mathbf{k}'}$ , encontra-se

$$\Delta\omega_{\alpha_{\mathbf{k}}} = -\gamma H_E \left[ (u_q^2 + v_q^2 - 2u_q v_q \gamma_q) \mathcal{C}_q + (u_q v_q \gamma_q - v_q^2) \mathcal{E}_q + (u_q v_q \gamma_q - u_q^2) \mathcal{F}_q \right], \quad (5.96)$$

na qual têm-se as integrais

$$\mathcal{C}_q = \frac{\pi}{2S} \int_0^1 dq' q'^2 u_{q'} v_{q'} \gamma_{q'} (\bar{n}_{\alpha_{q'}} + \bar{n}_{\beta_{q'}}), \quad (5.97a)$$

$$\mathcal{E}_q = \frac{\pi}{2S} \int_0^1 dq' q'^2 (u_{q'}^2 \bar{n}_{\alpha_{q'}} + v_{q'}^2 \bar{n}_{\beta_{q'}}), \quad (5.97b)$$

$$\mathcal{F}_q = \frac{\pi}{2S} \int_0^1 dq' q'^2 (v_{q'}^2 \bar{n}_{\alpha_{q'}} + u_{q'}^2 \bar{n}_{\beta_{q'}}). \quad (5.97c)$$

A correção  $\Delta\omega_{\beta_{\mathbf{k}}}$  é obtida da equação (5.96) ao fazer a troca  $\alpha \leftrightarrow \beta$  [21, 124].

Como os dois modos de mágnons são degenerados para o RbMnF<sub>3</sub> na ausência de campo magnético externo, tem-se  $\omega_{\alpha_{\mathbf{k}}} = \omega_{\beta_{\mathbf{k}}} = \omega_{\mathbf{k}}$ , e, portanto,  $\bar{n}_{\alpha_{\mathbf{k}}} = \bar{n}_{\beta_{\mathbf{k}}} = \bar{n}_{\mathbf{k}}$ . Com isso, a equação (5.96) reduz-se a

$$\Delta\omega_q = \gamma H_E \left( 2u_q v_q \gamma_q - u_q^2 - v_q^2 \right) \mathcal{G}_q, \quad (5.98)$$

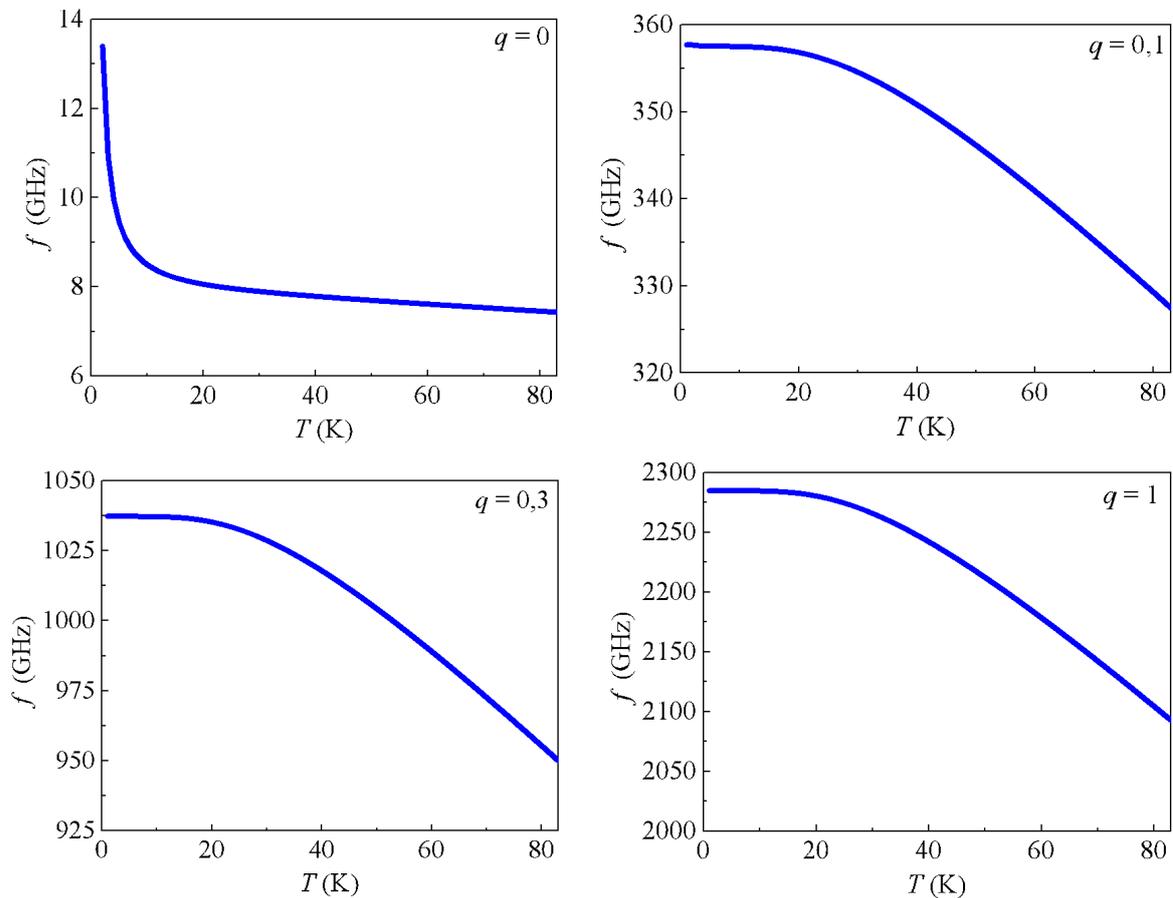
com a integral dada por

$$\mathcal{G}_q = \frac{\pi}{2S} \int_0^1 dq' q'^2 (2u_{q'} v_{q'} \gamma_{q'} - u_{q'}^2 - v_{q'}^2) \bar{n}_{q'}. \quad (5.99)$$

Por conseguinte, as frequências de mágnons corrigidas são, então, dadas por  $\omega_q - \Delta\omega_q$ , e podem ser calculadas numericamente fixando-se a temperatura  $T$  ou o vetor de onda normalizado  $q$ .

As frequências de mágnons renormalizadas foram calculadas com o uso da equação (5.98) ao resolver numericamente a integral  $\mathcal{G}_q$  com a regra de Simpson, dividindo o intervalo de integração em  $q$  em 50 partes utilizando o *software* Maple. A figura 35 mostra as frequências de mágnons renormalizadas em função da temperatura para o antiferromagneto RbMnF<sub>3</sub> para os correspondentes valores de  $q$ , quando não há campo magnético externo aplicado. Como esperado, as frequências decaem com a temperatura até  $T_N \approx 82,6$  K, para a qual os cálculos para as fases ordenadas são válidos. Em especial, para a ressonância antiferromagnética ( $q = 0$ ), a notória queda abrupta da frequência com a temperatura é principalmente devida ao campo efetivo da interação hiperfina,  $H_N = (9,43 \text{ K}/T) \text{ Oe}$ .

Figura 35 – Cálculos numéricos das frequências de mágnons renormalizadas em função da temperatura para o antiferromagneto RbMnF<sub>3</sub> para os correspondentes valores de  $q$ , na ausência de campo magnético externo.

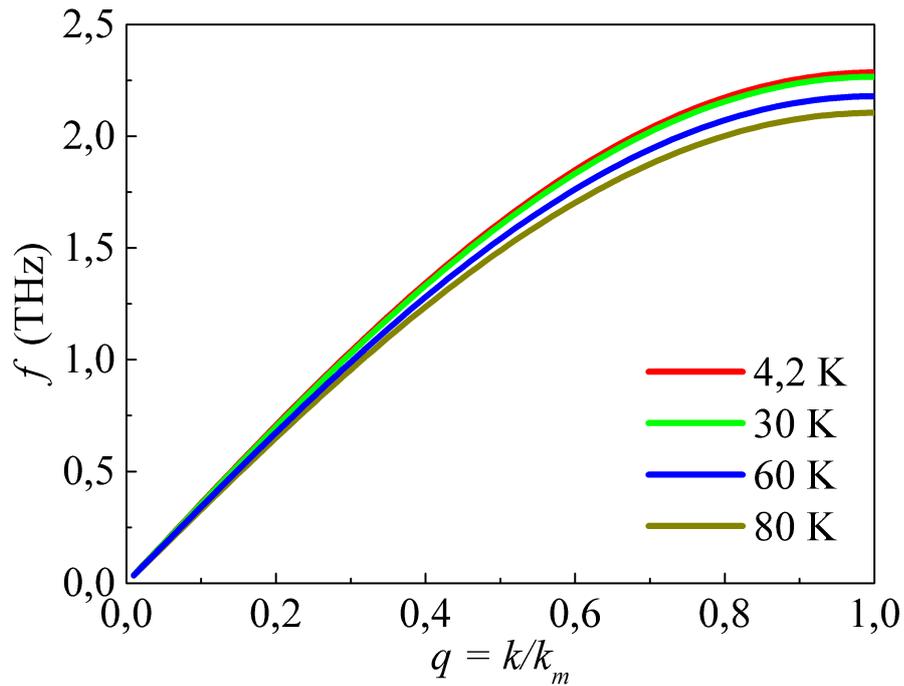


Fonte: o autor, 2025.

Similarmente, a figura 36 mostra as frequências de mágnons renormalizadas em função de  $q$  para certos valores de  $T$  mantidos fixos. Como pode-se observar, as frequências aumentam quase indistinguívelmente com  $q = k/k_m$  até praticamente saturarem em  $q = 1$ , onde os efeitos da temperatura tornam-se importantes. Embora os resultados apresentados nesta seção sejam válidos apenas para o caso especial em que não há campo magnético

externo aplicado, eles fornecem importantes informações sobre as características deste antiferromagneto. Uma investigação geral sobre renormalização de energia de mágnons que inclua o campo magnético externo em antiferromagnetos de rede cúbica é um problema não-trivial ainda em aberto que está como perspectiva para futuros trabalhos.

Figura 36 – Cálculos numéricos das frequências de mágnons renormalizadas em função de  $q = k/k_m$  para o antiferromagneto RbMnF<sub>3</sub> para os correspondentes valores de temperatura, na ausência de campo magnético externo.



Fonte: o autor, 2025.

## 6 EFEITO SEEBECK DE SPIN NO ANTIFERROMAGNETO $\text{RbMnF}_3$

Neste capítulo, serão discutidos os resultados experimentais e teóricos acerca do efeito Seebeck de spin no antiferromagneto de Heisenberg  $\text{RbMnF}_3$ . Os experimentos foram realizados com filmes finos de Pt depositados sobre amostras de  $\text{RbMnF}_3$  para os valores de temperatura de 5 até 300 K e com campo magnético externo de até 80 kOe. Na seção 6.1 será apresentado um breve histórico da descoberta de tal fenômeno e de sua importância para a spintrônica. Em seguida, os detalhes experimentais serão mostrados na seção 6.2 e os resultados experimentais serão discutidos na seção 6.3. Por fim, na seção 6.4 encontram-se os resultados obtidos por meio da teoria de difusão de mágnons para o efeito Seebeck de spin na fase *spin-flop* do  $\text{RbMnF}_3$ .

### 6.1 EFEITO SEEBECK DE SPIN

A descoberta do efeito Seebeck de spin (SSE, em inglês *spin Seebeck effect*) foi relatada no ano de 2008 por Uchida *et al.* na referência [12] e deu origem a uma nova sub-área da spintrônica, a qual ficou conhecida como caloritrônica de spin [125–128]. O SSE é um análogo magnético do efeito Seebeck termoelétrico que consiste na produção de uma corrente de spin em materiais ferromagnéticos, ferrimagnéticos ou antiferromagnéticos por um gradiente de temperatura [12, 129, 130]. Desde sua descoberta, vários esforços da comunidade científica foram direcionados para o entendimento desse fenômeno em diferentes materiais [131–137].

Os primeiros experimentos sobre esse efeito foram realizados com um gradiente de temperatura aplicado ao longo de filmes finos de *permalloy* (Py, um ferromagneto) [12] e da granada de ferro e ítrio (YIG, um ferrimagneto isolante) [129], na chamada configuração transversal. Em ambos os casos, o efeito foi detectado por sinais de tensão elétrica medidos em filmes finos de platina (Pt) depositados sobre o material magnético devido à conversão da corrente de spin em corrente de carga pelo efeito Hall de spin inverso (ISHE, em inglês *inverse spin Hall effect*) [11, 43, 46, 70, 73].

Em 2010, Uchida *et al.* também relataram a observação do SSE com o gradiente de temperatura aplicado perpendicularmente ao plano de um filme de YIG em contato com um filme fino de Pt [138]. Isso produz uma corrente de spin na mesma direção do gradiente de temperatura e, por esse motivo, o fenômeno foi chamado de efeito Seebeck de spin longitudinal (LSSE). Nesse caso, a corrente de spin flui até a camada de Pt, na qual é convertida em uma corrente de carga pelo ISHE e é detectada pela tensão elétrica correspondente [125, 138]. Atualmente, a configuração longitudinal é tida como a forma padrão para estudos sobre o efeito Seebeck de spin [130, 139].

Depois dos estudos iniciais de SSE em materiais ferromagnéticos e ferrimagnéticos, parte da investigação desse efeito voltou-se para materiais antiferromagnéticos isolantes, dos

quais podem-se destacar os experimentos realizados com o FeF<sub>2</sub>, o MnF<sub>2</sub> e o NiO [140–144]. Nesse contexto, serão relatadas neste capítulo medidas associadas ao LSSE em amostras *bulk* do material antiferromagnético RbMnF<sub>3</sub> (sobre as quais foram depositados filmes finos de Pt) para os valores de temperatura de 5 até 300 K e de campo magnético de –80 kOe até 80 kOe. Como o campo de *spin-flop* do RbMnF<sub>3</sub> é aproximadamente de apenas 2,37 kOe, as mediadas foram basicamente realizadas nas fases *spin-flop* e paramagnética de tal material.

## 6.2 DETALHES EXPERIMENTAIS

Os experimentos foram realizados com duas amostras de RbMnF<sub>3</sub> na forma de paralelepípedo com espessura de aproximadamente 1 mm, que foram obtidas por meio da clivagem de um prisma retangular de dimensões aproximadas de  $3 \times 4 \times 7 \text{ mm}^3$  com todas as faces em planos  $\langle 100 \rangle$ , o qual foi cortado de um monocristal de RbMnF<sub>3</sub> crescido pelo método de Czochralski. A amostra rotulada<sup>1</sup> pela letra “B” tinha o comprimento de 7,1 mm, largura de 3,0 mm e espessura de 1,0 mm, enquanto a amostra “R” tinha comprimento de 4,5 mm, largura de 3,0 mm e espessura de 1,0 mm, ambas com as faces ao longo das direções cristalográficas  $\langle 100 \rangle$ . Com o método de vaporização catódica (*sputtering*), depositou-se em cada uma das amostras um filme fino de Pt com 1,2 mm de largura e 10 nm de espessura, sendo este depositado na superfície clivada do monocristal e ao longo da maior dimensão da amostra.

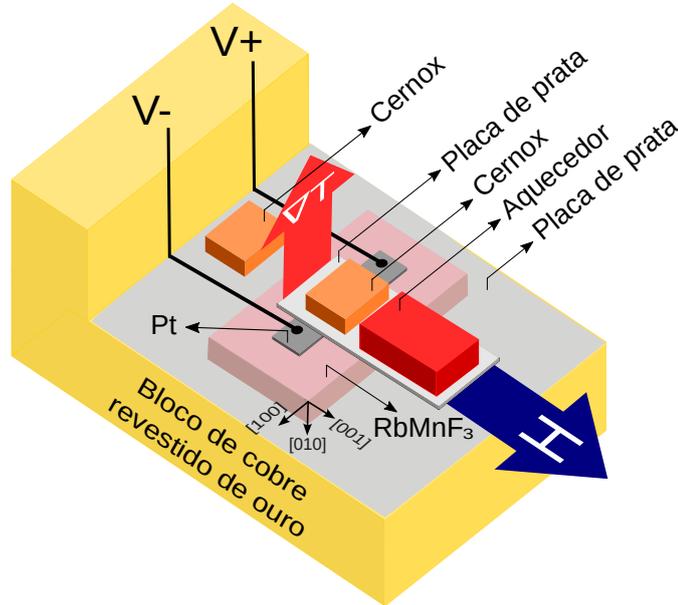
As medidas foram feitas com o equipamento Physical Property Measurement System (PPMS), da empresa Quantum Design, utilizando o seu módulo de resistividade. A figura 37 mostra um esboço da montagem<sup>2</sup> da amostra utilizada para a aplicação do gradiente de temperatura na configuração longitudinal, o que possibilitou medir a tensão elétrica no filme de Pt. Um extensômetro (*strain gauge*) de resistência 348,6  $\Omega$  foi montado em uma placa de prata e usado para aquecer a face em que o filme de metálico foi depositado, enquanto o lado inferior da amostra de RbMnF<sub>3</sub> foi colado a um bloco de cobre revestido de ouro, a fim de obter uma melhor termalização.

Dois termômetros do tipo Cernox (modelo CX-1050-SD-HT) da empresa Lake Shore foram usados para medir as temperaturas nos dois lados da amostra, um fixado próximo ao aquecedor e outro fixado no bloco de cobre revestido de ouro. O procedimento de calibração dos termômetros é apresentado no apêndice A. Todos os itens foram então cuidadosamente colados por meio de uma fina camada de verniz GE (*GE varnish*) diluído em etanol. Para medir a tensão elétrica  $V_{\text{SSE}}$  produzida pelo efeito Seebeck de spin, dois

<sup>1</sup>Optou-se por manter a mesma rotulagem utilizada em [145], no qual “B” e “R” vêm de *blue* e *red*, respectivamente.

<sup>2</sup>O autor é grato a P. R. T. Ribeiro pelas importantes contribuições na montagem experimental para o efeito Seebeck de spin no PPMS.

Figura 37 – Ilustração da montagem para medidas do efeito Seebeck de spin para as amostras de  $\text{RbMnF}_3/\text{Pt}$  presas no bloco de cobre revestido de ouro juntamente com o aquecedor e os dois termômetros Cernox. O campo magnético externo  $H$  foi aplicado ao longo da direção  $[001]$ , enquanto o gradiente de temperatura está perpendicular ao plano do filme fino de Pt.



Fonte: o autor, 2025.

contatos elétricos foram feitos nas extremidades do filme de Pt usando fios de cobre e tinta de prata.

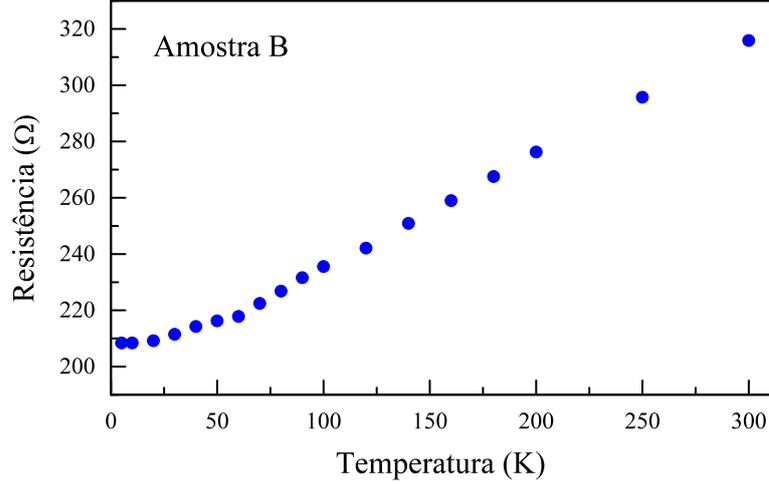
O campo magnético externo  $H$  foi aplicado ao longo da direção cristalográfica  $[001]$ , transversalmente à direção de maior dimensão do filme de Pt. Para uma determinada temperatura da base de cobre mantida fixa, o campo magnético foi varrido de  $-80$  kOe até  $+80$  kOe com passo de  $2,5$  kOe para  $5 \text{ kOe} \leq |H| \leq 80 \text{ kOe}$  e de  $0,25$  kOe para  $|H| < 5 \text{ kOe}$ . A temperatura da câmara do PPMS foi estabilizada dentro de uma margem de  $\pm 0,01$  K e variada de  $5$  até  $300$  K. Uma fonte externa de tensão DC foi usada para alimentar o aquecedor, e conseqüentemente, aquecer a placa de prata, de modo a definir uma diferença de temperatura  $\Delta T_{\text{set}}$  entre a placa de prata e o bloco de cobre.

A diferença de temperatura foi então determinada ao medir as temperaturas  $T_s$  na placa de prata (próxima ao aquecedor) e  $T_{cb}$  no bloco de cobre, de forma que  $\Delta T_{\text{set}} = T_s - T_{cb}$ . Como será discutido mais adiante, a diferença de temperatura real,  $\Delta T$ , na amostra de  $\text{RbMnF}_3$  é menor do que a diferença de temperatura medida pelos dois termômetros,  $\Delta T_{\text{set}}$ , porque as camadas de verniz GE usadas para colar a amostra na placa de prata e no bloco de cobre têm resistências térmicas que não podem ser negligenciadas, especialmente em baixas temperaturas.

A figura 38 mostra a variação da resistência  $R_{\text{Pt}}$  do filme de Pt na amostra B em função da temperatura  $T$  da câmara do PPMS, o que permite calcular a corrente do SSE na respectiva amostra como  $I_{\text{SSE}} = V_{\text{SSE}}/R_{\text{Pt}}$ . Além disso, foi subtraída uma função simétrica em torno de  $H = 0$  para obter a contribuição antissimétrica  $V_{\text{SSE}}(-H) = -V_{\text{SSE}}(H)$  a

partir dos dados obtidos de tensão em função do campo magnético, a qual é produzida pelo efeito Seebeck de spin. A componente simétrica é atribuída ao efeito Nernst planar no filme de Pt devido ao gradiente de temperatura residual no plano, conforme discutido nas referências [143, 144, 146].

Figura 38 – Variação da resistência do filme fino de Pt na amostra B em função da temperatura.



Fonte: o autor, 2025.

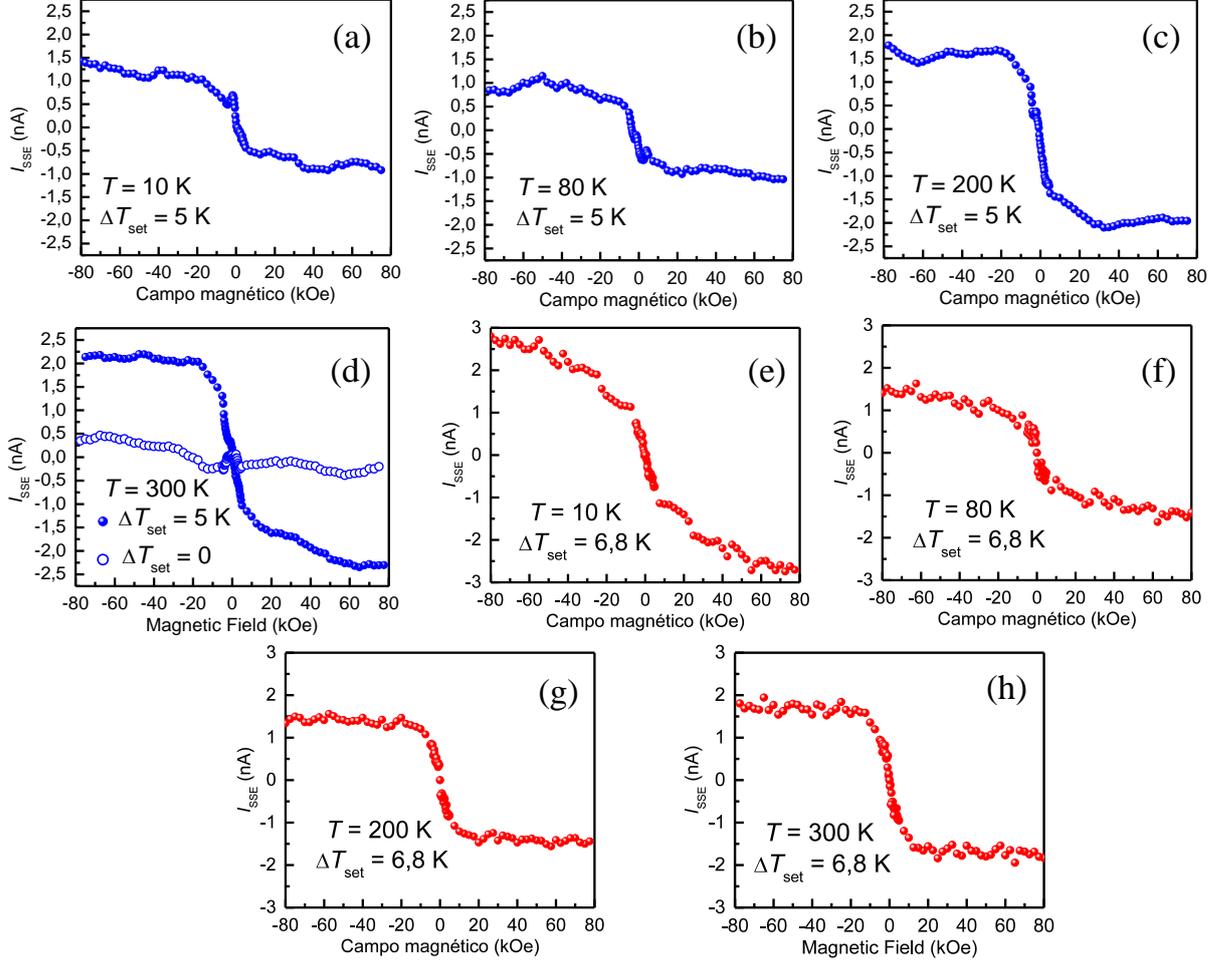
### 6.3 RESULTADOS EXPERIMENTAIS

A aplicação de um gradiente de temperatura  $\nabla T$  em um antiferromagneto isolante produz uma densidade de corrente de spin dada por  $\mathbf{J}_S$  que é diretamente proporcional a  $\nabla T$ . A densidade de corrente de spin  $\mathbf{J}_S$  flui para a camada de Pt e é então convertida em uma corrente de carga devido ao ISHE com uma densidade de corrente de carga dada por  $\mathbf{J}_C = \frac{2e}{\hbar} \theta_{SH} (\mathbf{J}_S \times \hat{\sigma})$ , em que  $\theta_{SH}$  é o ângulo Hall de spin e  $\hat{\sigma}$  é o versor que aponta na direção da polarização de spin [21, 134]. À medida que o campo magnético é varrido e inverte a sua direção em  $H = 0$ , o sinal de  $\hat{\sigma}$  muda, causando uma inversão da polaridade da tensão elétrica medida no filme de Pt.

A figura 39 apresenta a dependência da corrente do efeito Seebeck de spin,  $I_{SSE}$ , em função do campo magnético para as duas amostras de RbMnF<sub>3</sub>/Pt em várias temperaturas e sob uma diferença de temperatura  $\Delta T_{set}$  mantida fixa. Todos os dados exibem um comportamento de degrau, o qual é característico do SSE. Os dados da figura 39 mostram claramente que as medidas nas duas amostras são consistentes entre si. Um resultado notável é o fato de que a magnitude da corrente do SSE da fase paramagnética (que ocorre para  $T > T_N$ ) é comparável com a da fase ordenada com a configuração spin-*flop* (que ocorre para  $T < T_N$  e  $H \geq H_{SF}$ ).

Similarmente ao que foi apontado na referência [147] para tricamadas de Pt/YIG/Pt, a diferença de temperatura real  $\Delta T$  na amostra de RbMnF<sub>3</sub> é menor do que a diferença de

Figura 39 – Variação da corrente do efeito Seebeck de spin no filme fino de Pt em função do campo magnético  $H$  para as duas amostras de RbMnF<sub>3</sub>/Pt com vários valores da temperatura do bloco de cobre, conforme indicado. Nos gráficos (a)–(d) têm-se as medidas na amostra B com diferença de temperatura definida  $\Delta T_{\text{set}} = 5,0$  K. Do mesmo modo, nos gráficos (e)–(h) estão as medidas na amostra R com  $\Delta T_{\text{set}} = 6,8$  K.



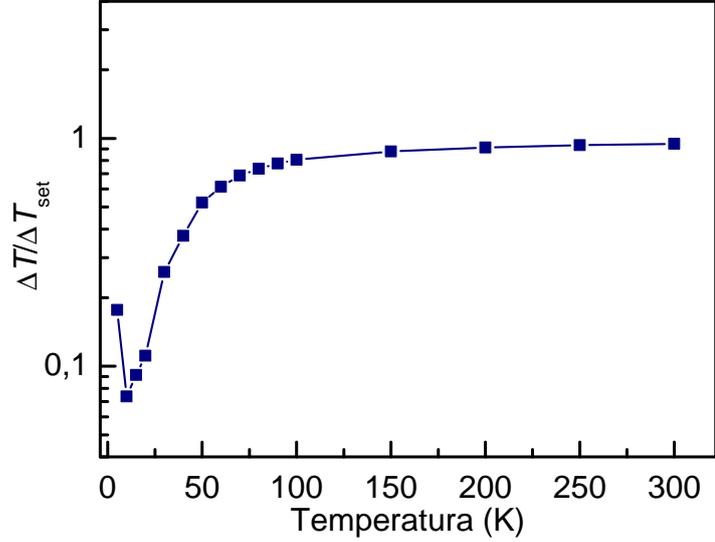
Fonte: o autor, 2025.

temperatura  $\Delta T_{\text{set}}$  medida pelos dois termômetros, devido à diminuição da temperatura nas duas camadas de verniz GE. A figura 40 mostra a relação  $\Delta T/\Delta T_{\text{set}}$  calculada usando a dependência da temperatura da condutividade térmica do RbMnF<sub>3</sub> relatada na referência [148] e os dados do verniz GE fornecidos pelo fabricante. Surpreendentemente, apesar de a espessura de cada camada de verniz ser aproximadamente de apenas 4  $\mu\text{m}$  (em comparação com 1 mm da amostra), o fato de a condutividade térmica do antiferromagneto RbMnF<sub>3</sub> aumentar acentuadamente em baixas temperaturas resulta na grande diminuição da razão  $\Delta T/\Delta T_{\text{set}}$  mostrada na figura 40.

Diversas quantidades são usadas na literatura para quantificar o SSE, permitindo comparar o efeito em diferentes amostras. Uma delas é a “termopotência” [147], que é definida por

$$\text{TP}_{\text{SSE}} = \frac{V_{\text{SSE}}}{l \nabla T}, \quad (6.1)$$

Figura 40 – Variação com a temperatura da razão  $\Delta T/\Delta T_{\text{set}}$  calculada usando os dados das condutividades térmicas do RbMnF<sub>3</sub> e do verniz GE.



Fonte: o autor, 2025.

na qual  $l$  é a distância entre os contatos usados para medir a tensão no filme de Pt, e  $\nabla T \approx \Delta T/t$ , com  $t$  a espessura total da amostra de RbMnF<sub>3</sub>/Pt. Uma quantidade alternativa é o coeficiente do efeito Seebeck de spin

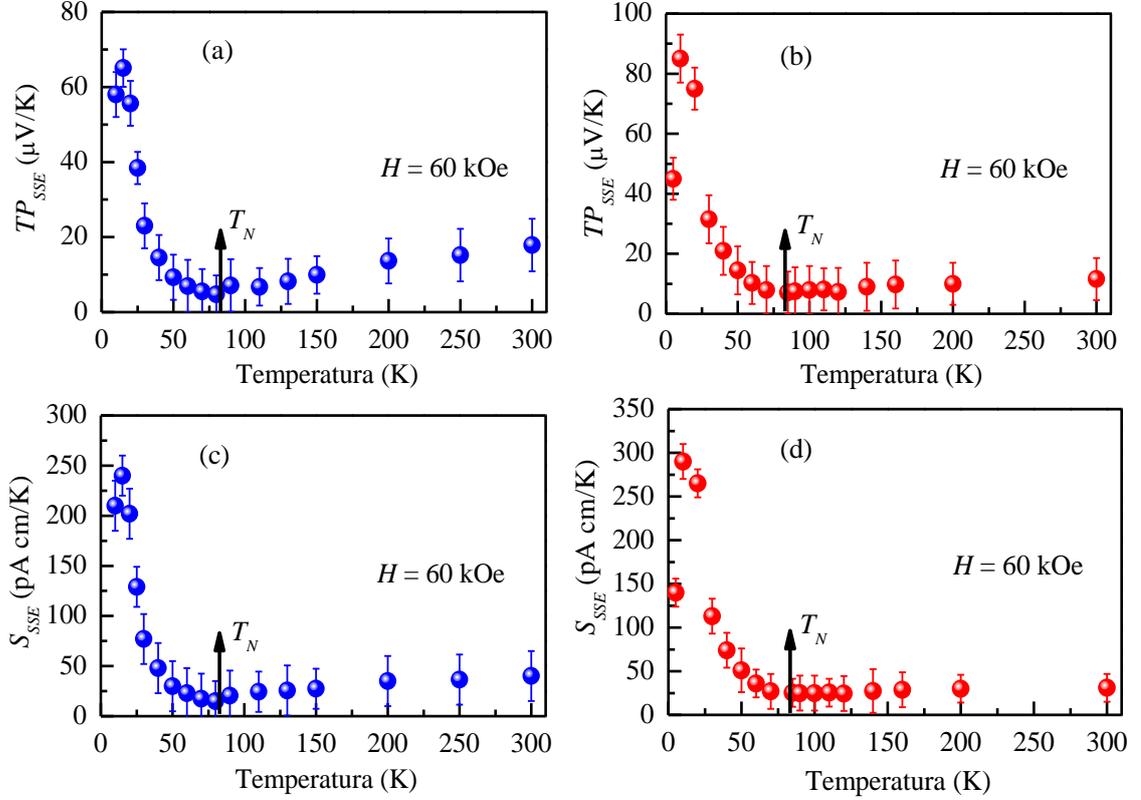
$$S_{\text{SSE}} = \frac{I_{\text{SSE}}}{\nabla T} = \frac{l}{R_{\text{Pt}}} \text{TP}_{\text{SSE}}, \quad (6.2)$$

como definido na referência [136]. Isso tem a vantagem sobre a quantidade anterior por não depender da resistência da camada de Pt, a qual varia com sua espessura, largura, comprimento e a temperatura. A figura 41 mostra as dependências de  $\text{TP}_{\text{SSE}}$  e de  $S_{\text{SSE}}$  com temperatura para as duas amostras de RbMnF<sub>3</sub>/Pt para  $H = 60$  kOe. Utilizou-se a diferença de temperatura  $\Delta T$  dada na figura 40 e a variação da resistência dos dois filmes de Pt com a temperatura.

A figura 42 mostra mais uma característica do efeito Seebeck de spin: a variação linear da tensão elétrica com a diferença de temperatura  $\Delta T_{\text{set}}$  aplicada à amostra B. É importante destacar que tais dados foram obtidos com o bloco de cobre mantido à temperatura ambiente,  $T = 300$  K, na qual o material se encontra em sua fase paramagnética. Isso evidencia claramente que a tensão  $V_{\text{SSE}}$  em temperatura ambiente é realmente devida ao efeito Seebeck de spin. Dados semelhantes foram obtidos em baixas temperaturas para ambas as amostras, nas quais o material está na fase *spin-flop*.

Como discutido anteriormente, tal tensão elétrica é devida à conversão da corrente de spin gerada pelo gradiente de temperatura no RbMnF<sub>3</sub> em uma corrente de carga na camada de Pt pelo ISHE. Em antiferromagnetos uniaxiais, como MnF<sub>2</sub> e FeF<sub>2</sub>, a corrente de spin na fase ordenada é transportada pelos dois modos de mágnons. Como as populações de mágnons térmicos desaparecem em  $T = 0$  K, o SSE também desaparece nessa temperatura.

Figura 41 – Dependências com a temperatura da termopotência para (a) amostra B e (b) a amostra R para  $H = 60$  kOe. Similarmente, tem-se a dependência com a temperatura do coeficiente Seebeck de spin para (c) a amostra B e (d) a amostra R.



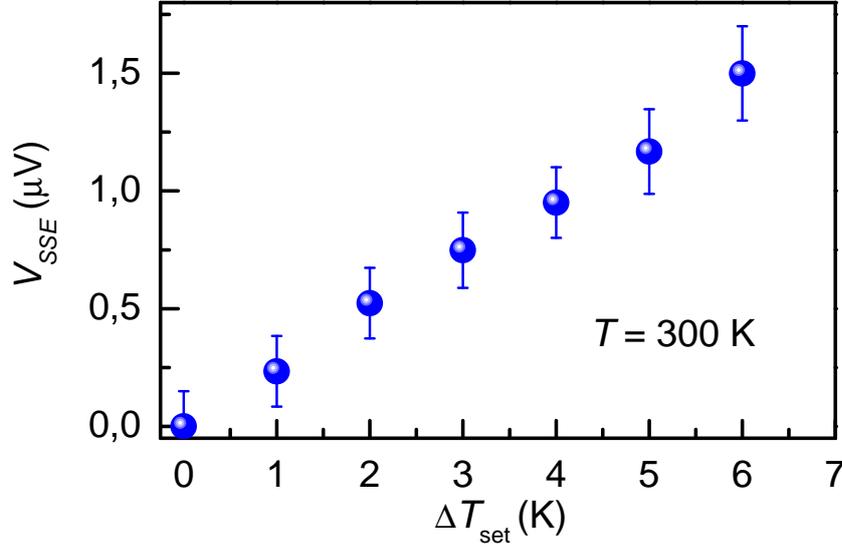
Fonte: o autor, 2025.

Conforme previsto teoricamente [136, 149, 150] e confirmado experimentalmente [141, 143], à medida que a temperatura aumenta, o coeficiente  $S_{SSE}$  aumenta rapidamente com o aumento de  $T$ , atinge um máximo em um certo valor de  $T$  que depende dos parâmetros do material, e em seguida, diminui gradualmente até atingir um mínimo em  $T_N$ .

Claramente, na fase de spin-flop, o  $S_{SSE}$  das amostras de  $\text{RbMnF}_3$  se comporta de forma semelhante aos dos antiferromagnetos uniaxiais. Entretanto, enquanto para  $\text{MnF}_2$  e  $\text{FeF}_2$ , o coeficiente  $S_{SSE}$  decai substancialmente à medida que  $T$  aumenta acima de  $T_N$  e se torna insignificante à temperatura ambiente [141, 143], para o  $\text{RbMnF}_3$  o coeficiente  $S_{SSE}$  apresenta um leve aumento na fase paramagnética, conforme mostrado na figura 41. Como não há ordem antiferromagnética de longo alcance acima de  $T_N$ , o grande sinal do SSE em altas temperaturas não pode ser atribuído à corrente de spin transportada pelos mágnons antiferromagnéticos.

Acontece que, mesmo na ausência de ordem de longo alcance, na fase paramagnética há uma magnetização sob um campo aplicado, que no caso do  $\text{RbMnF}_3$ , é comparável à da fase ordenada (ver figura 18). Isso pode levar à produção de uma corrente de spin por um gradiente de temperatura mediada por alguma forma de flutuação magnética, conforme observado experimentalmente em bicamadas de um isolante paramagnético e um metal

Figura 42 – Variação da tensão  $V_{SSE}$  em função da diferença de temperatura  $\Delta T_{set}$  na amostra B de RbMnF<sub>3</sub>/Pt para  $H = 60$  kOe na fase paramagnética com  $T = 300$  K.



Fonte: o autor, 2025.

normal [151], e explicado teoricamente nas referências [152, 153]. O aumento de  $S_{SSE}$  na fase paramagnética do RbMnF<sub>3</sub> relatado aqui não é explicado pelas teorias existentes até o momento. Atribui-se esse aumento a uma combinação das flutuações de spins livres dos isolantes paramagnéticos [153] com a condução térmica de paramágnons de longa duração possibilitada pela ordem de curto alcance que persiste acima de  $T_N$  [154, 155].

#### 6.4 TEORIA DE DIFUSÃO DE MÁGNONS PARA O EFEITO SEEBECK DE SPIN NA FASE SPIN-*FLOP*

A teoria de difusão de mágnons em sistemas *bulk* para explicar o SSE foi proposta inicialmente por Rezende *et al.* na referência [134] para materiais ferromagnéticos isolantes, e foi posteriormente estendida para materiais antiferromagnéticos isolantes nas referências [135, 136]. O SSE é detectado através da tensão elétrica associada ao ISHE produzida em uma camada metálica depositada sobre o material magnético isolante, a qual é dada por

$$V_{SSE} = \frac{2q_e}{\hbar} R_N w \lambda_N \theta_{SH} \tanh\left(\frac{t_N}{2\lambda_N}\right) J_S^z(0), \quad (6.3)$$

com  $q_e$  a carga do elétron,  $\theta_{SH}$  o ângulo Hall de spin, e  $\lambda_N$ ,  $R_N$ ,  $t_N$  e  $w$  o comprimento de difusão, a resistência, a espessura e a largura do filme fino metálico (um metal normal tal qual a Pt), respectivamente [21].

A teoria de difusão de mágnons permite, então, obter a densidade de corrente de spin na interface,  $J_S^z(0)$ . Como a resistência elétrica da camada metálica varia com a sua dimensão e com a temperatura do sistema, geralmente é mais interessante trabalhar com a corrente de carga  $I_{SSE} = V_{SSE}/R_N$ . Dessa forma, o coeficiente do efeito Seebeck de spin

é escrito como  $S_{\text{SSE}} = I_{\text{SSE}}/\nabla T$ , para um dado gradiente de temperatura  $\nabla T$ , conforme foi discutido na seção 6.3.

#### 6.4.1 Densidade de corrente de spin e equação de Boltzmann

Em um ferromagneto isolante (FMI) com volume  $V$ , o número médio de mágnons com vetor de onda  $\mathbf{k}$  no equilíbrio térmico é dado pela distribuição de Bose-Einstein

$$n_{\mathbf{k}}^0 = \frac{1}{\exp(\epsilon_{\mathbf{k}}/k_B T) - 1}, \quad (6.4)$$

para  $\epsilon_{\mathbf{k}} = \hbar\omega_{\mathbf{k}}$ . Por sua vez, o número médio de mágnons fora do equilíbrio térmico é

$$\delta n_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = n_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) - n_{\mathbf{k}}^0, \quad (6.5)$$

sendo  $n_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})$  o número total de mágnons com número de onda  $\mathbf{k}$  na posição  $\mathbf{r}$ . Uma importante quantidade é a chamada acumulação de mágnons [134, 156, 157], definida por

$$\delta n_m(\mathbf{r}) = \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{k}} \delta n_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}). \quad (6.6)$$

A densidade de corrente de spin com polarização em  $z$  é dada por

$$\mathbf{J}_S^z(\mathbf{r}) = \frac{\hbar}{V} \sum_{\mathbf{k}} \mathbf{v}_{\mathbf{k}} n_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}), \quad (6.7)$$

com  $\mathbf{v}_{\mathbf{k}} = \partial\omega_{\mathbf{k}}/\partial\mathbf{k}$  a velocidade de grupo. Como no SSE não há corrente de spin no equilíbrio térmico, tem-se  $\frac{\hbar}{V} \sum_{\mathbf{k}} \mathbf{v}_{\mathbf{k}} n_{\mathbf{k}}^0 = 0$ , de modo que segue da equação (6.7) que

$$\mathbf{J}_S^z(\mathbf{r}) = \frac{\hbar}{V} \sum_{\mathbf{k}} \mathbf{v}_{\mathbf{k}} [n_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) - n_{\mathbf{k}}^0] = \frac{\hbar}{V} \sum_{\mathbf{k}} \mathbf{v}_{\mathbf{k}} \delta n_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}). \quad (6.8)$$

Quando  $V$  é suficientemente grande, pode-se tratar  $k$  como uma quantidade contínua, de modo que faz-se a substituição  $\sum_{\mathbf{k}} \rightarrow \frac{V}{(2\pi)^3} \int d^3k$ . Nesse caso, reescreve-se a equação (6.6) como sendo

$$\delta n_m(\mathbf{r}) = \frac{1}{(2\pi)^3} \int d^3k \delta n_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}), \quad (6.9)$$

e a equação (6.8) como

$$\mathbf{J}_S^z(\mathbf{r}) = \frac{\hbar}{(2\pi)^3} \int d^3k \mathbf{v}_{\mathbf{k}} \delta n_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}), \quad (6.10)$$

nas quais as integrais são realizadas na zona Brillouin. Em um antiferromagneto isolante (AFI), deve-se levar em conta as contribuições dos modos  $\alpha$  e  $\beta$ , de maneira que a

acumulação de mágnons efetiva é

$$\delta n_m(\mathbf{r}) = \frac{1}{(2\pi)^3} \int d^3k [\delta n_{\alpha\mathbf{k}}(\mathbf{r}) - \delta n_{\beta\mathbf{k}}(\mathbf{r})], \quad (6.11)$$

enquanto a densidade de corrente de spin tem a forma [135]

$$\mathbf{J}_S^z(\mathbf{r}) = \frac{\hbar}{(2\pi)^3} \int d^3k [\mathbf{v}_{\alpha\mathbf{k}} \delta n_{\alpha\mathbf{k}}(\mathbf{r}) - \mathbf{v}_{\beta\mathbf{k}} \delta n_{\beta\mathbf{k}}(\mathbf{r})]. \quad (6.12)$$

O sinal negativo é devido ao fato de que ambos os modos de mágnons contribuem com sinais opostos para a corrente de spin.

No caso estacionário e na ausência de forças externas, a equação de Boltzmann fornece para o AFI (ver referência [21])

$$n_{\mu\mathbf{k}}(\mathbf{r}) - n_{\mu\mathbf{k}}^0 = -\tau_{\mu\mathbf{k}} \mathbf{v}_{\mu\mathbf{k}} \cdot \nabla n_{\mu\mathbf{k}}(\mathbf{r}), \quad (6.13)$$

sendo  $\tau_{\mu\mathbf{k}}$  o tempo de relaxação, e  $\mu = \alpha, \beta$ . Com o uso da equação (6.5), a equação (6.13) pode ser reescrita como

$$\begin{aligned} \delta n_{\mu\mathbf{k}}(\mathbf{r}) &= -\tau_{\mu\mathbf{k}} \mathbf{v}_{\mu\mathbf{k}} \cdot \nabla [n_{\mu\mathbf{k}}^0 + \delta n_{\mu\mathbf{k}}(\mathbf{r})] \\ &= -\tau_{\mu\mathbf{k}} \mathbf{v}_{\mu\mathbf{k}} \cdot \nabla n_{\mu\mathbf{k}}^0 - \tau_{\mu\mathbf{k}} \mathbf{v}_{\mu\mathbf{k}} \cdot \nabla [\delta n_{\mu\mathbf{k}}(\mathbf{r})] \\ &= -\tau_{\mu\mathbf{k}} \left( \frac{\partial n_{\mu\mathbf{k}}^0}{\partial T} \right) \mathbf{v}_{\mu\mathbf{k}} \cdot \nabla T - \tau_{\mu\mathbf{k}} \mathbf{v}_{\mu\mathbf{k}} \cdot \nabla [\delta n_{\mu\mathbf{k}}(\mathbf{r})]. \end{aligned} \quad (6.14)$$

Substituindo a equação (6.14) em (6.12), obtém-se

$$\mathbf{J}_S^z(\mathbf{r}) = \mathbf{J}_{\nabla T}^z(\mathbf{r}) + \mathbf{J}_{\delta n}^z(\mathbf{r}), \quad (6.15)$$

na qual tem-se a densidade de corrente de spin devida ao gradiente de temperatura

$$\mathbf{J}_{\nabla T}^z(\mathbf{r}) = -\sum_{\mu} \frac{c_{\mu} \hbar}{(2\pi)^3} \int d^3k \tau_{\mu\mathbf{k}} \left( \frac{\partial n_{\mu\mathbf{k}}^0}{\partial T} \right) (\mathbf{v}_{\mu\mathbf{k}} \cdot \nabla T) \mathbf{v}_{\mu\mathbf{k}}, \quad (6.16)$$

e a densidade de corrente de spin devida à variação do número de mágnons fora do equilíbrio tem a forma

$$\mathbf{J}_{\delta n}^z(\mathbf{r}) = -\sum_{\mu} \frac{c_{\mu} \hbar}{(2\pi)^3} \int d^3k \tau_{\mu\mathbf{k}} (\mathbf{v}_{\mu\mathbf{k}} \cdot \nabla [\delta n_{\mu\mathbf{k}}(\mathbf{r})]) \mathbf{v}_{\mu\mathbf{k}}, \quad (6.17)$$

para  $c_{\alpha} = 1$  e  $c_{\beta} = -1$ .

De modo geral, o número de mágnons fora do equilíbrio térmico,  $\delta n_{\mu\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ , não é conhecido de forma exata. Assim, na teoria da resposta linear, pode-se aproximar  $n_{\mu\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = n_{\mu\mathbf{k}}^0 + n_{\mu\mathbf{k}}^0 g(\mathbf{r})$ , com  $g(\mathbf{r})$  uma função a ser determinada, de tal maneira que

obté-m-se

$$\delta n_{\mu\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = n_{\mu\mathbf{k}}^0 g(\mathbf{r}). \quad (6.18)$$

Supondo que a variação espacial de  $n_{\mu\mathbf{k}}^0$  é desprezível com relação à variação de  $g(\mathbf{r})$ , segue que

$$\nabla[\delta n_{\mu\mathbf{k}}(\mathbf{r})] \approx n_{\mu\mathbf{k}}^0 \nabla g(\mathbf{r}). \quad (6.19)$$

Da equação (6.11), pode-se escrever  $g(\mathbf{r})$  em termos da acumulação de mágnons como sendo

$$g(\mathbf{r}) = \frac{1}{I_0} \delta n_m(\mathbf{r}), \quad (6.20)$$

na qual

$$I_0 = \sum_{\mu} \frac{c_{\mu}}{(2\pi)^3} \int d^3k n_{\mu\mathbf{k}}^0. \quad (6.21)$$

Portanto, das equações (6.19) e (6.20), obtém-se o gradiente

$$\nabla[\delta n_{\mu\mathbf{k}}(\mathbf{r})] \approx \frac{1}{I_0} n_{\mu\mathbf{k}}^0 \nabla[\delta n_m(\mathbf{r})], \quad (6.22)$$

e a equação (6.17) torna-se

$$\mathbf{J}_{\delta n}^z(\mathbf{r}) = - \sum_{\mu} \frac{c_{\mu} \hbar}{(2\pi)^3 I_0} \int d^3k \tau_{\mu\mathbf{k}} n_{\mu\mathbf{k}}^0 (\mathbf{v}_{\mu\mathbf{k}} \cdot \nabla[\delta n_m(\mathbf{r})]) \mathbf{v}_{\mu\mathbf{k}}. \quad (6.23)$$

#### 6.4.2 Condições de contorno e integrais

Considerando que o gradiente de temperatura é aplicado ao longo do eixo  $y$ , tem-se  $\nabla T = \nabla T \hat{y} = \frac{dT}{dy} \hat{y}$ . Além disso, supõe-se que a velocidade de grupo é paralela ao gradiente de temperatura (isto é,  $\mathbf{v}_{\mathbf{k}} = v_{\mathbf{k}} \hat{y}$ ), o que implica  $\mathbf{J}_S^z(\mathbf{r}) = J_S^z(y) \hat{y}$ . Conseqüentemente, as contribuições para a densidade de corrente de spin dadas pelas equações (6.16) e (6.23) tornam-se, respectivamente,

$$J_{\nabla T}^z(y) = -C_S \nabla T, \quad (6.24a)$$

$$J_{\delta n}^z(y) = -\hbar D_m \frac{d}{dy} [\delta n_m(y)], \quad (6.24b)$$

nas quais têm-se os parâmetros

$$C_S = \sum_{\mu} \frac{c_{\mu} \hbar}{(2\pi)^3} \int d^3k \tau_{\mu\mathbf{k}} \left( \frac{\partial n_{\mu\mathbf{k}}^0}{\partial T} \right) v_{\mu\mathbf{k}}^2, \quad (6.25a)$$

$$D_m = \frac{1}{I_0} \sum_{\mu} \frac{c_{\mu}}{(2\pi)^3} \int d^3k \tau_{\mu\mathbf{k}} n_{\mu\mathbf{k}}^0 v_{\mu\mathbf{k}}^2. \quad (6.25b)$$

Portanto, segue da equação (6.15) que

$$J_S^z(y) = -C_S \nabla T - \hbar D_m \frac{d}{dy} [\delta n_m(y)]. \quad (6.26)$$

Conforme discutido nas referências [156, 157], a acumulação de mágnons obedece à equação de difusão

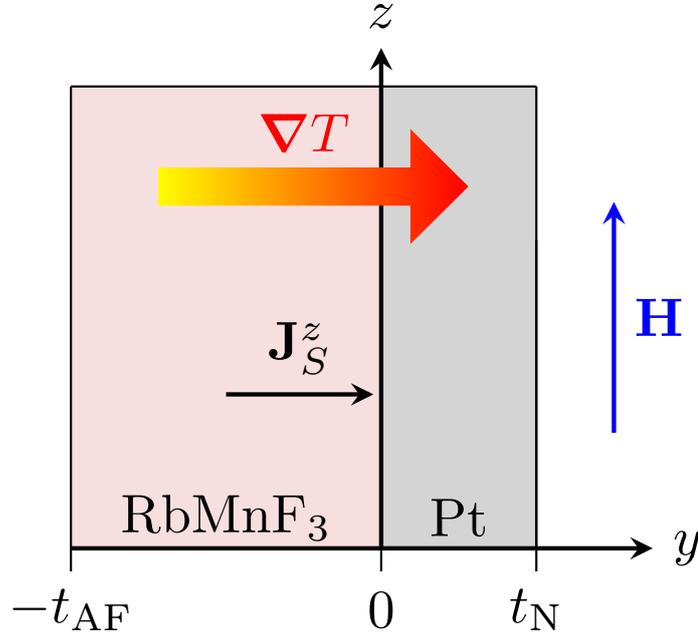
$$\frac{d^2}{dy^2} [\delta n_m(y)] - \frac{1}{l_m^2} \delta n_m(y) = 0, \quad (6.27)$$

na qual  $l_m = \sqrt{D_m \tau_m}$  é o comprimento de difusão de mágnons, com  $\tau_m$  o tempo de relaxação de mágnon-fônon pelo qual a acumulação de mágnons relaxa. Será considerada a interface entre o AFI e a camada metálica como a origem do eixo  $y$ , de tal modo que a face oposta do AFI está localizada em  $y = -t_{AF}$  (ver figura 43). A solução da equação (6.27) pode ser escrita como

$$\delta n_m(y) = A \cosh\left(\frac{y + t_{AF}}{l_m}\right) + B \sinh\left(\frac{y + t_{AF}}{l_m}\right), \quad (6.28)$$

com  $A$  e  $B$  constantes a determinar.

Figura 43 – Vista lateral da bicamada RbMnF<sub>3</sub>/Pt considerando as coordenadas para os cálculos da densidade de corrente de spin gerada por um gradiente de temperatura.



Fonte: o autor, 2025.

A densidade de corrente de spin bombeada termicamente para a interface da bicamada é (ver a referência [134])

$$J_S^z(0) = -b g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} \delta n_m(0), \quad (6.29)$$

para  $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$  a parte real da condutância de mistura de spins efetiva, e a constante

$$b = \frac{\gamma \hbar}{2\pi M I_0} \sum_{\mu} \frac{c_{\mu}}{(2\pi)^3} \int d^3 k \epsilon_{\mu\mathbf{k}} n_{\mu\mathbf{k}}^0, \quad (6.30)$$

na qual  $\gamma$  é o razão giromagnética do elétron e  $M$  é a magnetização da sub-rede. Além disso, a densidade de corrente de spin deve ser nula na face situada em  $y = -t_{AF}$ , isto é,

$$J_S^z(-t_{AF}) = 0. \quad (6.31)$$

Dessa maneira, as condições de contorno (6.29) e (6.31) possibilitam a determinação das constantes  $A$  e  $B$ .

Ao substituir a equação (6.28) em (6.26), obtém-se

$$J_S^z(y) = -C_S \nabla T - aA \sinh\left(\frac{y + t_{AF}}{l_m}\right) - aB \cosh\left(\frac{y + t_{AF}}{l_m}\right), \quad (6.32)$$

com o parâmetro

$$a = \frac{\hbar D_m}{l_m}. \quad (6.33)$$

Desse modo, a condição de contorno (6.31) leva à constante

$$B = -\frac{C_S}{a} \nabla T. \quad (6.34)$$

Das equações (6.28) e (6.34), segue que

$$A = \text{sech}\left(\frac{t_{AF}}{l_m}\right) \delta n_m(0) + \frac{C_S}{a} \tanh\left(\frac{t_{AF}}{l_m}\right) \nabla T. \quad (6.35)$$

Consequentemente, a densidade de corrente de spin tem a forma

$$\begin{aligned} J_S^z(y) = & - \left[ 1 + \tanh\left(\frac{t_{AF}}{l_m}\right) \sinh\left(\frac{y + t_{AF}}{l_m}\right) - \cosh\left(\frac{y + t_{AF}}{l_m}\right) \right] C_S \nabla T \\ & - \text{sech}\left(\frac{t_{AF}}{l_m}\right) \sinh\left(\frac{y + t_{AF}}{l_m}\right) a \delta n_m(0). \end{aligned} \quad (6.36)$$

Fazendo  $y = 0$  na equação (6.36), tem-se

$$\begin{aligned} J_S^z(0) = & - \left[ 1 + \tanh\left(\frac{t_{AF}}{l_m}\right) \sinh\left(\frac{t_{AF}}{l_m}\right) - \cosh\left(\frac{t_{AF}}{l_m}\right) \right] C_S \nabla T - \tanh\left(\frac{t_{AF}}{l_m}\right) a \delta n_m(0) \\ = & - \frac{\cosh\left(\frac{t_{AF}}{l_m}\right) - 1}{\cosh\left(\frac{t_{AF}}{l_m}\right)} C_S \nabla T - \tanh\left(\frac{t_{AF}}{l_m}\right) a \delta n_m(0) \\ = & - \left[ 1 - \text{sech}\left(\frac{t_{AF}}{l_m}\right) \right] C_S \nabla T - \tanh\left(\frac{t_{AF}}{l_m}\right) a \delta n_m(0). \end{aligned} \quad (6.37)$$

Das equações (6.29) e (6.37), encontra-se

$$\delta n_m(0) = \frac{1 - \operatorname{sech}\left(\frac{t_{AF}}{l_m}\right)}{b g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} - a \tanh\left(\frac{t_{AF}}{l_m}\right)} C_S \nabla T. \quad (6.38)$$

Substituindo a equação (6.38) em (6.29), tem-se

$$J_S^z(0) = S_S \nabla T, \quad (6.39)$$

com o parâmetro

$$S_S = \frac{b g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}}{a} \frac{1 - \operatorname{sech}\left(\frac{t_{AF}}{l_m}\right)}{\tanh\left(\frac{t_{AF}}{l_m}\right) - \frac{b g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}}{a}} C_S. \quad (6.40)$$

Têm-se comumente as condições  $t_{AF} \gg l_m$  e  $b g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}/a \ll 1$ , de modo que pode-se aproximar  $S_S \approx b g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} C_S/a$ .

Considerando uma zona de Brillouin esférica com número de onda máximo  $k_m$ , define-se a quantidade adimensional  $q = k/k_m$ , que servirá para facilitar o cálculo das integrais, de modo que a equação (6.30) pode ser reescrita como

$$b = \frac{\gamma \hbar k_B T}{2\pi M} \frac{B_{1\alpha} - B_{1\beta}}{B_{0\alpha} - B_{0\beta}}, \quad (6.41)$$

com as integrais

$$B_{\nu\mu} = \int_0^1 dq \frac{q^2 x_{\mu q}^\nu}{e^{x_{\mu q}} - 1}, \quad (6.42)$$

na qual têm-se que  $\nu = 0, 1$  e  $x_{\mu q} = \hbar \omega_{\mu q}/k_B T$ . Similarmente, é também possível escrever as equações (6.25a) e (6.25b) como

$$C_S = \frac{\hbar \tau_0 k_m}{2\pi^2 T} (C_{1\alpha} - C_{1\beta}), \quad (6.43a)$$

$$D_m = \frac{\tau_0}{k_m^2} \frac{C_{0\alpha} - C_{0\beta}}{B_{0\alpha} - B_{0\beta}}, \quad (6.43b)$$

nas quais tem-se

$$C_{\nu\mu} = \int_0^1 dq \frac{v_{\mu q}^2}{\eta_{\mu q}} \frac{q^2 x_{\mu q}^\nu e^{\nu x_{\mu q}}}{(e^{x_{\mu q}} - 1)^{\nu+1}}, \quad (6.44)$$

para  $\eta_{\mu q} = \tau_0/\tau_{\mu q}$  a taxa de relaxação de mágnons adimensional, com  $\tau_0$  o tempo de vida dos mágnons com  $k \approx 0$ .

Obtém-se, portanto, a densidade de corrente de spin na interface na forma

$$J_S^z(0) = \frac{\gamma \hbar k_B \sqrt{\tau_0 \tau_m} k_m^2 g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}}{4\pi^3 M} \frac{(B_{1\alpha} - B_{1\beta})(C_{1\alpha} - C_{1\beta})}{\sqrt{(B_{0\alpha} - B_{0\beta})(C_{0\alpha} - C_{0\beta})}} \nabla T. \quad (6.45)$$

Das equações (6.3), (6.2) e (6.45), tem-se finalmente que o coeficiente do efeito Seebeck de spin é

$$S_{\text{SSE}} = \frac{\gamma k_B k_m^2 q_e w \lambda_N \theta_{SH} \tanh(t_N/2\lambda_N)}{2\pi^3} \frac{\sqrt{\tau_0 \tau_m} g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}}{M} \frac{(B_{1\alpha} - B_{1\beta})(C_{1\alpha} - C_{1\beta})}{\sqrt{(B_{0\alpha} - B_{0\beta})(C_{0\alpha} - C_{0\beta})}}. \quad (6.46)$$

A seguir, tais resultados serão aplicados para o antiferromagneto tridimensional de Heisenberg RbMnF<sub>3</sub> em sua fase *spin-flop*, a fim de comparar a abordagem teórica com os dados experimentais.

### 6.4.3 Aplicação para o antiferromagneto RbMnF<sub>3</sub> na fase *spin-flop*

Como discutido no capítulo 5, as frequências de mágnons para a fase *spin-flop* do RbMnF<sub>3</sub> são dadas por  $\omega_{\alpha_q}^2 = (A_q - D_q)^2 - (B_q - C_q)^2$  e  $\omega_{\beta_q}^2 = (A_q + D_q)^2 - (B_q + C_q)^2$ , com os parâmetros  $A_q = \gamma [H \sin(\tau) + H_E \cos(2\tau) + H_N + 3H_A/8]$ ,  $B_q = -\gamma H_E \gamma_q \cos^2(\tau)$ ,  $C_q = -9\gamma H_A/8$ ,  $D_q = \gamma H_E \gamma_q \sin^2(\tau)$ , para  $\tau \approx H/2H_E$  e com a aproximação  $\gamma_q \approx \cos(\pi q/2)$ . Embora a taxa de relaxação desse material tenha sido estudada na referência [118] na ausência de campo magnético externo, uma expressão exata para  $\eta_{\mu_q}$  não é conhecida para a fase *spin-flop*. Neste trabalho utilizou-se a aproximação  $\eta_{\alpha_q} = \eta_{\beta_q} \approx \eta(T)q$ , na qual  $\eta(T)$  é uma quantidade adimensional que expressa a dependência da taxa de relaxação de mágnons com a temperatura. Como pode ser visto na referência [118], a dependência linear em  $q$  é uma boa aproximação para os mágnons com grandes valores de número de onda, os quais dominam os cálculos das integrais. Logo,  $\eta(T)$  pode ser explicitado nas integrais  $C_{\mu\nu}$ , de tal maneira que  $C_{\mu\nu} = \mathcal{C}_{\mu\nu}/\eta(T)$ .

Outra aproximação é necessária para lidar com o coeficiente  $F_T = \sqrt{\frac{\tau_0 \tau_m}{\eta(T)}} \frac{g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}}{M}$ , visto que ele envolve parâmetros que são desconhecidos para o RbMnF<sub>3</sub>. Como a dependência de  $F_T$  com a temperatura é dominada pela taxa de relaxação, a qual aumenta rapidamente com  $T$  (ver referência [118]), foi utilizada uma aproximação fenomenológica para  $F_T$  com uma expansão polinomial no denominador, de modo que tal coeficiente diminui à medida de que  $T$  aumenta. Assim, faz-se

$$F_T \approx \frac{1}{a_0 + a_1(T/T_N) + a_2(T/T_N)^2}, \quad (6.47)$$

dado em unidades de  $\text{s cm}^{-2} \text{ G}^{-1}$ , com  $a_0$ ,  $a_1$  e  $a_2$  parâmetros a serem obtidos com o auxílio dos dados experimentais para a fase ordenada ( $T < T_N$ ). Convenientemente, define-se também a quantidade

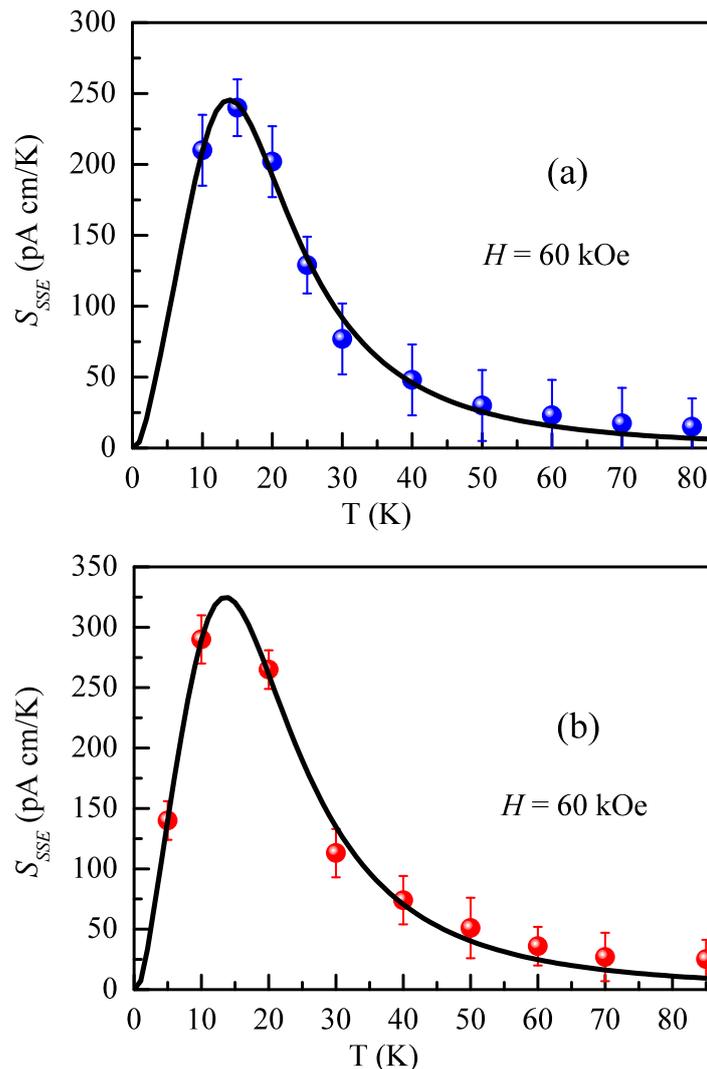
$$S_0 = \frac{\gamma k_B k_m^2 q_e w \lambda_N \theta_{SH} \tanh(t_N/2\lambda_N)}{2\pi^3} \frac{(B_{1\alpha} - B_{1\beta})(C_{1\alpha} - C_{1\beta})}{\sqrt{(B_{0\alpha} - B_{0\beta})(C_{0\alpha} - C_{0\beta})}}, \quad (6.48)$$

a qual permite escrever

$$F_T = \frac{S_{SSE}}{S_0}. \quad (6.49)$$

Os cálculos numéricos das integrais foram realizados utilizando o *software* Maple, aplicando a regra de Simpson (conforme descrita em detalhes na referência [158]). Para isso, a região de integração na variável  $q$  foi dividida em 50 partes. Fixando determinados valores específicos de  $H$  e  $T$ , calcula-se  $S_0$  numericamente e utiliza-se o valor experimental correspondente de  $S_{SSE}$  para obter o respectivo valor de  $F_T$  como sendo  $S_{SSE}/S_0$ . Esse processo é repetido para os demais valores de  $T$  para os quais há valores experimentais de  $S_{SSE}$ . Finalmente, os pontos calculados de  $F_T$  são ajustados utilizando a expressão (6.47), obtendo-se assim os valores dos parâmetros  $a_0$ ,  $a_1$  e  $a_2$  que proporcionam o melhor ajuste, o que permite finalmente o cálculo da curva teórica de  $S_{SSE}$ . Os resultados dos ajustes são mostrados na figura 44 para as duas amostras (B e R) investigadas na seção 6.3.

Figura 44 – Comparação entre os dados experimentais na fase *spin-flop* e as curvas teóricas de  $S_{SSE}$  em função da temperatura com  $H = 60$  kOe para (a) a amostra B e (b) a amostra R.



Utilizaram-se os seguintes valores numéricos para as amostras de RbMnF<sub>3</sub>/Pt:  $w = 1,2$  mm,  $t_N = 10$  nm,  $\lambda_N = 3,7$  nm,  $\theta_{SH} = 0,05$ ,  $a = 4,24$  Å,  $H_E = 8,16 \times 10^5$  Oe,  $H_A = 4,59$  Oe,  $H_N = (9,43 \text{ K/T})$  Oe e  $T_N = 82,6$  K, bem como  $H = 60$  kOe. Para a amostra B, encontraram-se os valores de ajuste  $a_0 \approx 0,1313$ ,  $a_1 \approx -1,0090$  e  $a_2 \approx 4,1860$ , enquanto para a amostra R têm-se  $a_0 \approx 0,0768$ ,  $a_1 \approx -0,5110$  e  $a_2 \approx 2,4621$ , todos dados em  $\text{G cm}^2 \text{ s}^{-1}$ . O código em Maple utilizado para os cálculos numéricos está apresentado no apêndice B.

Os diferentes valores para os parâmetros  $a_0$ ,  $a_1$  e  $a_2$  são associados a pequenas mudanças nas interfaces de RbMnF<sub>3</sub>/Pt das amostras utilizadas nas medidas do SSE relatadas na seção 6.3 devido ao processo de clivagem. Essas pequenas diferenças na qualidade das interfaces possivelmente resultaram em diferentes valores de  $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$  para as amostras B e R, o que explica as discrepâncias entre os valores de  $S_{\text{SSE}}$  mostrados na figura 44. Como também mostrado na seção 6.3, os valores de  $I_{\text{SSE}}$  na fase *spin-flop* saturam para valores de  $H$  na ordem de dezenas de kOe, de tal maneira que a dependência dos parâmetros  $a_0$ ,  $a_1$  e  $a_2$  é irrelevante para valores de  $H$  suficientemente altos.

Em resumo, nesta seção foi apresentada uma teoria de difusão de mágnons para o efeito Seebeck de spin (SSE) no antiferromagneto tridimensional de Heisenberg RbMnF<sub>3</sub>. As curvas teóricas do coeficiente Seebeck de spin  $S_{\text{SSE}}$  em função da temperatura estão em boa concordância com os dados experimentais relatados na seção 6.3. Isso mostra que a teoria de difusão de mágnons proposta nas referências [134–136] também é uma boa abordagem para explicar o transporte de spins através do SSE em materiais antiferromagnéticos na fase *spin-flop* [159].

## 7 EFEITOS DE POLARIZAÇÃO DE TROCA RECÍPROCO E ACOPLAMENTO DE MOLA MAGNÉTICA EM BICAMADAS DE Py/RbMnF<sub>3</sub>

Neste capítulo serão relatadas observações dos efeitos de polarização de troca recíproco e de acoplamento de mola magnética em uma amostra espessa do antiferromagneto tridimensional de Heisenberg RbMnF<sub>3</sub> em interface com um filme fino de *permalloy* (Ni<sub>91</sub>Fe<sub>9</sub>, Py), um material ferromagnético mole. Na seção 7.1 será feita uma breve introdução a tais fenômenos, enquanto a seção 7.2 mostra os detalhes experimentais das medidas realizadas. Os resultados experimentais são finalmente relatados na seção 7.3 para o efeito de polarização de troca recíproco e na seção 7.4 para o efeito de acoplamento de mola magnética.

### 7.1 FENOMENOLOGIA DOS EFEITOS DE POLARIZAÇÃO DE TROCA E DE ACOPLAMENTO DE MOLA MAGNÉTICA

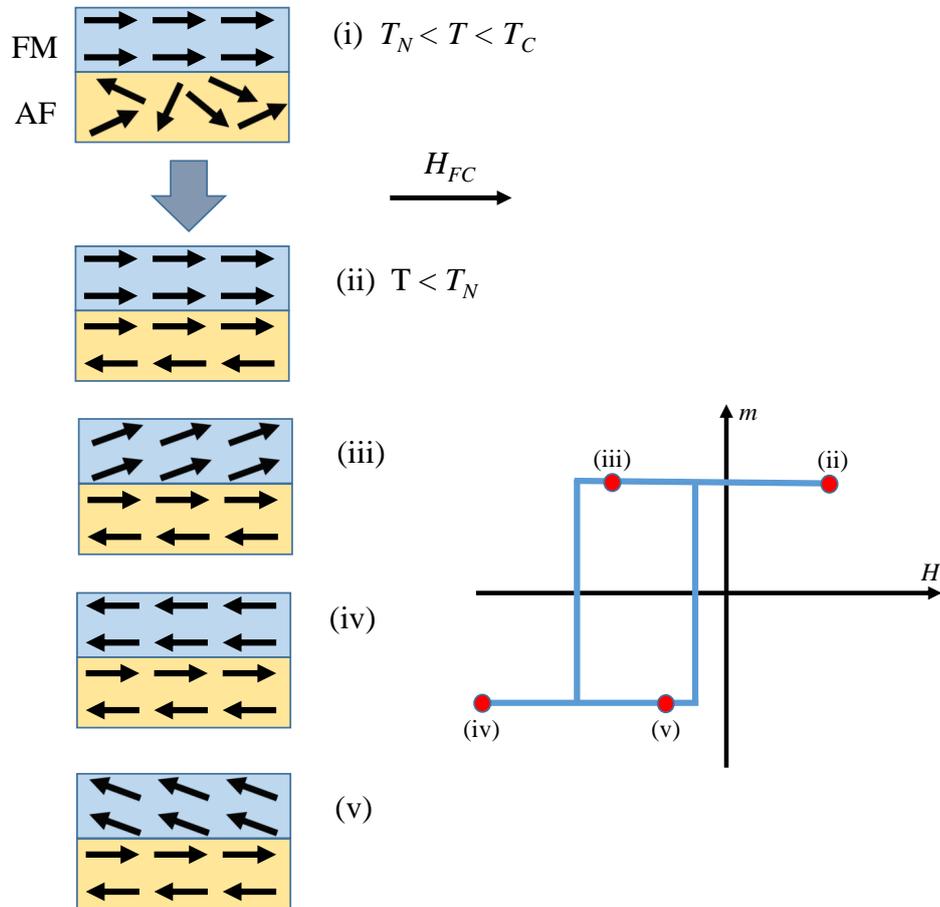
#### 7.1.1 Polarização de troca

O fenômeno de polarização de troca (em inglês *exchange bias*, EB), também conhecido como acoplamento de troca ou anisotropia unidirecional, é resultado das interações magnéticas interfaciais nos contatos atômicos entre materiais ferromagnéticos (FM) e antiferromagnéticos (AF). Descoberto há mais de seis décadas por Meiklejohn e Bean [160], esse fenômeno tem sido amplamente investigado teórica e experimentalmente por meio de diversas técnicas, e também é aplicado em dispositivos magnetoeletrônicos e em sensores magnéticos [19, 20, 161–164]. A origem do deslocamento do ciclo de histerese da camada ferromagnética no EB é, portanto, a interação de troca interfacial entre os momentos magnéticos das camadas ferromagnética e antiferromagnética [165–168].

Os experimentos para se estudar o EB são geralmente realizados com bicamadas FM/AF em que ambos os filmes são muito finos (da ordem de apenas alguns nanômetros). Nesse caso, a manifestação mais proeminente do EB é o deslocamento do ciclo de histerese da magnetização da camada ferromagnética no eixo correspondente ao campo magnético aplicado por um determinado valor  $H_{eb}$ , o qual varia inversamente com a espessura da camada ferromagnética. Outra manifestação importante é o grande aumento na largura do ciclo de histerese, caracterizado pelo campo coercitivo  $H_c$ . Para um FM com temperatura de Curie  $T_C$  e um AF com temperatura de Néel  $T_N$ , o fenômeno de EB pode ser intuitivamente entendido utilizando o modelo fenomenológico sugerido na referência [19], conforme as etapas ilustradas na figura 45.

Na etapa (i), é necessário realizar um procedimento conhecido por resfriamento com campo (em inglês *field cooling*, FC), o qual será descrito a seguir. A amostra deve estar a uma temperatura  $T_N < T < T_C$ , de modo que o AF está na fase paramagnética (isto é, com todos os seus momentos magnéticos desordenados). Aplica-se então um

Figura 45 – Ilustração das etapas associadas ao efeito de polarização de troca em bicamadas do tipo FM/AF.



Fonte: o autor, 2025.

campo magnético estático  $H_{FC}$  alto o suficiente para saturar os domínios magnéticos do FM. Na etapa (ii), mantendo o mesmo campo magnético aplicado, o sistema é então resfriado até uma temperatura  $T < T_N$ , de modo que os momentos magnéticos do AF que estão próximos à interface alinham-se ferromagneticamente com os momentos magnéticos adjacentes na camada FM. Os demais momentos magnéticos do AF seguem o ordenamento antiferromagnético, de modo a produzir uma magnetização líquida nula na camada AF.

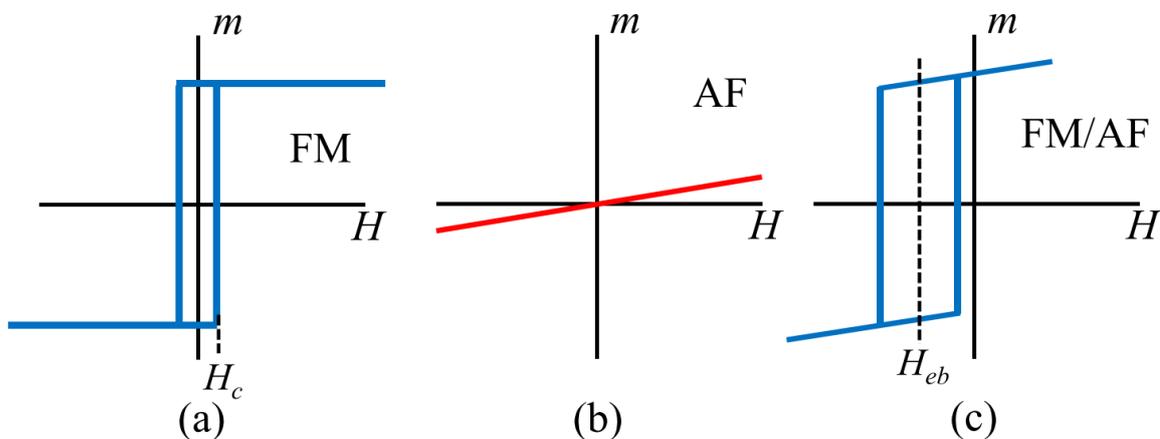
Após o procedimento de resfriamento com campo, mede-se a magnetização da amostra ao passo no qual o campo magnético é varrido. Assim, na etapa (iii) os momentos magnéticos da camada FM passam a girar à medida que o campo magnético é invertido, enquanto os momentos magnéticos da camada AF permanecem sempre na mesma direção (supondo que o campo magnético externo seja sempre consideravelmente menor que o campo de spin-*flop*). Consequentemente, devido à interação entre os momentos magnéticos na interface da bicamada FM/AF, os momentos magnéticos interfaciais do AF passam a exercer um torque sobre os momentos magnéticos interfaciais do FM, que tende a

mantê-los alinhados na posição original. Nesse sentido de varredura do campo magnético, a magnetização é nula para um certo valor de campo  $H = H_{c1}$ .

Logo, na etapa (iv), para ser possível inverter completamente a direção dos momentos magnéticos do FM é necessário aplicar um valor de campo magnético maior (em módulo) quando o FM está em contato com uma camada AF, de tal forma que o torque gerado pela camada AF seja compensado [19, 169]. Finalmente, na etapa (v), quando o sentido de varredura do campo magnético é invertido, os momentos magnéticos do AF passam a exercer um torque favorável ao campo magnético, de modo que os momentos magnéticos do FM giram completamente para um valor de campo menor, e a magnetização é nula para  $H = H_{c2}$ . Isto é, a bicamada FM/AF exibe um campo magnético interno efetivo que desloca o ciclo de histerese por um valor  $H_{eb} = (H_{c1} + H_{c2})/2$ . Ademais, o campo coercitivo é calculado como  $H_c = (H_{c1} - H_{c2})/2$ .

Como filmes finos AF possuem uma magnetização líquida muito pequena, a orientação de seus momentos magnéticos é apenas fracamente influenciada por um campo magnético externo, de modo que a magnetização da camada FM fica essencialmente fixada pela interação interfacial. Além disso, se ambos os filmes forem muito finos, o momento magnético  $m$  da camada FM será muito maior do que o momento líquido da camada AF, como ilustrado nas figuras 46(a) e 46(b). Assim, na medição do momento magnético, apenas o ciclo de histerese deslocado da camada FM é observado, como ilustrado na figura 46(c). Geralmente, o ciclo de histerese se desloca na direção oposta ao campo magnético aplicado durante o crescimento da amostra, e isso é chamado de polarização de troca negativa.

Figura 46 – Ilustração do efeito de polarização de troca observado em medidas do momento magnético em função do campo magnético aplicado. (a) Um filme ferromagnético (FM) mole com um estreito ciclo de histerese; (b) um filme fino antiferromagnético (AF); e (c) uma bicamada FM/AF com polarização de troca. Para filmes muito finos, a inclinação da curva do AF foi aumentada para maior clareza.



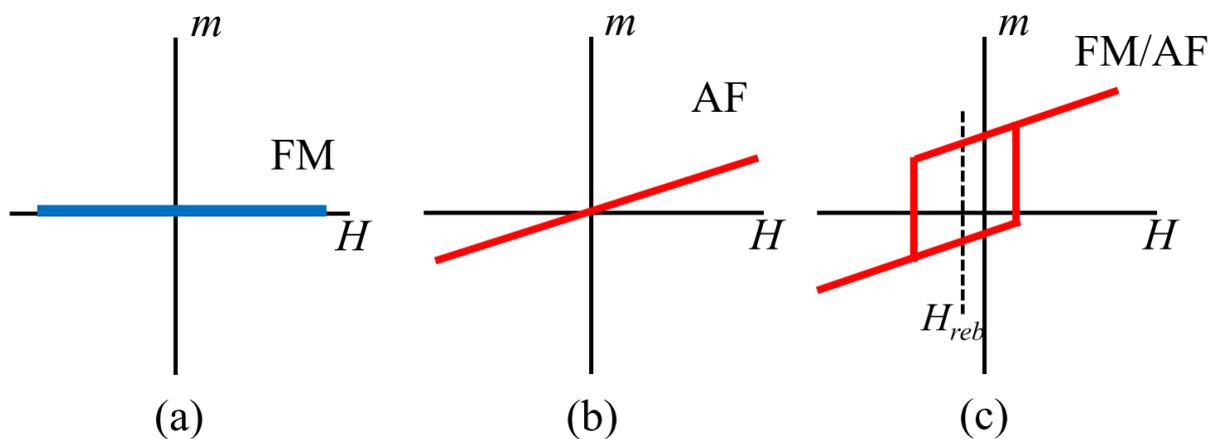
Fonte: o autor, 2025.

A situação inversa, na qual o ciclo de histerese se desloca na direção do campo aplicado durante o crescimento da amostra, chamada de EB positiva, foi observada pela

primeira vez em bicamadas de Fe/FeF<sub>2</sub> [170], e é geralmente associada a um acoplamento interfacial antiferromagnético na interface FM/AF [171]. Na maioria dos sistemas, o tamanho e o sinal do campo de polarização de troca podem ser ajustados com tratamentos térmicos apropriados, que consistem em realizar vários ciclos de histerese consecutivos com temperaturas e amplitudes de campo adequadas [172].

Pode-se também perguntar o que acontece com os ciclos de histerese das camadas FM e AF se a espessura do material AF for de ordens de magnitude maior do que a espessura da camada FM, de modo que o momento magnético líquido do material AF seja muito maior que o momento da camada FM. Os resultados esperados das medidas do momento magnético são ilustrados na figura 47, mostrando que é o ciclo de histerese da camada AF que domina o momento magnético na bicamada FM/AF. Nesse caso, o ciclo de histerese AF é deslocado ao longo do eixo do campo devido à interação de troca interfacial com a camada FM, em um fenômeno que será chamado neste trabalho de “efeito polarização de troca recíproco”.

Figura 47 – Ilustração do efeito de polarização de troca recíproco esperado em medidas do momento magnético em função do campo magnético aplicado em uma bicamada FM/AF composta por um material AF muito mais espesso que o filme FM. (a) Um filme FM muito fino e mole; (b) uma amostra AF espessa; e (c) uma bicamada FM/AF com o efeito de polarização de troca recíproco.



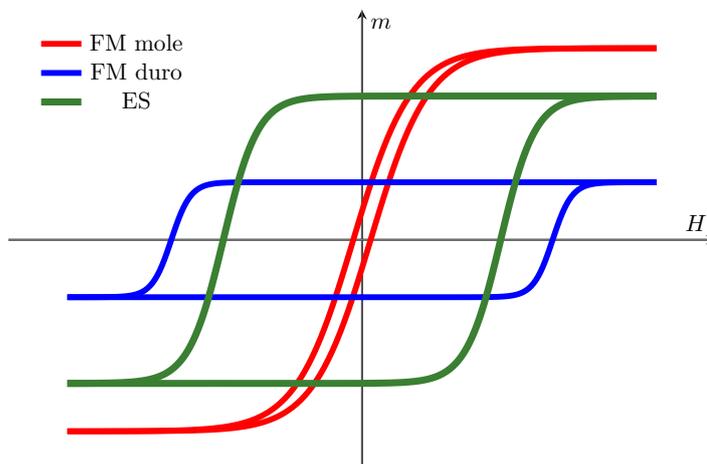
Fonte: o autor, 2025.

### 7.1.2 Acoplamento de mola magnética

O termo “acoplamento de mola magnética” (em uma tradução livre do termo em inglês *exchange spring*, ES) foi proposto em 1991 por Kneller e Hawig para explicar um fenômeno observado no ciclo de histerese de bicamadas contendo um ferromagneto duro e outro mole [173]. Em tais sistemas magnéticos, a interação de troca entre os momentos magnéticos adjacentes na interface da bicamada, com uma fase dura e outra mole, leva a um aumento da magnetização resultante do material (devido ao FM mole) e da coercitividade (devido ao FM duro) [169, 174]. A figura 48 mostra o ciclo de histerese de um material com

acoplamento de mola magnética em comparação com os ciclos de histerese de ferromagnetos moles e duros.

Figura 48 – Na curva em verde, o ciclo de histerese de um material ideal com acoplamento de mola magnética (ES) em comparação com os ciclos de histerese de um ferromagneto mole (curva em vermelho) e duro (curva em azul).

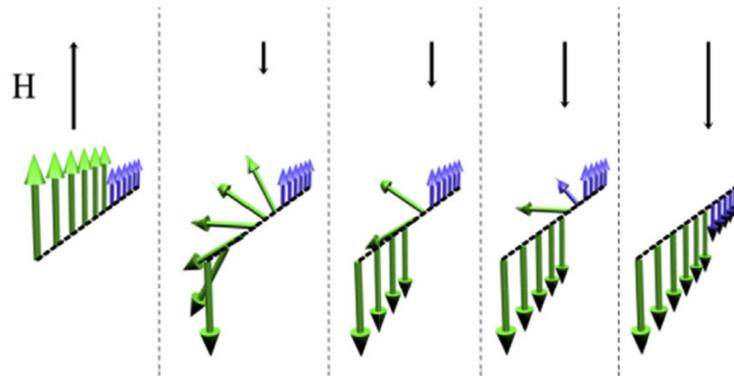


Fonte: o autor, 2025.

A figura 49 mostra como se comportam os momentos magnéticos da bicamada na presença do campo magnético externo  $H$  durante o ciclo de histerese [173,175]. Na etapa (i), aplica-se um campo magnético estático alto o suficiente para saturar a magnetização tanto do FM mole quanto do FM duro. Passa-se na etapa (ii) a varrer o campo magnético, de modo que assim que o sinal de  $H$  começa a ser invertido, os momentos magnéticos do FM duro mantêm-se fixos devido à alta coercitividade, enquanto os momentos magnéticos do FM mole começam a girar na direção de  $H$ . Todavia, os momentos magnéticos na interface interagem devido à interação de troca, de modo que os momentos magnéticos do FM mole tendem a se alinhar com os momentos magnéticos vizinhos do FM duro. Isso gera então um efeito similar a uma “mola” de momentos magnéticos. Na etapa (iii), à medida que a intensidade de  $H$  aumenta, mais momentos magnéticos do FM mole alinham-se com o campo magnético. Os momentos magnéticos do FM duro só começarão a girar em um maior valor de  $H$ , aumentando assim a coercitividade do material, como mostrado na etapa (iv). Por fim, na etapa (v), os momentos magnéticos estão todos alinhados para um valor de  $H$  suficientemente alto para saturar a magnetização total.

Kneller e Hawig, em 1991 [173], foram os primeiros a propor um método para aumentar o produto  $BH$  de um ímã, fazendo um nanocompósito de fases magnéticas duras e moles acopladas pela interação de troca. Ímãs que utilizam esse método são chamados de ímãs com acoplamento de mola magnética (em tradução livre em inglês *exchange spring magnet*), nos quais a fase dura fornece a anisotropia magnética necessária para estabilizar a fase mole acoplada pela interação de troca. As propriedades de tais compostos foram estudadas em detalhes com materiais fundidos [177–180], ferromagnetos moles com

Figura 49 – Comportamento dos momentos magnéticos de um material com acoplamento de mola magnética durante o ciclo de histerese.



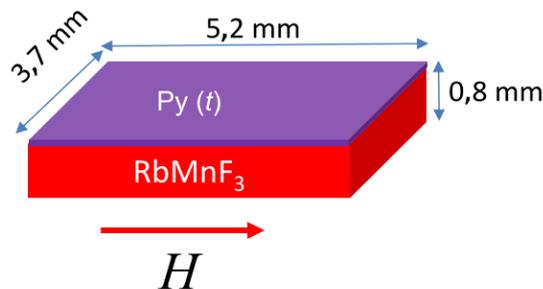
Fonte: Guo *et al.*, 2016 [176].

nanopartículas embutidas de materiais duros [181–183], heteroestruturas de ferromagnetos moles e duros [184–187], entre outros.

## 7.2 DETALHES EXPERIMENTAIS

Os experimentos foram realizados com uma amostra monocristalina de RbMnF<sub>3</sub> em forma de paralelepípedo com dimensões laterais de  $3,7 \times 5,2 \text{ mm}^2$  e espessura de 0,8 mm. Tal amostra foi obtida ao clivar um prisma retangular maciço, com todas as faces nos planos (100), cortado de um monocristal crescido pelo método Czochralski. Com o método de pulverização catódica, quatro dispositivos FM/AF foram feitos depositando-se os filmes de Py com espessuras de 10, 40, 100 e 300 nm, cobrindo toda a superfície da amostra de RbMnF<sub>3</sub>, com as arestas alinhadas às direções cristalinas  $\langle 100 \rangle$ , conforme ilustrado na figura 50. As novas amostras foram preparadas removendo sequencialmente o filme de Py anterior utilizando um banho ultrassônico com uma solução a 10% de ácido nítrico por 30 minutos, e em seguida, depositando um novo filme.

Figura 50 – Ilustração das bicamadas de Py/RbMnF<sub>3</sub>.



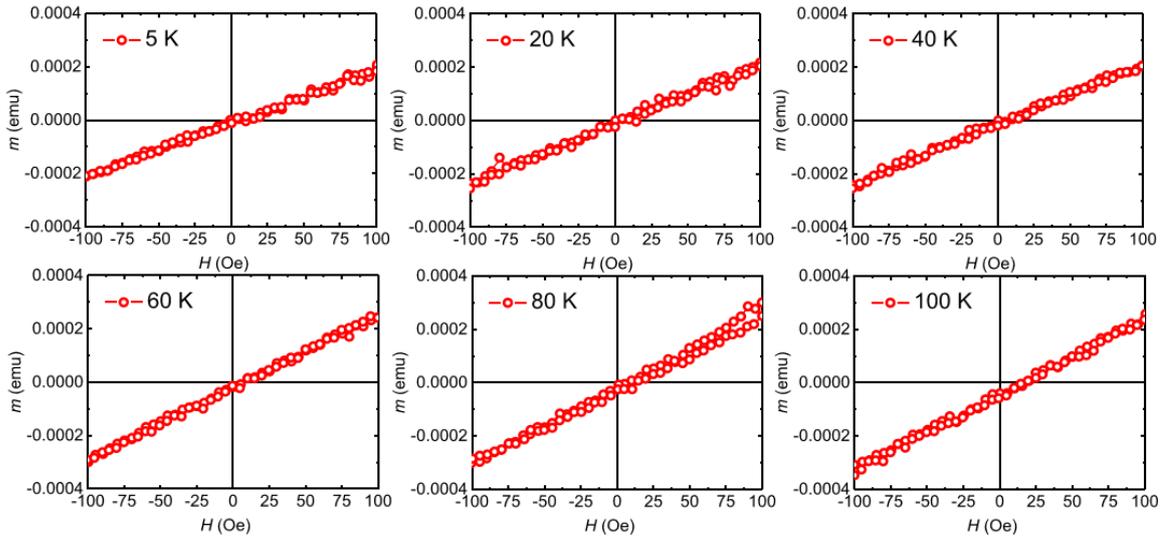
Fonte: o autor, 2025.

As medidas do momento magnético foram realizadas com o módulo de magnetometria AC/DC (ACMS) de um Physical Property Measurement System (PPMS) da Quantum

Design, com o campo magnético  $H$  aplicado ao longo de um eixo  $\langle 001 \rangle$  da amostra de RbMnF<sub>3</sub>, variando  $H$  no intervalo de  $-500$  Oe a  $+500$  Oe. A amostra foi fixada a uma haste de fibra de carbono usando uma cápsula de gelatina não-magnética e fita de teflon. Antes das medidas, a amostra foi resfriada a partir da temperatura ambiente (300 K), passando por  $T_N \approx 82,6$  K, até 5 K sob campo magnético nulo ou sob um campo magnético aplicado de vários valores.

Devido à anisotropia cristalina muito pequena do RbMnF<sub>3</sub>, o campo para a transição da configuração antiferromagnética para a configuração *spin-flop* é de apenas  $H_{SF} = 2,37$  kOe [25]. No entanto, todas as medidas do momento magnético foram feitas com um campo menor que o campo de *spin-flop*, de modo que a amostra se encontra na fase antiferromagnética ou na fase paramagnética. Como esperado para um material antiferromagnético, o momento magnético varia linearmente com a intensidade do campo magnético aplicado, tanto abaixo quanto acima de  $T_N$  [54, 188], como mostrado na figura 51.

Figura 51 – Medidas do momento magnético em função do campo magnético aplicado em uma amostra de RbMnF<sub>3</sub> para várias temperaturas.



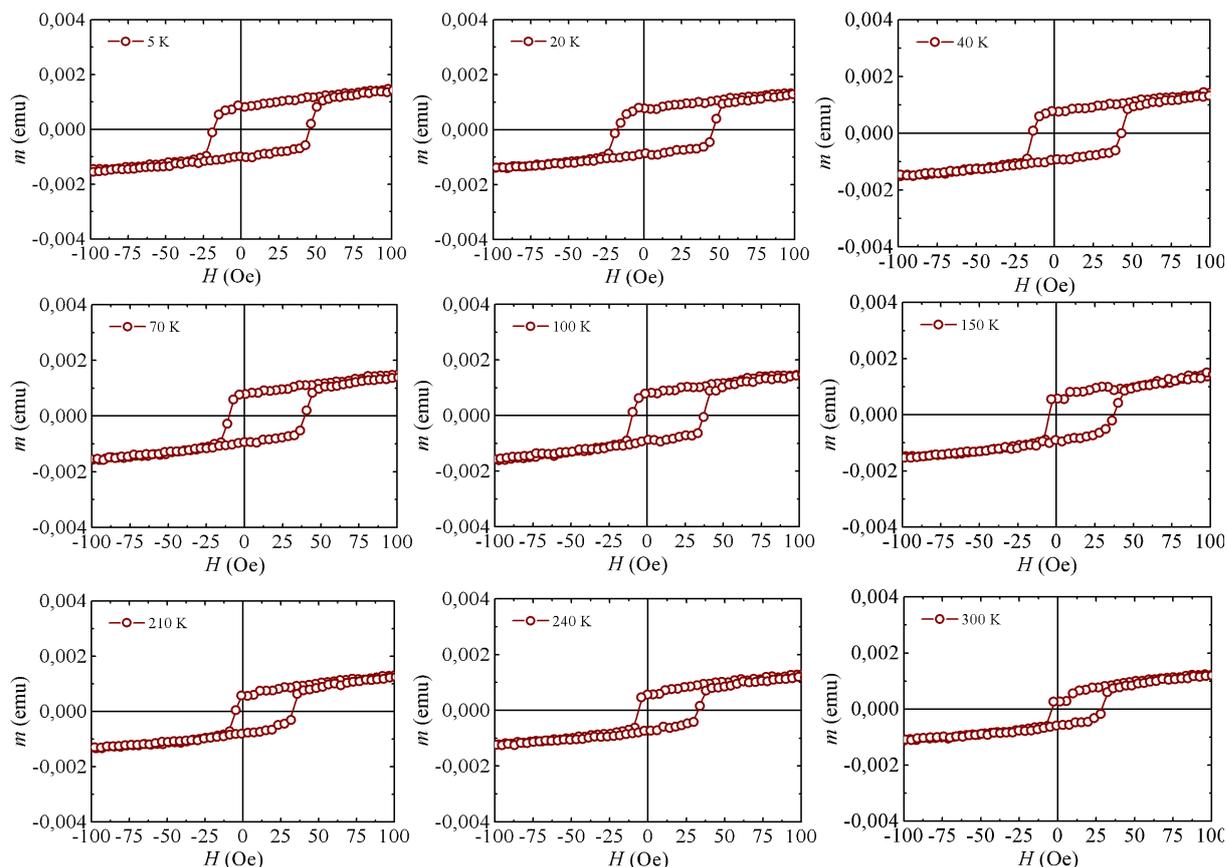
Fonte: o autor, 2025.

### 7.3 EFEITO DE POLARIZAÇÃO DE TROCA RECÍPROCO EM BICAMADAS DE Py/RbMnF<sub>3</sub>

Nesta seção serão relatados os resultados sobre o efeito de polarização de troca recíproco no antiferromagneto de Heisenberg RbMnF<sub>3</sub>. Inicialmente, mediu-se a dependência do momento magnético com o campo magnético para a amostra de RbMnF<sub>3</sub> com uma das suas faces coberta por um filme fino de Py com espessura de 10 nm em várias temperaturas. A figura 52 mostra que, nesse caso, um amplo ciclo de histerese deslocado positivamente aparece em qualquer temperatura no intervalo de 5 K até 300 K, ou seja,

abaixo e acima da temperatura de Néel do antiferromagneto. Ademais, os dados da figura 52, medidos com a amostra resfriada sem campo aplicado, são muito semelhantes aos obtidos com a amostra resfriada sob um campo de 10 kOe ou 80 kOe.

Figura 52 – Medidas do momento magnético em função da intensidade do campo magnético externo para a amostra de Py(10 nm)/RbMnF<sub>3</sub>(0,8 mm) em várias temperaturas, conforme indicado.



Fonte: o autor, 2025.

A princípio, poder-se-ia atribuir o ciclo de histerese deslocado ao filme de Py com o efeito de polarização de troca. No entanto, considerando o valor da magnetização de saturação do Py,  $4\pi M \approx 11$  kG, o filme com volume de  $3,7 \text{ mm} \times 5,2 \text{ mm} \times 10 \text{ nm}$  tem um momento magnético de apenas  $1,7 \times 10^{-4}$  emu. Esse valor é uma ordem de grandeza menor que os valores de pico dos ciclos medidos, que são semelhantes aos momentos da amostra de RbMnF<sub>3</sub> sem revestimento, conforme mostrado na figura 51.

A conclusão inevitável é que os ciclos de histerese na figura 52 são devidos à magnetização líquida do antiferromagneto, com um comportamento ditado pelos domínios antiferromagnéticos induzidos pela interação interfacial com o filme de Py. A possibilidade de formação de domínios AF foi inicialmente prevista por Néel [189], mas as evidências de sua existência têm sido muito escassas, geralmente indiretas e limitadas a alguns materiais [190–199]. Em amostras monocristalinas de RbMnF<sub>3</sub>, os domínios AF foram

previamente observados indiretamente por meio de ressonância antiferromagnética induzida por radiação de micro-ondas [190].

Como em uma bicamada FM/AF a interação interfacial produz o efeito de polarização de troca, resultando em um deslocamento e alargamento do ciclo de histerese da camada FM, a interação interfacial com a camada FM também induz um ciclo deslocado na camada AF, resultando no que foi chamado neste trabalho de “efeito de polarização de troca recíproco”. Esse efeito não foi observado nos estudos anteriores do efeito de polarização de troca porque uma camada AF com espessura nanométrica tem um momento magnético ordens de magnitude menor que a camada FM.

Para uma interpretação quantitativa dos resultados na figura 52, considera-se a expressão para o campo de polarização de troca  $H_{eb}$ , derivada para o campo de EB em bicamadas FM/AF constituídas de filmes muito finos (ver a referência [19])

$$H_{eb} = \frac{E_{SI}}{M_{FM}t_{FM}}, \quad (7.1)$$

na qual  $E_{SI}$  é a densidade de energia de troca interfacial, e  $M_{FM}$  e  $t_{FM}$  são a magnetização e a espessura da camada FM, respectivamente. No caso do efeito de polarização de troca recíproco, espera-se uma relação semelhante à equação (7.1), a saber,

$$H_{reb} = \frac{E_{SI}}{M_{AF}t_{AF}}, \quad (7.2)$$

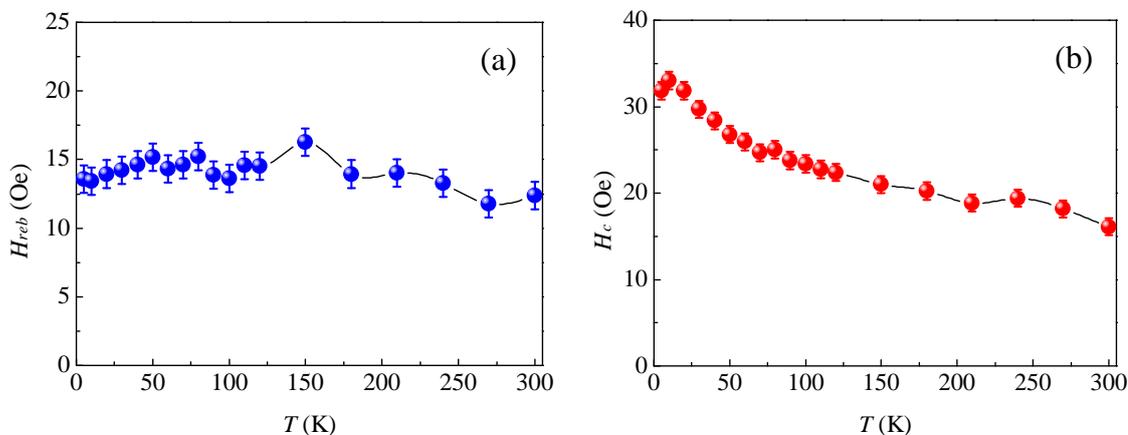
onde  $M_{AF}$  e  $t_{AF}$  são a magnetização líquida e a espessura da camada AF, respectivamente.

Com o momento magnético medido de  $m = 0,001$  emu para amostra de RbMnF<sub>3</sub> com as dimensões mostradas na figura 50, obtém-se para a magnetização líquida do AF o valor de  $M_{AF} = 6,5 \times 10^{-2}$  G. Com esse valor e a espessura de 0,8 mm da amostra de RbMnF<sub>3</sub>, encontra-se pela equação (7.2) a densidade de energia interfacial  $E_{SI} = 0,078$  erg/cm<sup>2</sup>. Tal valor está dentro da faixa de 0,05 – 0,1 erg/cm<sup>2</sup> calculada para vários antiferromagnetos de fluoretos interfaceados com diferentes ferromagnetos metálicos a partir de medidas de  $H_{eb}$  em bicamadas de FM/AF.

Por conseguinte, a figura 53 mostra a dependência do campo de polarização de troca recíproco  $H_{reb}$  e do campo coercitivo  $H_c$  com a temperatura para a amostra de Py/RbMnF<sub>3</sub>. Enquanto o valor de  $H_c$  cai cerca de 50% de baixas temperaturas até 300 K, o valor de  $H_{reb}$  varia pouco em toda o intervalo estudado. E é certamente interessante que o alargamento do ciclo de histerese não mude muito na fase paramagnética (acima de  $T_N$ ) em comparação com a fase ordenada.

A existência do ciclo de histerese alargado e deslocado acima de  $T_N$  lembra a persistência do efeito spin Seebeck (SSE) observado na fase paramagnética do RbMnF<sub>3</sub>, como relatado no capítulo 6. No caso do SSE, isso foi atribuído à geração térmica de correntes de spin transportadas por paramagnons de longa vida, possibilitada pela ordem

Figura 53 – Dependências (a) do campo de polarização de troca recíproco  $H_{reb}$  e (b) do campo coercitivo  $H_c$  com a temperatura para a amostra de Py(10 nm)/RbMnF<sub>3</sub>(0,8 mm).



Fonte: o autor, 2025.

de curto alcance que, acima de  $T_N$ , desempenha o papel dos mágnons de volume na teoria para o SSE na fase ordenada AF [136]. No entanto, a explicação da presença do ciclo de histerese alargado e deslocado observado acima de  $T_N$  e até a temperatura ambiente permanece um problema em aberto.

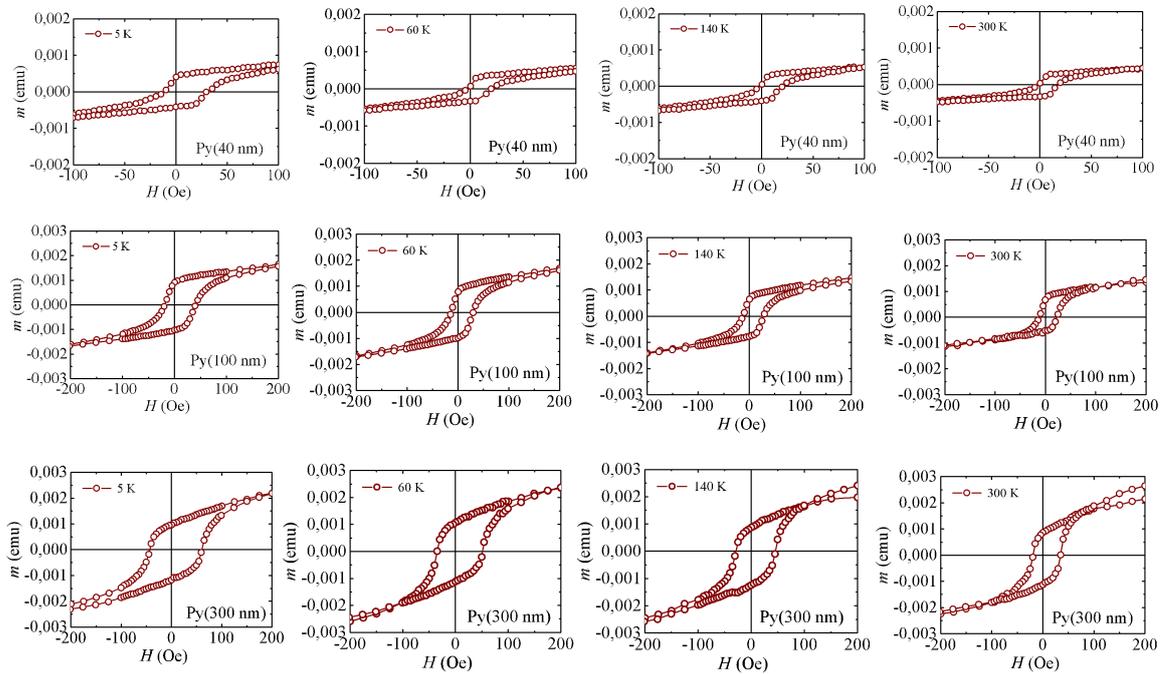
#### 7.4 EFEITO DE ACOPLAMENTO DE MOLA MAGNÉTICA EM BICAMADAS DE Py/RbMnF<sub>3</sub>

Para finalizar o capítulo, nesta seção serão relatadas evidências do efeito de acoplamento de mola magnética em bicamadas de Py/RbMnF<sub>3</sub>. Os momentos magnéticos calculados para os três filmes finos de Py com espessura de 40, 100 e 300 nm são, respectivamente,  $0,68 \times 10^{-3}$  emu,  $1,7 \times 10^{-3}$  emu e  $6,1 \times 10^{-3}$  emu, que são, nessa ordem, um pouco menor, um pouco maior e muito maior do que o momento  $1,0 \times 10^{-3}$  emu da amostra de RbMnF<sub>3</sub> sem Py.

A figura 54 mostra medidas do momento magnético em função do campo magnético aplicado para a amostra de RbMnF<sub>3</sub> coberta com filmes de Py mais espessos, para várias temperaturas. As formas alongadas dos ciclos de histerese na figura 54 são claramente diferentes das da figura 53 para o filme de Py de 10 nm de espessura. Todos os resultados obtidos exibem o efeito de polarização de troca por um campo  $H_{eb}$  que é quase o mesmo para as três espessuras do Py e praticamente não varia com a temperatura até 300 K.

O campo coercitivo e a altura dos ciclos de histerese aumentam consideravelmente com o aumento da espessura do Py e diminuem consideravelmente com o aumento da temperatura, como mostrado na figura 55. O ciclo de histerese para a amostra de RbMnF<sub>3</sub> com o filme fino de Py apresenta uma forma quase retangular, típica de um ferromagneto duro. Nos três casos, o Py é um ferromagneto mole com um momento magnético da mesma ordem de grandeza que o antiferromagneto. Os resultados obtidos com os filmes de Py

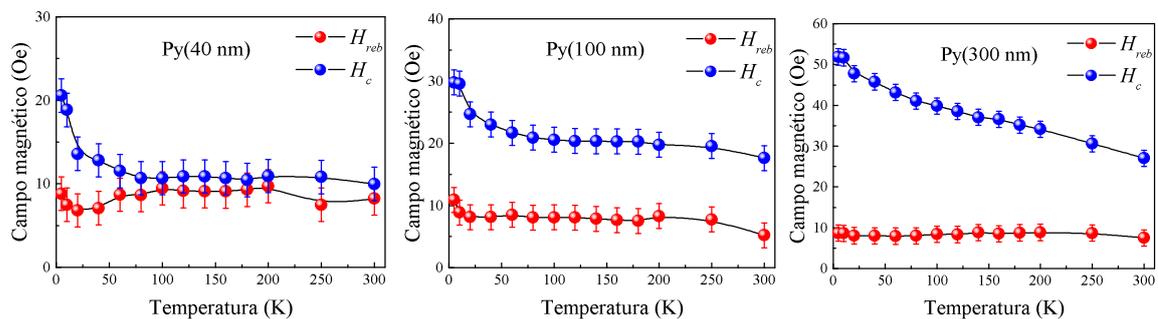
Figura 54 – Medidas do momento magnético em função da intensidade do campo magnético externo para as amostras de Py(*t*)/RbMnF<sub>3</sub> com três espessuras de Py e várias temperaturas, conforme indicado.



Fonte: o autor, 2025.

mais espesso são interpretados como sendo originados pelo efeito de acoplamento de mola magnética. À medida que a camada de Py mole se torna mais espessa, seu momento magnético aumenta, de modo que tanto a altura quanto a largura do ciclo de histerese alongado aumentam.

Figura 55 – Dependências do (a) campo de polarização de troca  $H_{reb}$  e (b) do campo coercitivo  $H_c$  com a temperatura para as amostras de Py(*t*)/RbMnF<sub>3</sub>, com  $t = 40, 100$  e  $300$  nm.



Fonte: o autor, 2025.

Em suma, investigou-se neste capítulo o comportamento do momento magnético de amostras compostas pelo antiferromagneto de Heisenberg RbMnF<sub>3</sub> com uma face coberta por filmes finos do ferromagneto mole Py de várias espessuras. Inicialmente, mediu-se a dependência do momento em relação ao campo magnético em uma amostra com espessura do filme de Py de 10 nm, para a qual o momento magnético é uma ordem de grandeza menor que o da amostra de RbMnF<sub>3</sub>. Surpreendentemente, as medidas revelam um ciclo

de histerese com forma retangular, com altura semelhante ao momento da camada AF sem cobertura, deslocado no campo em uma direção positiva, presente em toda a faixa de temperatura medida, de 5 K a 300 K.

Tais dados são interpretados como uma evidência clara de um efeito de polarização de troca recíproco positivo no material AF. Para amostras com RbMnF<sub>3</sub> coberto por filmes de Py mais espessos, que possuem momentos comparáveis ou maiores que o do antiferromagneto, os ciclos de histerese medidos têm formas alongadas e deslocadas no campo, que não variam muito com a temperatura até 300 K. As formas são típicas de ciclos de histerese de bicamadas compostas por um ferromagneto duro e um mole, produzidos por efeitos de acoplamento de mola magnética (*exchange spring*).

## 8 CONSIDERAÇÕES FINAIS

O  $\text{RbMnF}_3$  é um antiferromagneto com estrutura cristalina cúbica do tipo perovskita que apresenta um baixo campo efetivo de anisotropia, servindo então como um protótipo para um antiferromagneto ideal de Heisenberg em três dimensões. Devido a sua baixa anisotropia, o campo magnético necessário para a transição da fase antiferromagnética para a *spin-flop* é apenas 2,37 kOe, possibilitando a realização de experimentos de ressonância antiferromagnética e nuclear em campos magnéticos de alguns kOe. Dessa forma, as propriedades magnéticas desse material tornam-no um sistema quase ideal para estudos de spintrônica antiferromagnética. Nesta tese de doutorado, foram estudadas as propriedades magnéticas e fenômenos de spintrônica nesse material por meio de técnicas teóricas e experimentais.

A dinâmica de magnetização dos fenômenos de ressonância antiferromagnética e nuclear é bem descrita pela equação de Landau-Lifshitz considerando, respectivamente, o modelo de duas e quatro sub-redes para o  $\text{RbMnF}_3$ . Devido ao intenso acoplamento hiperfino entre os spins eletrônicos e nucleares, as frequências de ressonância têm forte dependência com a temperatura. Além disso, devido ao pequeno campo de *spin-flop*, é possível ver ambos os picos de ressonância (das fases AF e SF) varrendo o campo magnético externo até 6 kOe, para várias frequências.

Com o uso de um criostato, foi possível observar sinais de ressonância magnética nuclear, bem como sinais de tensão elétrica associados ao efeito de bombeamento de spin nuclear-eletrônico (NESP) no  $\text{RbMnF}_3$  em baixas temperaturas. A detecção de sinais de tensão elétrica de bombeamento de spins por ondas de spins nucleares em temperaturas de quase 20 K e de amplitude da ordem de  $\mu\text{V}$  abre possibilidades de dispositivos para computação quântica baseados em manipulação de correntes de spin mediadas por mágnons nucleares sem a necessidade de refrigeradores de diluição.

Ao empregar a teoria quântica das ondas de spins eletrônicos no capítulo 5, foram derivadas expressões analíticas para as frequências dos mágnons tanto na fase antiferromagnética quanto na *spin-flop*, estando em conformidade com os cálculos semiclássicos e os experimentos de AFMR relatados nas referências [24, 25]. Com o uso da teoria de renormalização de energia de mágnons na ausência de campo magnético, é possível obter a dependência das frequências de mágnons com a temperatura, enquanto o caso geral na presença de campo magnético ainda é um problema em aberto a ser explorado em futuros trabalhos.

Foram também apresentadas medidas do efeito Seebeck de spin (SSE) em bicamadas de amostras *bulk* de  $\text{RbMnF}_3$  e filmes finos de Pt. Ao aplicar um gradiente de temperatura perpendicular ao plano da amostra, detectou-se uma tensão elétrica ao longo do filme de Pt devido à conversão de corrente de spin pelo efeito Hall de spin inverso. Ao variar o

campo magnético aplicado, observou-se uma variação de tensão antissimétrica típica do efeito Seebeck de Spin, tanto nas fases de spin-*flop* quanto na fase paramagnética.

Surpreendentemente, o sinal do SSE aumenta com a temperatura e, na fase paramagnética acima da temperatura de Néel, o sinal é comparável aos valores na fase ordenada e aumenta com  $T$ . Atribui-se esse fenômeno à condução térmica de paramágnons de longa duração. Ademais, as curvas teóricas do coeficiente de Seebeck de spin em função da temperatura estão em bom acordo com os dados experimentais para a fase spin-*flop*. Isso mostra que a teoria de difusão de mágnons *bulk* proposta na referência [134] também é uma boa abordagem para explicar o transporte de spin através do SSE em materiais antiferromagnéticos na fase spin-*flop*.

Finalmente, investigou-se o comportamento dos momentos magnéticos de amostras de Py/RbMnF<sub>3</sub> em função do campo magnético e da temperatura. Os dados experimentais apresentam curvas de histerese deslocadas, as quais mostram uma clara evidência do efeito de polarização de troca recíproco no antiferromagneto. Dessa forma, os resultados discutidos nesta tese abordam uma variedade de fenômenos envolvendo materiais magnéticos, em particular com a participação de domínios antiferromagnéticos, contribuindo para as áreas de magnetismo e spintrônica antiferromagnética.

Juntamente com outros estudos sobre spintrônica, espera-se que os resultados apresentados nesta tese de doutorado estimulem estudos teóricos e experimentais de outros fenômenos mediados por mágnons em materiais antiferromagnéticos isolantes. Uma importante abordagem para trabalhos futuros é a realização de experimentos de bombeamento de spins eletrônicos no RbMnF<sub>3</sub>, o que possibilita obter o valor da condutância de mistura de spins efetiva,  $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$ , desse importante material. Como mencionado anteriormente, outras abordagens incluem o tratamento quântico de mágnons nucleares nas fases antiferromagnética e spin-*flop* e os cálculos de renormalização de energia de mágnons para o RbMnF<sub>3</sub>. Outro ponto em aberto é a dependência com a temperatura do coeficiente Seebeck de spin na fase paramagnética, o que envolve uma teoria baseada em correntes de spin produzidas por paramágnons. Ademais, outros antiferromagnetos tais como o KMnF<sub>3</sub>, MnF<sub>2</sub>, FeF<sub>2</sub> e NiO também apresentam propriedades interessantes que podem ser estudadas utilizando as técnicas empregadas neste trabalho.

## REFERÊNCIAS

- [1] CULLITY, B. D.; GRAHAM, C. D. **Introduction to magnetic materials**. Hoboken, NJ: John Wiley & Sons, 2011.
- [2] MAXWELL, J. C. A dynamical theory of the electromagnetic field. **Philosophical transactions of the Royal Society of London**, v. 155, p. 459–512, 1865.
- [3] JACKSON, J. D. **Classical electrodynamics**. Hoboken, NJ: John Wiley & Sons, 1999.
- [4] COEY, J. M. D. **Magnetism and magnetic materials**. Cambridge, Inglaterra: Cambridge University Press, 2010.
- [5] NUSSENZVEIG, H. M. **Curso de física básica: Eletromagnetismo**. 1. ed. São Paulo, Brasil: Editora Blucher, 1997. v. 3.
- [6] REZENDE, S. M. **Materiais e dispositivos eletrônicos**. São Paulo, Brasil: Editora Livraria da Física, 2004.
- [7] GUIMARÃES, A. P.; OLIVEIRA, I. S. **Magnetism and magnetic resonance in solids**. West Sussex, UK: John Wiley & Sons, 1998.
- [8] WOLF, S. A.; AWSCHALOM, D. D.; BUHRMAN, R. A.; DAUGHTON, J. M.; VON MOLNÁR, V. S.; ROUKES, M. L.; CHITCHELKANOVA, A. Y.; TREGGER, D. M. Spintronics: a spin-based electronics vision for the future. **Science**, v. 294, n. 5546, p. 1488–1495, 2001.
- [9] BAIBICH, M. N.; BROTO, J. M.; FERT, A.; VAN DAU, F. N.; PETROFF, F.; ETIENNE, P.; CREUZET, G.; FRIEDERICH, A.; CHAZELAS, J. Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnetic superlattices. **Physical Review Letters**, v. 61, n. 21, p. 2472, 1988.
- [10] BINASCH, G.; GRÜNBERG, P.; SAURENBACH, F.; ZINN, W. Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange. **Physical Review B**, v. 39, n. 7, p. 4828, 1989.
- [11] AZEVEDO, A.; VILELA LEÃO, L. H.; RODRIGUEZ-SUAREZ, R. L.; OLIVEIRA, A. B. D.; REZENDE, S. M. dc effect in ferromagnetic resonance: Evidence of the spin-pumping effect? **Journal of Applied Physics**, v. 97, n. 10, 2005.
- [12] UCHIDA, K.-I.; TAKAHASHI, S.; HARII, K.; IEDA, J.; KOSHIBAE, W.; ANDO, K.; MAEKAWA, S.; SAITOH, E. Observation of the spin Seebeck effect. **Nature**, v. 455, n. 7214, p. 778–781, 2008.

- [13] JOHANSEN, Ø. **Antiferromagnetic insulator spintronics**. 2019. p. 215. Tese (Doutorado em Física) - Norwegian University of Science and Technology, Trondheim, 2019.
- [14] MACDONALD, A. H.; TSOI, M. Antiferromagnetic metal spintronics. **Philosophical Transactions of the Royal Society A**, v. 369, n. 1948, p. 3098–3114, 2011.
- [15] BARTHEM, V. M. T. S.; COLIN, C. V.; MAYAFFRE, H.; JULIEN, M.-H.; GIVORD, D. Revealing the properties of  $\text{Mn}_2\text{Au}$  for antiferromagnetic spintronics. **Nature Communications**, v. 4, n. 1, p. 2892, 2013.
- [16] JUNGWIRTH, T.; MARTI, X.; WADLEY, P.; WUNDERLICH, J. Antiferromagnetic spintronics. **Nature Nanotechnology**, v. 11, n. 3, p. 231–241, 2016.
- [17] ZHANG, W.; JUNGFLEISCH, M. B.; JIANG, W.; PEARSON, J. E.; HOFFMANN, A.; FREIMUTH, F.; MOKROUSOV, Y. Spin Hall effects in metallic antiferromagnets. **Physical Review Letters**, v. 113, n. 19, p. 196602, 2014.
- [18] GOMONAY, O.; JUNGWIRTH, T.; SINOVA, J. Concepts of antiferromagnetic spintronics. **Physica Status Solidi (RRL)**, v. 11, n. 4, p. 1700022, 2017.
- [19] NOGUÉS, J.; SCHULLER, I. K. Exchange bias. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 192, n. 2, p. 203–232, 1999.
- [20] FERMIN, J. R.; LUCENA, M. A.; AZEVEDO, A.; DE AGUIAR, F. M.; REZENDE, S. Measurements of exchange anisotropy in NiFe/NiO films with different techniques. **Journal of Applied Physics**, v. 87, n. 9, p. 6421–6423, 2000.
- [21] REZENDE, S. M. **Fundamentals of magnonics**. Berlin: Springer, 2020. v. 969.
- [22] BALTZ, V.; MANCHON, A.; TSOI, M.; MORIYAMA, T.; ONO, T.; TSERKOVNYAK, Y. Antiferromagnetic spintronics. **Rev. Mod. Phys.**, v. 90, p. 015005, 2018.
- [23] MENDES, J. B. S.; CUNHA, R. O.; ALVES SANTOS, O.; RIBEIRO, P. R. T.; MACHADO, F. L. A.; RODRÍGUEZ-SUÁREZ, R. L.; AZEVEDO, A.; REZENDE, S. M. Large inverse spin Hall effect in the antiferromagnetic metal  $\text{Ir}_{20}\text{Mn}_{80}$ . **Physical Review B**, v. 89, n. 14, p. 140406, 2014.
- [24] COLE, P. H.; INCE, W. J. Equilibrium spin configuration and resonance behavior of  $\text{RbMnF}_3$ . **Physical Review**, v. 150, n. 2, p. 377, 1966.
- [25] INCE, W. J. Coupled antiferromagnetic-nuclear-magnetic resonance in  $\text{RbMnF}_3$ . **Physical Review**, v. 184, n. 2, p. 574, 1969.

- [26] SHIOMI, Y.; LUSTIKOVA, J.; WATANABE, S.; HIROBE, D.; TAKAHASHI, S.; SAITOH, E. Spin pumping from nuclear spin waves. **Nature Physics**, v. 15, n. 1, p. 22–26, 2019.
- [27] BLUNDELL, S. **Magnetism in condensed matter**. Oxford, UK: OUP Oxford, 2001.
- [28] DAVYDOV, A. S. **Quantum mechanics: international series in natural philosophy**. Amsterdam: Elsevier, 1965. v. 1.
- [29] BAYM, G. **Lectures on quantum mechanics**. New York: CRC Press, 1973.
- [30] MORRISH, A. H. **The physical principles of magnetism**. New York: IEEE Magnetism Society, 2001.
- [31] LANDAU, L.; LIFSHITZ, E. On the theory of the dispersion of magnetic permeability in ferromagnetic bodies. In: **Perspectives in Theoretical Physics**. Amsterdam: Elsevier, 1992. p. 51–65. Reprinted from *Physikalische Zeitschrift der Sowjetunion* 8, Part 2, 153, 1935.
- [32] YALÇIN, O. **Ferromagnetic resonance: Theory and applications**. Rijeka, Croatia: BoD–Books on Demand, 2013.
- [33] VONSOVSKII, S. V. **Ferromagnetic resonance: the phenomenon of resonant absorption of a high-frequency magnetic field in ferromagnetic substances**. Oxford, UK: Pergamon Press, 1966.
- [34] DA SILVA JÚNIOR, J. H. **Fenômenos de spintrônica e magnônica em materiais magnéticos**. 2018. p. 266. Tese (Doutorado em Física) - Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2018.
- [35] MAEKAWA, S.; VALENZUELA, S. O.; SAITOH, E.; KIMURA, T. **Spin current**. Oxford, UK: Oxford University Press, 2017. v. 22.
- [36] SHINJO, T. **Nanomagnetism and spintronics**. Amsterdam: Elsevier, 2013.
- [37] ZETTLI, N. **Quantum mechanics: Concepts and applications**. 2. ed. West Sussex, UK: John Wiley & Sons, 2009.
- [38] SALINAS, S. **Introduction to statistical physics**. Berlin: Springer Science & Business Media, 2001.
- [39] HALL, E. H. On a new action of the magnet on electric currents. **American Journal of Mathematics**, v. 2, n. 3, p. 287–292, 1879.

- [40] KARSENTY, A. A comprehensive review of integrated Hall effects in macro-, micro-, nanoscales, and quantum devices. **Sensors**, v. 20, n. 15, p. 4163, 2020.
- [41] DYAKONOV, M. I. Possibility of orienting electron spins with current. **JETP Lett. USSR**, v. 13, p. 467, 1971.
- [42] DYAKONOV, M. I.; PEREL, V. I. Current-induced spin orientation of electrons in semiconductors. **Physics Letters A**, v. 35, n. 6, p. 459–460, 1971.
- [43] HIRSCH, J. E. Spin Hall effect. **Physical Review Letters**, v. 83, n. 9, p. 1834, 1999.
- [44] KATO, Y. K.; MYERS, R. C.; GOSSARD, A. C.; AWSCHALOM, D. D. Observation of the spin Hall effect in semiconductors. **Science**, v. 306, n. 5703, p. 1910–1913, 2004.
- [45] VALENZUELA, S. O.; TINKHAM, M. Direct electronic measurement of the spin Hall effect. **Nature**, v. 442, n. 7099, p. 176–179, 2006.
- [46] SINOVA, J.; VALENZUELA, S. O.; WUNDERLICH, J.; BACK, C.; JUNGWIRTH, T. Spin Hall effects. **Reviews of Modern Physics**, v. 87, n. 4, p. 1213–1260, 2015.
- [47] NISHINAGA, T. **Handbook of crystal growth: fundamentals**. Amsterdam: Elsevier, 2014.
- [48] TOMASZEWSKI, P. E. Jan Czochralski: father of the Czochralski method. **Journal of Crystal Growth**, v. 236, n. 1-3, p. 1–4, 2002.
- [49] PLOVNICK, R. H.; CAMOBRECO, S. J. Preparation and dislocation density determination of large, pure RbMnF<sub>3</sub> and KMnF<sub>3</sub> single crystals. **Materials Research Bulletin**, v. 7, n. 6, p. 573–582, 1972.
- [50] KELLY, P. J.; ARNELL, R. D. Magnetron sputtering: a review of recent developments and applications. **Vacuum**, v. 56, n. 3, p. 159–172, 2000.
- [51] FERREIRA, D. S. M. P. **Estudo de fenômenos envolvendo ondas de spin e interfaces ferro-antiferromagnéticas**. 2018. p. 113. Dissertação (Mestrado em Física) - Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2018.
- [52] Quantum Design Inc. **Physical Property Measurement System Hardware & Options Manual**, 2009.
- [53] ADVANCED RESEARCH SYSTEM. **Laboratory Cryostats**, 2024. Disponível em: <https://www.arscryo.com/sample-in-vacuum>. Acesso em: 19 de nov. de 2024.

- [54] KITTEL, C. **Introduction to solid state physics**. Hoboken, NJ: John Wiley & Sons, 2005.
- [55] HOPPE, R.; LIEBE, W.; DÄHNE, W. Über fluoromanganate der alkalimetalle. **Zeitschrift für anorganische und allgemeine Chemie**, v. 307, n. 5-6, p. 276–289, 1961.
- [56] ALEKSANDROV, K. S.; RESHCHIKOVA, L. M.; BEZNOSIKOV, B. V. Behaviour of the elastic constants of  $\text{KMnF}_3$  single crystals near the transition of puckering. **Physica Status Solidi (B)**, v. 18, n. 1, p. K17–K20, 1966.
- [57] BECKMAN, O.; KNOX, K. Magnetic properties of  $\text{KMnF}_3$ . I. Crystallographic studies. **Physical Review**, v. 121, n. 2, p. 376, 1961.
- [58] COLE, P. H.; COURTNEY, W. E. Uniform mode resonance and spin-wave instability in  $\text{RbMnF}_3$ . **Journal of Applied Physics**, v. 38, n. 3, p. 1278–1279, 1967.
- [59] INCE, W. J. **Magnetic studies of the antiferromagnet  $\text{RbMnF}_3$** . Massachusetts: MIT Lincoln Laboratory, Microwave and Quantum Magnetism Group, Department of Electrical Engineering, 1965.
- [60] TEANEY, D. T.; FREISER, M. J.; STEVENSON, R. W. H. Discovery of a simple cubic antiferromagnet: Antiferromagnetic  $\text{RbMnF}_3$ . **Physical Review Letters**, v. 9, n. 5, p. 212, 1962.
- [61] FRIEBELY, J. S.; INCE, W. J. **Properties of the compounds  $\text{RbMnF}_3$ ,  $\text{KMnF}_3$  and  $\text{CsMnF}_3$** . Cambridge: Lincoln Laboratory Library Report, 1968.
- [62] ORTIZ, J. C. L.; GUERRA, G. A. F.; MACHADO, F. L. A.; REZENDE, S. M. Magnetic anisotropy of antiferromagnetic  $\text{RbMnF}_3$ . **Physical Review B**, v. 90, n. 5, p. 054402, 2014.
- [63] HEEGER, A. J.; TEANEY, D. T.  $\text{Mn}^{55}$  nuclear magnetic resonance in antiferromagnetic  $\text{RbMnF}_3$ . **Journal of Applied Physics**, v. 35, n. 3, p. 846–847, 1964.
- [64] GOVORKOV, S. A.; TULIN, V. A. Nuclear magnetic resonance mode interaction in  $\text{RbMnF}_3$ . **JETP Lett**, v. 25, n. 10, 1977.
- [65] NAGAMIYA, T.; YOSIDA, K.; KUBO, R. Antiferromagnetism. **Advances in Physics**, v. 4, n. 13, p. 1–112, 1955.
- [66] REZENDE, S. M. Introduction to nuclear spin waves in ferro-and antiferromagnets. **Journal of Applied Physics**, v. 132, n. 9, 2022.

- [67] TSERKOVNYAK, Y.; BRATAAS, A.; BAUER, G. E. W. Enhanced Gilbert damping in thin ferromagnetic films. **Physical Review Letters**, v. 88, n. 11, p. 117601, 2002.
- [68] TSERKOVNYAK, Y.; BRATAAS, A.; BAUER, G. E. W. Spin pumping and magnetization dynamics in metallic multilayers. **Physical Review B**, v. 66, n. 22, p. 224403, 2002.
- [69] TSERKOVNYAK, Y.; BRATAAS, A.; BAUER, G. E. W.; HALPERIN, B. I. Nonlocal magnetization dynamics in ferromagnetic heterostructures. **Reviews of Modern Physics**, v. 77, n. 4, p. 1375–1421, 2005.
- [70] SAITOH, E.; UEDA, M.; MIYAJIMA, H.; TATARA, G. Conversion of spin current into charge current at room temperature: Inverse spin-Hall effect. **Applied Physics Letters**, v. 88, n. 18, 2006.
- [71] MOSENDZ, O.; PEARSON, J. E.; FRADIN, F.; BAUER, G. E. W.; BADER, S. D.; HOFFMANN, A. Quantifying spin Hall angles from spin pumping: Experiments and theory. **Physical Review Letters**, v. 104, n. 4, p. 046601, 2010.
- [72] AZEVEDO, A.; VILELA-LEÃO, L. H.; RODRÍGUEZ-SUÁREZ, R. L.; LACERDA SANTOS, A. F.; REZENDE, S. M. Spin pumping and anisotropic magnetoresistance voltages in magnetic bilayers: Theory and experiment. **Physical Review B**, v. 83, n. 14, p. 144402, 2011.
- [73] HOFFMANN, A. Spin Hall effects in metals. **IEEE transactions on magnetics**, v. 49, n. 10, p. 5172–5193, 2013.
- [74] SOUZA, E. C.; ABRÃO, J. E.; CORREA, M. A.; BOHN, F.; GAMINO, M.; REZENDE, S. M. Unveiling the mechanism of spin to charge conversion in the ferroelectric topological crystalline insulator SnTe. **Phys. Rev. B**, v. 110, p. 014444, 2024.
- [75] CHENG, R.; XIAO, J.; NIU, Q.; BRATAAS, A. Spin pumping and spin-transfer torques in antiferromagnets. **Physical Review Letters**, v. 113, n. 5, p. 057601, 2014.
- [76] JOHANSEN, Ø.; BRATAAS, A. Spin pumping and inverse spin Hall voltages from dynamical antiferromagnets. **Physical Review B**, v. 95, n. 22, p. 220408, 2017.
- [77] VAIDYA, P.; MORLEY, S. A.; VAN TOL, J.; LIU, Y.; CHENG, R.; BRATAAS, A.; LEDERMAN, D.; DEL BARCO, E. Subterahertz spin pumping from an insulating antiferromagnet. **Science**, v. 368, n. 6487, p. 160–165, 2020.

- [78] GABRIELYAN, D. A.; VOLKOV, D. A.; KOZLOVA, E. E.; SAFIN, A. R.; KALYABIN, D. V.; KLIMOV, A. A.; PREOBRAZHENSKY, V. L.; STRUGATSKY, M. B.; YAGUPOV, S. V.; MOSKAL, I. E. et al. Microwave spin-pumping from an antiferromagnet  $\text{FeBO}_3$ . **Journal of Physics D: Applied Physics**, v. 57, n. 30, p. 305003, 2024.
- [79] ABRÃO NETO, J. E. **Corrente de spin como sonda para materiais clássicos e quânticos**. 2023. p. 170. Tese (Doutorado em Física) - Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2023.
- [80] FINK, H.; SHALTIEL, D. Nuclear frequency pulling in a Dzialoshinskii-Moriya-type weak ferromagnet:  $\text{MnCO}_3$ . **Physical Review**, v. 136, n. 1A, p. A218, 1964.
- [81] SHALTIEL, D. Nuclear magnetic resonance of  $\text{MnCO}_3$  in the canted spin state. **Physical Review**, v. 142, n. 2, p. 300, 1966.
- [82] MINKIEWICZ, V.; NAKAMURA, A. Direct observation of  $\text{Mn}^{55}$  NMR in antiferromagnetic  $\text{CsMnF}_3$ . **Physical Review**, v. 143, n. 2, p. 361, 1966.
- [83] BEEMAN, D. E.; FINK, H. J.; SHALTIEL, D. Magnetostatic modes in the canted antiferromagnet  $\text{MnCO}_3$ . **Physical Review**, v. 147, n. 2, p. 454, 1966.
- [84] SUHL, H. Effective nuclear spin interactions in ferromagnets. **Physical Review**, v. 109, n. 2, p. 606, 1958.
- [85] NAKAMURA, T. Indirect coupling of nuclear spins in antiferromagnet with particular reference to  $\text{MnF}_2$  at very low temperatures. **Progress of Theoretical Physics**, v. 20, n. 4, p. 542–552, 1958.
- [86] DE GENNES, P. G.; PINCUS, P. A.; HARTMANN-BOUTRON, F.; WINTER, J. M. Nuclear magnetic resonance modes in magnetic material. I. Theory. **Physical Review**, v. 129, n. 3, p. 1105, 1963.
- [87] BLOCKER, T. G. Coupled electron-nuclear magnetostatic modes in magnetic materials. **Physical Review**, v. 154, n. 2, p. 446, 1967.
- [88] RICHARDS, P. M. Nuclear spin-wave relaxation and narrowing of NMR lines in ferro- and antiferromagnets. **Phys. Rev.**, v. 173, p. 581, 1968.
- [89] MOURA, M. A. G.; REZENDE, S. M.; RAGUSA, S. Light scattering by nuclear magnons. **Phys. Rev. B**, v. 9, p. 1062, 1974.
- [90] PAQUETTE, D.; KING, A. R.; JACCARINO, V. Field dependence of the  $^{19}\text{F}$  and  $^{55}\text{Mn}$  nuclear spin-lattice relaxation in antiferromagnetic  $\text{MnF}_2$ . **Phys. Rev. B**, v. 11, p. 1193, 1975.

- [91] KING, A. R.; JACCARINO, V.; REZENDE, S. M. Nuclear magnons and nuclear magnetostatic modes in  $\text{MnF}_2$ . **Phys. Rev. Lett.**, v. 37, p. 533, 1976.
- [92] SOARES, E. A.; REZENDE, S. M. Relaxation rates of nuclear magnons in cubic antiferromagnets. **Phys. Rev. B**, v. 15, p. 4497, 1977.
- [93] DUMESH, B. S. NMR in ferromagnetic  $\text{Fe}_2\text{MnO}_4$  at millidegree temperatures. **JETP Letters**, v. 23, p. 17, 1976.
- [94] CHEKMAREV, V. P.; PETROV, M. P.; PETROV, A. A.; KULIKOV, V. V. Dynamic frequency shift of NMR of nuclei in domain walls. **JETP Letters**, v. 25, p. 165, 1977.
- [95] KOTOV, V. V.; POGORELYI, A. N. Electron-nuclear vibrations in ferromagnetic films with strong coupling between electron and nuclear subsystems. **JETP Letters**, v. 28, p. 574, 1978.
- [96] BOROVNIK-ROMANOV, A. S.; BUN'KOV, Y. M.; DUMESH, B. S.; KURKIN, M. I.; PETROV, M. P.; CHEKMAREV, V. P. The spin echo in systems with a coupled electron-nuclear precession. **Sov. Phys. Usp.**, v. 27, p. 235, 1984.
- [97] ANDRIENKO, A. V.; OZHOGIN, V. I.; SAFONOV, V. L.; YAKUBOVSKIĭ, A. Y. Nuclear spin wave research. **Sov. Phys. Usp.**, v. 34, p. 843, 1991.
- [98] BROWN, R. M.; TYRYSHKIN, A. M.; PORFYRAKIS, K.; GAUGER, E. M.; LOVETT, B. W.; ARDAVAN, A.; LYON, S. A.; BRIGGS, G. A. D.; MORTON, J. J. L. Coherent state transfer between an electron and nuclear spin in  $^{15}\text{N}@C_{60}$ . **Phys. Rev. Lett.**, v. 106, p. 110504, 2011.
- [99] CHATTERJI, T.; HOLDERER, O.; SCHNEIDER, H. Direct evidence for nuclear spin waves in  $\text{Nd}_2\text{CuO}_4$  by high-resolution neutron-spin-echo spectroscopy. **J. Phys.: Condens. Matter**, v. 25, p. 476002, 2013.
- [100] ABDURAKHIMOV, L. V.; BUNKOV, Y. M.; KONSTANTINOV, D. Normal-mode splitting in the coupled system of hybridized nuclear magnons and microwave photons. **Phys. Rev. Lett.**, v. 114, p. 226402, 2015.
- [101] BUNKOV, Y. M.; KONSTANTINOV, D. Features of the coupled nuclear–electron spin precession in the Bose–Einstein condensate of magnons. **JETP Letters**, v. 112, p. 95, 2020.
- [102] JACKSON, D. M.; GANGLOFF, D. A.; BODEY, J. H.; ZAPORSKI, L.; BACHORZ, C.; CLARKE, E.; HUGUES, M.; GALL, C. L.; ATATÜRE, M. Quantum sensing of a coherent single spin excitation in a nuclear ensemble. **Nat. Phys.**, v. 17, p. 585, 2021.

- [103] MEWES, C. L. Spin currents go nuclear. **Nat. Phys.**, v. 15, p. 5, 2019.
- [104] GRIFFITHS, D. J. **Introduction to quantum mechanics**. Cambridge, Inglaterra: Cambridge University Press, 2017.
- [105] NAZAROV, Y. V.; DANON, J. **Advanced quantum mechanics: a practical guide**. Cambridge, Inglaterra: Cambridge University Press, 2013.
- [106] HOLSTEIN, T.; PRIMAKOFF, H. Field dependence of the intrinsic domain magnetization of a ferromagnet. **Physical Review**, v. 58, n. 12, p. 1098, 1940.
- [107] AUERBACH, A. **Interacting electrons and quantum magnetism**. Berlin: Springer Science & Business Media, 1998.
- [108] WHITE, R. M.; FREEDMAN, R.; WOOLSEY, R. B. Theory of the antiferromagnetic-resonance linewidth of  $\text{MnF}_2$ . **Physical Review B**, v. 10, n. 3, p. 1039, 1974.
- [109] REZENDE, S. M.; WHITE, R. M. Multimagnon theory of antiferromagnetic resonance relaxation. **Physical Review B**, v. 14, n. 7, p. 2939, 1976.
- [110] AHARONI, A. **Introduction to the theory of ferromagnetism**. Oxford, UK: Oxford University Press, 2000. v. 109.
- [111] WOOLSEY, R. B.; WHITE, R. M. Theory of spin-wave relaxation in antiferromagnets. **Physical Review**, v. 188, n. 2, p. 813, 1969.
- [112] AHARONY, A. Critical behavior of anisotropic cubic systems. **Physical Review B**, v. 8, n. 9, p. 4270, 1973.
- [113] SOARES, E. A. **Taxas de relaxação de magnons eletrônicos e nucleares em antiferromagnetos**. 1975. p. 129. Tese (Doutorado em Física) - Pontifícia Universidade Católica do Rio de Janeiro, Rio de Janeiro, 1975.
- [114] BANNASCH, G.; SELKE, W. Heisenberg antiferromagnets with exchange and cubic anisotropies. **Journal of Physics: Conference Series**, v. 200, n. 2, p. 022057, 2010.
- [115] HINDERKS, L. W.; RICHARDS, P. M. Excitation of electronic and nuclear spin waves in a flopped antiferromagnet. **Physical Review**, v. 183, n. 2, p. 575, 1969.
- [116] STANCIL, D. D.; PRABHAKAR, A. **Spin waves: Theory and applications**. Berlin: Springer, 2009. v. 5.

- [117] WHITE, R. M.; SPARKS, M.; ORTENBURGER, I. Diagonalization of the antiferromagnetic magnon-phonon interaction. **Physical Review**, v. 139, n. 2A, p. A450, 1965.
- [118] REZENDE, S. M.; WHITE, R. M. Spin-wave lifetimes in antiferromagnetic  $\text{RbMnF}_3$ . **Physical Review B**, v. 18, n. 5, p. 2346, 1978.
- [119] HINDERKS, L. W. Investigations of nuclear and electronic spin waves by parallel pumping. Technical report, Univ. of Kansas, Lawrence, KS (United States), 1970.
- [120] HARRIS, A. B.; KUMAR, D.; HALPERIN, B. I.; HOHENBERG, P. C. Dynamics of an antiferromagnet at low temperatures: spin-wave damping and hydrodynamics. **Physical Review B**, v. 3, n. 3, p. 961, 1971.
- [121] BOHM, D.; PINES, D. A collective description of electron interactions. I. Magnetic interactions. **Physical Review**, v. 82, n. 5, p. 625, 1951.
- [122] PINES, D.; BOHM, D. A collective description of electron interactions: II. Collective vs individual particle aspects of the interactions. **Physical Review**, v. 85, n. 2, p. 338, 1952.
- [123] BOHM, D.; PINES, D. A collective description of electron interactions: III. Coulomb interactions in a degenerate electron gas. **Physical Review**, v. 92, n. 3, p. 609, 1953.
- [124] MACHADO, F. L. A.; RIBEIRO, P. R. T.; HOLANDA, J.; RODRÍGUEZ-SUÁREZ, R. L.; AZEVEDO, A.; REZENDE, S. M. Spin-flop transition in the easy-plane antiferromagnet nickel oxide. **Physical Review B**, v. 95, n. 10, p. 104418, 2017.
- [125] BAUER, G. E.; SAITOH, E.; VAN WEES, B. J. Spin caloritronics. **Nature materials**, v. 11, n. 5, p. 391–399, 2012.
- [126] BOONA, S. R.; MYERS, R. C.; HEREMANS, J. P. Spin caloritronics. **Energy & Environmental Science**, v. 7, n. 3, p. 885–910, 2014.
- [127] YU, H.; BRECHET, S. D.; ANSERMET, J.-P. Spin caloritronics, origin and outlook. **Physics Letters A**, v. 381, n. 9, p. 825–837, 2017.
- [128] MAEKAWA, S.; KIKKAWA, T.; CHUDO, H.; IEDA, J.; SAITOH, E. Spin and spin current—from fundamentals to recent progress. **Journal of Applied Physics**, v. 133, n. 2, 2023.
- [129] UCHIDA, K.-I.; XIAO, J.; ADACHI, H.; OHE, J.-I.; TAKAHASHI, S.; IEDA, J.; OTA, T.; KAJIWARA, Y.; UMEZAWA, H.; KAWAI, H. et al. Spin Seebeck insulator. **Nature Materials**, v. 9, n. 11, p. 894–897, 2010.

- [130] UCHIDA, K.; ISHIDA, M.; KIKKAWA, T.; KIRIHARA, A.; MURAKAMI, T.; SAITOH, E. Longitudinal spin Seebeck effect: from fundamentals to applications. **Journal of Physics: Condensed Matter**, v. 26, n. 34, p. 343202, 2014.
- [131] XIAO, J.; BAUER, G. E. W.; UCHIDA, K. C.; SAITOH, E.; MAEKAWA, S. Theory of magnon-driven spin Seebeck effect. **Physical Review B**, v. 81, n. 21, p. 214418, 2010.
- [132] ADACHI, H.; UCHIDA, K.; SAITOH, E.; MAEKAWA, S. Theory of the spin Seebeck effect. **Reports on Progress in Physics**, v. 76, n. 3, p. 036501, 2013.
- [133] HOFFMAN, S.; SATO, K.; TSEKOVNYAK, Y. Landau-Lifshitz theory of the longitudinal spin Seebeck effect. **Physical Review B**, v. 88, n. 6, p. 064408, 2013.
- [134] REZENDE, S. M.; RODRÍGUEZ-SUÁREZ, R. L.; CUNHA, R. O.; RODRIGUES, A. R.; MACHADO, F. L. A.; GUERRA, G. A. F.; ORTIZ, J. C. L.; AZEVEDO, A. Magnon spin-current theory for the longitudinal spin-Seebeck effect. **Physical Review B**, v. 89, n. 1, p. 014416, 2014.
- [135] REZENDE, S. M.; RODRÍGUEZ-SUÁREZ, R. L.; AZEVEDO, A. Diffusive magnonic spin transport in antiferromagnetic insulators. **Physical Review B**, v. 93, n. 5, p. 054412, 2016.
- [136] REZENDE, S. M.; AZEVEDO, A.; RODRÍGUEZ-SUÁREZ, R. L. Magnon diffusion theory for the spin Seebeck effect in ferromagnetic and antiferromagnetic insulators. **Journal of Physics D: Applied Physics**, v. 51, n. 17, p. 174004, 2018.
- [137] COSTA, S. S.; SAMPAIO, L. C. Recent progress in the spin Seebeck and spin Peltier effects in insulating magnets. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 547, p. 168773, 2022.
- [138] UCHIDA, K.-I.; ADACHI, H.; OTA, T.; NAKAYAMA, H.; MAEKAWA, S.; SAITOH, E. Observation of longitudinal spin-Seebeck effect in magnetic insulators. **Applied Physics Letters**, v. 97, n. 17, 2010.
- [139] KIKKAWA, T.; SAITOH, E. Spin Seebeck effect: Sensitive probe for elementary excitation, spin correlation, transport, magnetic order, and domains in solids. **Annual Review of Condensed Matter Physics**, v. 14, n. 1, p. 129–151, 2023.
- [140] SEKI, S.; IDEUE, T.; KUBOTA, M.; KOZUKA, Y.; TAKAGI, R.; NAKAMURA, M.; KANEKO, Y.; KAWASAKI, M.; TOKURA, Y. Thermal generation of spin current in an antiferromagnet. **Physical Review Letters**, v. 115, n. 26, p. 266601, 2015.

- [141] WU, S. M.; ZHANG, W.; AMIT, K. C.; BORISOV, P.; PEARSON, J. E.; JIANG, J. S.; LEDERMAN, D.; HOFFMANN, A.; BHATTACHARYA, A. Antiferromagnetic spin Seebeck effect. **Physical Review Letters**, v. 116, n. 9, p. 097204, 2016.
- [142] HOLANDA, J.; MAIOR, D. S.; ALVES SANTOS, O.; VILELA-LEÃO, L. H.; MENDES, J. B. S.; AZEVEDO, A.; RODRÍGUEZ-SUÁREZ, R. L.; REZENDE, S. M. Spin Seebeck effect in the antiferromagnet nickel oxide at room temperature. **Applied Physics Letters**, v. 111, n. 17, 2017.
- [143] LI, J.; SHI, Z.; ORTIZ, V. H.; ALDOSARY, M.; CHEN, C.; AJI, V.; WEI, P.; SHI, J. Spin Seebeck effect from antiferromagnetic magnons and critical spin fluctuations in epitaxial FeF<sub>2</sub> films. **Physical Review Letters**, v. 122, n. 21, p. 217204, 2019.
- [144] RIBEIRO, P. R. T.; MACHADO, F. L. A.; GAMINO, M.; AZEVEDO, A.; REZENDE, S. M. Spin Seebeck effect in antiferromagnet nickel oxide in wide ranges of temperature and magnetic field. **Physical Review B**, v. 99, n. 9, p. 094432, 2019.
- [145] DE LIMA, J. D. M.; RIBEIRO, P. R. T.; MACHADO, F. L. A.; REZENDE, S. M. Enhanced spin Seebeck effect in the paramagnetic phase of the three-dimensional Heisenberg antiferromagnet RbMnF<sub>3</sub>. **Physical Review B**, v. 107, n. 14, p. L140406, 2023.
- [146] BUI, C. T.; RIVADULLA, F. Anomalous and planar Nernst effects in thin films of the half-metallic ferromagnet La<sub>2/3</sub>Sr<sub>1/3</sub> MnO<sub>3</sub>. **Physical Review B**, v. 90, n. 10, p. 100403, 2014.
- [147] IGUCHI, R.; UCHIDA, K.-I.; DAIMON, S.; SAITOH, E. Concomitant enhancement of the longitudinal spin Seebeck effect and the thermal conductivity in a Pt/YIG/Pt system at low temperatures. **Physical Review B**, v. 95, n. 17, p. 174401, 2017.
- [148] GUSTAFSON, J.; WALKER, C. T. Thermal conductivity in two simple antiferromagnets: RbMnF<sub>3</sub> and MnF<sub>2</sub>. **Physical Review B**, v. 8, n. 7, p. 3309, 1973.
- [149] OHNUMA, Y.; ADACHI, H.; SAITOH, E.; MAEKAWA, S. Spin Seebeck effect in antiferromagnets and compensated ferrimagnets. **Physical Review B**, v. 87, n. 1, p. 014423, 2013.
- [150] REZENDE, S. M.; RODRÍGUEZ-SUÁREZ, R. L.; AZEVEDO, A. Theory of the spin Seebeck effect in antiferromagnets. **Physical Review B**, v. 93, n. 1, p. 014425, 2016.
- [151] WU, S. M.; PEARSON, J. E.; BHATTACHARYA, A. Paramagnetic spin Seebeck effect. **Physical Review Letters**, v. 114, n. 18, p. 186602, 2015.

- [152] YAMAMOTO, Y.; ICHIOKA, M.; ADACHI, H. Antiferromagnetic spin Seebeck effect across the spin-flop transition: A stochastic Ginzburg-Landau simulation. **Physical Review B**, v. 105, n. 10, p. 104417, 2022.
- [153] OYANAGI, K.; TAKAHASHI, S.; KIKKAWA, T.; SAITOH, E. Mechanism of paramagnetic spin Seebeck effect. **Physical Review B**, v. 107, n. 1, p. 014423, 2023.
- [154] FIDRYSIK, M.; SPAŁEK, J. Stable high-temperature paramagnons in a three-dimensional antiferromagnet near quantum criticality: Application to  $\text{TlCuCl}_3$ . **Physical Review B**, v. 95, n. 17, p. 174437, 2017.
- [155] ZHENG, Y.; LU, T.; POLASH, M. M. H.; RASOULIANBOROUJENI, M.; LIU, N.; MANLEY, M. E.; DENG, Y.; SUN, P. J.; CHEN, X. L.; HERMANN, R. P. et al. Paramagnon drag in high thermoelectric figure of merit Li-doped MnTe. **Science Advances**, v. 5, n. 9, 2019.
- [156] ZHANG, S. S.-L.; ZHANG, S. Spin convertance at magnetic interfaces. **Physical Review B**, v. 86, n. 21, p. 214424, 2012.
- [157] ZHANG, S. S.-L.; ZHANG, S. Magnon mediated electric current drag across a ferromagnetic insulator layer. **Physical Review Letters**, v. 109, n. 9, p. 096603, 2012.
- [158] ATKINSON, K. **An introduction to numerical analysis**. West Sussex, UK: John Wiley & Sons, 1991.
- [159] DE LIMA, J. D. M.; SOUZA, E. C.; REZENDE, S. M. Theory for the spin Seebeck effect in the spin-flop phase of the Heisenberg antiferromagnet  $\text{RbMnF}_3$ . **Physical Review B**, v. 110, n. 14, p. 144438, 2024.
- [160] MEIKLEJOHN, W. H.; BEAN, C. P. New magnetic anisotropy. **Physical Review**, v. 102, n. 5, p. 1413, 1956.
- [161] DIENY, B.; SPERIOSU, V. S.; PARKIN, S. S. P.; GURNEY, B. A.; WILHOIT, D. R.; MAURI, D. Giant magnetoresistive in soft ferromagnetic multilayers. **Physical Review B**, v. 43, n. 1, p. 1297, 1991.
- [162] REZENDE, S. M.; AZEVEDO, A.; LUCENA, M. A.; DE AGUIAR, F. M. Anomalous spin-wave damping in exchange-biased films. **Physical Review B**, v. 63, n. 21, p. 214418, 2001.
- [163] DE ALMEIDA, J. R. L.; REZENDE, S. M. Microscopic model for exchange anisotropy. **Physical Review B**, v. 65, n. 9, p. 092412, 2002.

- [164] REZENDE, S. M.; AZEVEDO, A.; DE AGUIAR, F. M.; FERMIN, J. R.; EGE-LHOFF JR, W. F.; PARKIN, S. S. P. Three-layer model for exchange anisotropy. **Physical Review B**, v. 66, n. 6, p. 064109, 2002.
- [165] NOGUÉS, J.; SORT, J.; LANGLAIS, V.; SKUMRYEV, V.; SURIÑACH, S.; MUÑOZ, J. S.; BARÓ, M. D. Exchange bias in nanostructures. **Physics Reports**, v. 422, n. 3, p. 65–117, 2005.
- [166] O'GRADY, K.; FERNANDEZ-OUTON, L. E.; VALLEJO-FERNANDEZ, G. A new paradigm for exchange bias in polycrystalline thin films. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 322, n. 8, p. 883–899, 2010.
- [167] RODRÍGUEZ-SUÁREZ, R. L.; VILELA-LEÃO, L.; BUENO, T.; OLIVEIRA, A. B.; DE ALMEIDA, J. R. L.; LANDEROS, P.; REZENDE, S. M.; AZEVEDO, A. Critical thickness investigation of magnetic properties in exchange-coupled bilayers. **Physical Review B**, v. 83, n. 22, p. 224418, 2011.
- [168] ZHANG, W.; KRISHNAN, K. M. Epitaxial exchange-bias systems: From fundamentals to future spin-orbitronics. **Materials Science and Engineering: R: Reports**, v. 105, p. 1–20, 2016.
- [169] MERINO, I. L. C. **Fenômenos de exchange bias e exchange spring em tricamadas NiFe/IrMn/Co: A influência da textura cristalográfica da camada IrMn**. 2013. p. 190. Tese (Doutorado em Física) - Universidade Federal do Espírito Santo, Vitória-ES, 2013.
- [170] NOGUÉS, J.; LEDERMAN, D.; MORAN, T. J.; SCHULLER, I. K. Positive exchange bias in FeF<sub>2</sub>-Fe bilayers. **Phys. Rev. Lett.**, v. 76, p. 4624, 1996.
- [171] MISHRA, S. K.; RADU, F.; DÜR, H. A.; EBERHARDT, W. Training-induced positive exchange bias in NiFe/IrMn bilayers. **Phys. Rev. Lett.**, v. 102, p. 177208, 2009.
- [172] FULARA, H.; CHAUDHARY, S.; KASHYAP, S. C.; PANDYA, D. K. Enhancement of exchange bias and training effect in ion-beam sputtered Fe<sub>46</sub>Mn<sub>54</sub>/Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub> bilayers. **J. Appl. Phys.**, v. 110, p. 093916, 2011.
- [173] KNELLER, E. F.; HAWIG, R. The exchange-spring magnet: a new material principle for permanent magnets. **IEEE Trans. Mag.**, v. 27, p. 3588, 1991.
- [174] TAYADE, R. **Theoretical and experimental contribution to the study of exchange-spring magnets**. 2014. p. 161. Tese (Doutorado em Física) - École normale supérieure de Cachan-ENS Cachan, Gif-sur-Yvette, France, 2014.

- [175] MONTEIRO, P. M. S.; SCHMOOL, D. S. Magnetization dynamics in exchange-coupled spring systems with perpendicular anisotropy. **Physical Review B**, v. 81, n. 21, p. 214439, 2010.
- [176] GUO, Z.; YANG, X.; DENG, J.; YAN, B.; ZHENG, J.; DING, J.; LI, J.; ZHU, B.; CHEN, S.; OU-YANG, J. et al. Electric field control of the exchange spring effect in perpendicularly magnetized FePt/NiFe bilayers. **Journal of Alloys and Compounds**, v. 687, p. 204–210, 2016.
- [177] COEHOORN, R.; DE MOOIJ, D. B.; WAARD, C. D. Meltspun permanent magnet materials containing Fe<sub>3</sub>B as the main phase. **J. Mag. Mag. Mat.**, v. 80, p. 101, 1989.
- [178] COEY, J. M. D.; SKOMSKI, R. New magnets from interstitial intermetallics. **Phys. Scripta**, v. T49A, p. 315, 1993.
- [179] FULLERTON, E. E.; JIANG, J. S.; BADER, S. D. Hard/soft magnetic heterostructures: model exchange-spring magnets. **J. Mag. Mag. Mat.**, v. 200, p. 392, 1999.
- [180] COEY, J. M. D. Permanent magnetism. **Solid State Commun.**, v. 102, p. 101, 1997.
- [181] ZENG, H.; LI, J.; LIU, J. P.; WANG, Z. L.; ZHONG, L.; SUN, S. Exchange-coupled nanocomposite magnets by nanoparticle self-assembly. **Nature**, v. 420, p. 395, 2002.
- [182] SOARES, J. M.; CABRAL, F. A. O.; DE ARAÚJO, J. H.; MACHADO, F. L. A. Exchange-spring behavior in nanopowders of CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>-CoFe<sub>2</sub>. **Appl. Phys. Lett.**, v. 98, p. 072502, 2011.
- [183] SOARES, J. M.; CONCEIÇÃO, O. L. A.; MACHADO, F. L. A.; PRAKASH, A.; RADHA, S.; NIGAM, A. K. Magnetic couplings in CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/FeCo-FeO core-shell nanoparticles. **J. Mag. Mag. Mat.**, v. 374, p. 192, 2015.
- [184] LIU, J. P.; LUO, C. P.; LIU, Y.; SELLMYER, D. J. High energy products in rapidly annealed nanoscale Fe/Pt multilayers. **Appl. Phys. Lett.**, v. 72, p. 483, 1998.
- [185] VIART, N.; HASSAN, R. S.; MÉNY, C.; PANISSOD, P.; ULHAQ-BOUILLET, C.; LOISON, J. L.; VERSINI, G.; HUBER, F.; POURROY, G. Diversity of the magnetic coupling behaviors in the CoFe<sub>2</sub>/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> system. **Appl. Phys. Lett.**, v. 86, p. 192514, 2005.
- [186] DAVIES, J. E.; HELLWIG, O.; FULLERTON, E. E.; JIANG, J. S.; BADER, S. D.; ZIMÁNYI, G. T.; LIU, K. Anisotropy dependence of irreversible switching in

- Fe/SmCo and FeNi/FePt exchange spring magnet films. **Appl. Phys. Lett.**, v. 86, p. 262503, 2005.
- [187] FIX, T.; COLIS, S.; SAUVET, K.; LOISON, J. L.; VERSINI, G.; POURROY, G.; DINIA, A. Exchange coupling in NiO/CoFe<sub>2</sub> and CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/CoFe<sub>2</sub> systems grown by pulsed laser deposition. **J. Appl. Phys.**, v. 99, p. 043907, 2006.
- [188] CHADDHA, G.; SEEHRA, M. S. Magnetization process and principal magnetic susceptibilities in RbMnF<sub>3</sub>. **Solid State Commun.**, v. 44, p. 1097, 1982.
- [189] NÉEL, L. Magnetism and the local molecular field. In: **Nobel Lectures Physics 1963-1970**. Amsterdam: Elsevier, 1972.
- [190] INCE, W. J.; PLATZKER, A. Antiferromagnetic domains in RbMnF<sub>3</sub>. **Phys. Rev.**, v. 175, p. 650, 1968.
- [191] SPANKE, D.; SOLINUS, V.; KNABBEN, D.; HILLEBRECHT, F. U.; CICCACCI, F.; GREGORATTI, L.; MARSÌ, M. Evidence for in-plane antiferromagnetic domains in ultrathin NiO films. **Phys. Rev. B**, v. 58, p. 5201, 1998.
- [192] BODE, M.; VEDMEDENKO, E. Y.; KUBETZKA, A.; FERRIANI, P.; HEINZE, S.; WIESENDANKER, R. Atomic spin structure of antiferromagnetic domain walls. **Nat. Mater.**, v. 5, p. 477, 2006.
- [193] SÄNGER, I.; PAVLOV, V. V.; BAYER, M.; FIEBIG, M. Distribution of antiferromagnetic spin and twin domains in NiO. **Phys. Rev. B**, v. 74, p. 144401, 2006.
- [194] BEZENCENET, O.; BONAMY, D.; BELKHOUE, R.; OHRESSER, P.; BARBIER, A. Origin and tailoring of the antiferromagnetic domain structure in  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin films unraveled by statistical analysis of dichroic spectromicroscopy (X-Ray photoemission electron microscopy) images. **Phys. Rev. Lett.**, v. 106, p. 107201, 2011.
- [195] ŽELEZNÝ, J.; GAO, H.; VÝBORNÝ, K.; ZEMEN, J.; MAŠEK, J.; MANCHON, A.; WUNDERLICH, J.; SINOVA, J.; JUNGWIRTH, T. Relativistic Néel-order fields induced by electrical current in antiferromagnets. **Phys. Rev. Lett.**, v. 113, p. 157201, 2014.
- [196] CHENG, R.; DANIELS, M. W.; ZHU, J.-G.; XIAO, D. Ultrafast switching of antiferromagnets via spin-transfer torque. **Phys. Rev. B**, v. 91, p. 064423, 2015.
- [197] WADLEY, P. et al. Electrical switching of an antiferromagnet. **Science**, v. 351, p. 587, 2016.

- 
- [198] GRZYBOWSKI, M. J.; WADLEY, P.; EDMONDS, K. W.; BEARDSLEY, R.; HILLS, V.; CAMPION, R. P.; GALLAGHER, B. L.; CHAUHAN, J. S.; NOVAK, V.; JUNGWIRTH, T.; MACCHEROZZI, F.; DHESI, S. S. Imaging current-induced switching of antiferromagnetic domains in CuMnAs. **Phys. Rev. Lett.**, v. 118, p. 057701, 2017.
- [199] TÓTH, B.; KOCSIS, V.; TOKUNAGA, Y.; TAGUCHI, Y.; TOKURA, Y.; BORDÁCS, S. Imaging antiferromagnetic domains in LiCoPO<sub>4</sub> via the optical magnetoelectric effect. **Phys. Rev. B**, v. 110, p. L100405, 2024.

## APÊNDICE A – CALIBRAÇÃO DOS TERMÔMETROS CERNOX

Para a calibração dos termômetros Cernox (fabricados pela Lake Shore), fez-se medidas da resistência do dispositivo em função da temperatura utilizando o modo de resistividade do PPMS. A temperatura  $T$  foi variada de 300 K até 5 K, com intervalo de 1 K e com a taxa de 1 K/min, enquanto a resistência  $R$  foi medida utilizando a técnica de quatro pontas. Como deseja-se saber o valor de temperatura correspondente a um determinado valor de resistência medido no Cernox, é necessário obter uma expressão para  $T$  em função de  $R$ .

Primeiro calcula-se  $x = \ln(R)$  e  $y = \ln(T)$  para os valores experimentais, e em seguida deve-se fazer um ajuste polinomial do tipo

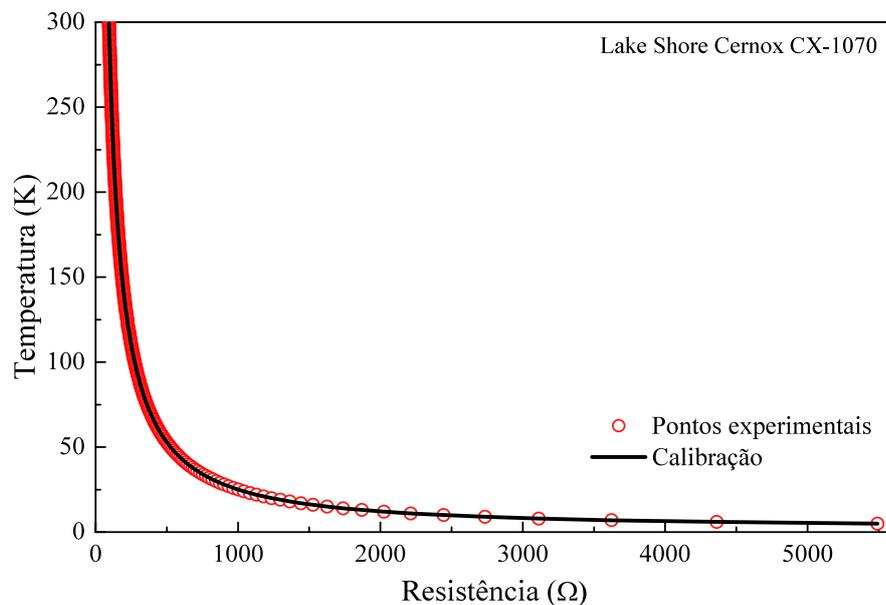
$$y = \sum_n a_n x^n. \quad (\text{A.1})$$

Obtém-se finalmente a temperatura fazendo

$$T = \exp[a_0 + a_1 \ln(R) + a_2 (\ln(R))^2 + a_3 (\ln(R))^3 + \dots], \quad (\text{A.2})$$

com os coeficientes  $a_n$  obtidos a partir do ajuste. A figura 56 mostra a curva de calibração para o Cernox CX-1070, para o qual obtiveram-se os coeficientes  $a_0 = 42,39177097$ ,  $a_1 = -30,65371736$ ,  $a_2 = 11,21423240$ ,  $a_3 = -2,22889294$ ,  $a_4 = 0,24659298$ ,  $a_5 = -0,01451156$  e  $a_6 = 0,00035823$ . O mesmo procedimento foi realizado para os demais termômetros Cernox utilizados neste trabalho.

Figura 56 – Curva de calibração do Cernox CX-1070 obtida por meio do ajuste com os valores experimentais.



Fonte: o autor, 2025.

**APÊNDICE B – CÓDIGO EM MAPLE PARA A TEORIA DE DIFUSÃO  
DE MÁGNONS DO EFEITO SEEBECK DE SPIN**

```

> restart: Digits := 10:

> with(Student[MultivariateCalculus]): with(Student[Calculus1]): with(
    Units[Simple]): with(plots): with(Statistics):

> # Maple code: SSE theory for RbMnF3 (Jul 24, 2024)

>

> ## Numeric values
num_parts := 50: # For integrals
int_method := simpson:
hbar := 1.05457266*10^(-27)*Unit('erg'*'s'):
gamma0 := 1.76*10^7*Unit(('Hz')/('Oe')):
kB := 1.380658*10^(-16)*Unit(('erg')/('K')):
qe := 1.602176634*10^(-19)*Unit('C'):
lambdaN := 3.7*Unit('nm'):
thetaSH := 0.05:
w := 1.2*Unit('mm'):
tN := 10*Unit('nm'):
tAF := 1.0*Unit('mm'):
a := 4.24*Unit('angstrom'):
km := Pi/a:
HA := 4.59*Unit('Oe'):
HE := 816000*Unit('Oe'):
H := 60000*Unit('Oe'):
HN := (9.43/T)*Unit('K*Oe'):
TN := 82.6*Unit(K):
tau := H/(2*HE): # For the spin-flop phase

>

> ## Relaxation rate (the temperature dependency is in FT)
etaa := q:
etab := etaa:

>

```

```

> ## Loop to calculate S0
for i from 1 to 83 do:
T := i*Unit('K'):
### Parameters
Aq := gamma0*H*sin(tau) + gamma0*HE*cos(2*tau) + gamma0*HA*3/8 + gamma0*
  HN:
Bq := -cos(Pi*q/2)*gamma0*HE*cos(tau)^2:
Cq := -gamma0*HA*9/8:
Dq := cos(Pi*q/2)*gamma0*HE*sin(tau)^2:
### Frequencies
omegaa(q) := sqrt((Aq - Dq)^2 - (Bq - Cq)^2):
omegab(q) := sqrt((Aq + Dq)^2 - (Bq + Cq)^2):
va := diff(omegaa(q), q):
vb := diff(omegab(q), q):
xa := hbar*omegaa(q)/(kB*T):
xb := hbar*omegab(q)/(kB*T):
### B integrals
B0a := ApproximateInt(xa^0*q^2/(exp(xa) - 1), q = 0..1, method =
  int_method, partition = num_parts):
B0b := ApproximateInt(xb^0*q^2/(exp(xb) - 1), q = 0..1, method =
  int_method, partition = num_parts):
B1a := ApproximateInt(xa^1*q^2/(exp(xa) - 1), q = 0..1, method =
  int_method, partition = num_parts):
B1b := ApproximateInt(xb^1*q^2/(exp(xb) - 1), q = 0..1, method =
  int_method, partition = num_parts):
### C integrals
C0a := ApproximateInt((va^2/etaa)*xa^0*q^2/(exp(xa) - 1), q = 0..1, method
  = int_method, partition = num_parts):
C0b := ApproximateInt((vb^2/etab)*xb^0*q^2/(exp(xb) - 1), q = 0..1, method
  = int_method, partition = num_parts):
C1a := ApproximateInt((va^2/etaa)*xa^1*q^2*exp(xa)/(exp(xa) - 1)^2, q =
  0..1, method = int_method, partition = num_parts):
C1b := ApproximateInt((vb^2/etab)*xb^1*q^2*exp(xb)/(exp(xb) - 1)^2, q =
  0..1, method = int_method, partition = num_parts):
### S0
S0[i] := convert(convert(evalf((gamma0*kB*km^2*qe*w*lambdaN*thetaSH*tanh(
  tN/(2*lambdaN)))/(2*Pi^3))*(((B1a-B1b)*(C1a-C1b))/(sqrt((B0a-B0b)*(C0a-
  C0b))))), 'units', '(pA*cm/K)/(s/(G*cm^2))'), unit_free):
end do:

```

```
>

> ## Plot points S0
S0_matrix := convert([seq([i,S0[i]],i=1..83)], Matrix):
plot_S0 := pointplot(S0_matrix, symbol = circle, symbolsize = 20, color =
  "Black", axes = boxed, labels = ["T (K)", "S0 ((pA*cm/K)/(s/(G*cm^2))
  "], labeldirections = [horizontal, vertical], thickness = 3):
plots[display](plot_S0);

>

> ## Import experimental data
filename := "RbMnF3-Pt_sample-B_SSSE.txt":
exp_data := ImportMatrix(cat(filename)):
#plot_point := pointplot(exp_data, symbol = circle, symbolsize = 20,
  color = "Black", axes = boxed, labels = ["T (K)", "Ssse (pA cm/K)"],
  labeldirections = [horizontal, vertical], thickness = 3):
#plots[display](plot_point):

>

> ## Loop to calculate FT
for i from 1 to 10 do:
FT_num[i] := exp_data[i,2]/S0[exp_data[i,1]]:
end do:

>

> ## Plot points FT
FT_matrix := convert([seq([exp_data[i,1],FT_num[i]],i=1..10)], Matrix):
plot_FT := pointplot(FT_matrix, symbol = circle, symbolsize = 20, color =
  "Black", axes = boxed, labels = ["T (K)", "FT (s/(G*cm^2))"],
  labeldirections = [horizontal, vertical], thickness = 3):
plots[display](plot_FT);

>

> ## Approximation for FT
T := t*Unit(K):
FT := convert(1/(a0 + a1*(T/TN)^1 + a2*(T/TN)^2)*Unit(s/(G*cm^2)),
  unit_free):

>
```

```

> # Numerical fit

> fit := NonlinearFit(FT, FT_matrix, t, initialvalues = [a0 = 1, a1 = 1,
  a2 = 1], iterationlimit = 5000, output = [parametervalues,
  residualstandarddeviation, residualmeansquare, residualsumofsquares]);
a0 := rhs(fit[1][1]);
a1 := rhs(fit[1][2]);
a2 := rhs(fit[1][3]);
residualstandarddeviation := fit[2];
residualmeansquare := fit[3];
residualsumofsquares := fit[4];

>

> fitplot := plot(FT, t = 0..83, thickness = 3):
plots[display](fitplot, plot_FT, axes = boxed, labels = ["T (K)", "FT (s
  /(G*cm^2))"], labeldirections = [horizontal, vertical], thickness = 3,
  color = blue);

>

> i:= 'i':
## Loop to calculate SSSE
for i from 1 to 83 do:
T := i*Unit('K'):
### Parameters
Aq := gamma0*H*sin(tau) + gamma0*HE*cos(2*tau) + gamma0*HA*3/8 + gamma0*
  HN:
Bq := -cos(Pi*q/2)*gamma0*HE*cos(tau)^2:
Cq := -gamma0*HA*9/8:
Dq := cos(Pi*q/2)*gamma0*HE*sin(tau)^2:
### Frequencies
omegaa(q) := sqrt((Aq - Dq)^2 - (Bq - Cq)^2):
omegab(q) := sqrt((Aq + Dq)^2 - (Bq + Cq)^2):
va := diff(omegaa(q), q):
vb := diff(omegab(q), q):
xa := hbar*omegaa(q)/(kB*T):
xb := hbar*omegab(q)/(kB*T):
### B integrals
B0a := ApproximateInt(xa^0*q^2/(exp(xa) - 1), q = 0..1, method =
  int_method, partition = num_parts):

```

```

B0b := ApproximateInt(xb^0*q^2/(exp(xb) -1), q = 0..1, method =
  int_method, partition = num_parts):
B1a := ApproximateInt(xa^1*q^2/(exp(xa) -1), q = 0..1, method =
  int_method, partition = num_parts):
B1b := ApproximateInt(xb^1*q^2/(exp(xb) -1), q = 0..1, method =
  int_method, partition = num_parts):
### C integrals
C0a := ApproximateInt((va^2/etaa)*xa^0*q^2/(exp(xa) -1), q = 0..1, method
  = int_method, partition = num_parts):
C0b := ApproximateInt((vb^2/etab)*xb^0*q^2/(exp(xb) -1), q = 0..1, method
  = int_method, partition = num_parts):
C1a := ApproximateInt((va^2/etaa)*xa^1*q^2*exp(xa)/(exp(xa) -1)^2, q =
  0..1, method = int_method, partition = num_parts):
C1b := ApproximateInt((vb^2/etab)*xb^1*q^2*exp(xb)/(exp(xb) -1)^2, q =
  0..1, method = int_method, partition = num_parts):
### Parameters
FT_fitted[i] := convert(1/(a0 + a1*(i*Unit('K')/TN)^1 + a2*(i*Unit('K')/
  TN)^2)*Unit(s/(G*cm^2)), unit_free):
S0[i] := convert(convert(evalf((gamma0*kB*km^2*qe*w*lambdaN*thetaSH*tanh(
  tN/(2*lambdaN))/(2*Pi^3))*((B1a-B1b)*(C1a-C1b))/(sqrt((B0a-B0b)*(C0a-
  C0b))))), 'units', '(pA*cm/K)/(s/(G*cm^2))'), unit_free):
SSE_calc[i] := FT_fitted[i]*S0[i]:
end do:

>

> ## Plot points SSSE
SSE_matrix := convert([seq([i,SSE_calc[i]],i=1..83)], Matrix):
plot_SSE := plot(SSE_matrix):
plot_exp := pointplot(exp_data, symbol = circle, symbolsize = 25, color =
  "Black", axes = boxed, labels = ["T (K)", "Ssse (pA cm/K)"],
  labeldirections = [horizontal, vertical], thickness = 3):
plots[display](plot_exp, plot_SSE, axes = boxed, labels = ["T (K)", "Ssse
  (pA cm/K)"], labeldirections = [horizontal, vertical], thickness = 5,
  color = blue);

> ## Export data to file
ExportMatrix("2024-07-26-RbMnF3-SSE_sample-B-theory.txt", SSE_matrix):

```

## APÊNDICE C – ARTIGOS PUBLICADOS E SUBMETIDOS DURANTE O DOUTORADO

### ARTIGOS PUBLICADOS

Sobre parte dos resultados apresentados no capítulo 6:

**DE LIMA, J. D. M.**; RIBEIRO, P. R. T.; MACHADO, F. L. A.; REZENDE, S. M. Enhanced spin Seebeck effect in the paramagnetic phase of the three-dimensional Heisenberg antiferromagnet  $\text{RbMnF}_3$ . **Physical Review B**, v. 107, n. 14, p. L140406, 2023.

Sobre parte dos resultados apresentados nos capítulos 5 e 6:

**DE LIMA, J. D. M.**; SOUZA, E. C.; REZENDE, S. M. Theory for the spin Seebeck effect in the spin-flop phase of the Heisenberg antiferromagnet  $\text{RbMnF}_3$ . **Physical Review B**, v. 110, n. 14, p. 144438, 2024.

Em colaboração:

IGLESIAS, C. A. M.; **DE LIMA, J. D. M.**; SOUZA, E. C., SINNECKER, J. P.; PADRÓN-HERNÁNDEZ, E.; REZENDE, S. M.; MACHADO, F. L. A. Giant magneto-impedance effect in amorphous  $\text{CoP@Cu}$  microstrip based device in a wide frequency range. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 599, p. 172115, 2024.

### ARTIGOS SUBMETIDOS

Sobre os resultados apresentados no capítulo 4:

**DE LIMA, J. D. M.**; MAIOR, D. S.; SOUZA, E. C.; RATKOVSKI, D. R.; MACHADO, F. L. A.; RODRÍGUEZ-SUÁREZ, R. L.; REZENDE, S. M. Giant nuclear-electronic spin pumping in the Heisenberg antiferromagnet  $\text{RbMnF}_3$ .

Sobre os resultados apresentados no capítulo 7:

**DE LIMA, J. D. M.**, SOUZA, E. C.; MACHADO, F. L. A.; REZENDE, S. M. Reciprocal exchange bias and exchange-spring effects in antiferromagnetic  $\text{RbMnF}_3$  interfaced with a permalloy film.

Em colaboração:

SOUZA, E. C.; **DE LIMA, J. D. M.**; COSTA, J. L.; RODRIGUES-JUNIOR, G.; CUNHA, R. O.; MENDES, J. B. S.; REZENDE, S. M. Spin-to-charge current conversion in sputtered films of the Weyl semimetal TaP by the inverse Rashba-Edelstein effect.