

**UNIVERSIDADE FEDERAL DE VIÇOSA**

**Investigação dos fenômenos Hall de spin e Hall orbital inversos em filmes  
finos de cromo**

Murilo Quirino de Andrade  
*Magister Scientiae*

**VIÇOSA - MINAS GERAIS  
2025**

**MURILO QUIRINO DE ANDRADE**

**Investigação dos fenômenos Hall de spin e Hall orbital inversos em filmes  
finos de cromo**

Dissertação apresentada à Universidade Federal de Viçosa, como parte das exigências do Programa de Pós-Graduação em Física, para obtenção do título de *Magister Scientiae*.

Orientador: Joaquim B. Santos Mendes

Coorientador: Rafael O. R. R. da Cunha

**VIÇOSA - MINAS GERAIS  
2025**

**Ficha catalográfica elaborada pela Biblioteca Central da Universidade  
Federal de Viçosa - Campus Viçosa**

T

A553i  
2025  
Andrade, Murilo Quirino, 1999-  
Investigação dos fenômenos Hall de spin e Hall orbital  
inversos em filmes finos de cromo / Murilo Quirino Andrade. –  
Viçosa, MG, 2025.  
70 f.: il. (algumas color.).

Orientador: Joaquim Bonfim Santos Mendes.  
Dissertação (mestrado) - Universidade Federal de Viçosa,  
Departamento de Física, 2025.

Referências bibliográficas: f. 62-70.

DOI: <https://doi.org/10.47328/ufvbbt.2026.150>

1. Spintrônica. 2. Efeito Hall orbital inverso. 3. Efeito Hall  
de spin inverso. 4. Momento angular orbital – Estado sólido. 5.  
Filmes finos – Spintrônica. 6. Cromo – Propriedades magnéticas.  
7. Correntes de spin – Conversão. 8. Acoplamento spin-órbita. 9.  
Transporte de carga – Efeitos Hall. 10. Efeito Seebeck de spin.  
11. Efeito Rashba-Edelstein. I. Mendes, Joaquim Bonfim Santos,  
1985-. II. Universidade Federal de Viçosa. Departamento de  
Física. Mestrado em Física. III. Título.

CDD 22. ed. ? 537.622

**MURILO QUIRINO DE ANDRADE**

**Investigação dos fenômenos Hall de spin e Hall orbital inversos em filmes finos de cromo**

Dissertação apresentada à Universidade Federal de Viçosa, como parte das exigências do Programa de Pós-Graduação em Física, para obtenção do título de *Magister Scientiae*.

APROVADA: 5 de dezembro de 2025.

Assentimento:

---

Murilo Quirino de Andrade  
Autor

---

Joaquim Bonfim Santos Mendes  
Orientador

Essa dissertação foi assinada digitalmente pelo autor em 15/04/2026 às 14:47:56 e pelo orientador em 15/04/2026 às 15:45:58. As assinaturas têm validade legal, conforme o disposto na Medida Provisória 2.200-2/2001 e na Resolução nº 37/2012 do CONARQ. Para conferir a autenticidade, acesse <https://siadoc.ufv.br/validar-documento>. No campo 'Código de registro', informe o código **FOYG.FK86.LVNP** e clique no botão 'Validar documento'.

## **AGRADECIMENTOS**

Primeiramente, gostaria de agradecer profundamente à minha mãe, Maria Cristina Quirino da Silva, e ao meu pai, Agenor Ladeira de Andrade, por todo esforço e sacrifício, carinho e amor que me proporcionaram ao longo de toda minha vida. Nada disso seria possível sem a confiança e educação que me deram.

Aos meus irmãos, Camila, Felipe e Guilherme, por todo amor e carinho, mas principalmente por encherem minha vida com música.

Aos meus amigos que fiz em Viçosa ao longo desses quase 8 anos, em ordem alfabética para não cometer injustiças, Baiano, Felipe Bananinha, Galdino, Lolis, Lucinha, Mari, Robs, Tainá, Tibério, Ximenes. Vocês foram minha família durante o tempo longe de Cataguases, muito obrigado a todos.

Aos meus colegas de república, Pedrão, Alemão, Victão e Lomeu, pelas risadas e discussões desnecessárias.

Agradeço à minha namorada, Sofia, que esteve do meu lado nos momentos mais difíceis, e que proporcionou os momentos mais felizes, fazendo com que o sorriso nunca saísse do meu rosto.

Aos colegas de laboratório, em especial à Gabriel Gallo e Iago Fontes, por todos os ensinamentos e conversas recheadas de física e outras palhaçadas.

Agradeço de maneira especial ao meu orientador, o Professor Joaquim Bonfim Santos Mendes, por todo ensinamento desde a graduação até o mestrado, pela confiança em meu trabalho e por cobrar quando era necessário cobrar.

Agradeço ao meu coorientador, o Professor Rafael Otoniel Ribeiro Rodrigues da Cunha, pelos ensinamentos e momentos de descontração no laboratório.

Agradeço ao Professor Antônio Azevedo da Universidade Federal de Pernambuco (UFPE) por fornecer os filmes de YIG, e pelas discussões frutíferas sobre os assuntos de Orbitrônica.

Este trabalho foi realizado com o apoio das seguintes agências de pesquisa brasileiras: Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior – Brasil (CAPES) – Código de Financiamento 001, Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de Minas Gerais (FAPEMIG) e Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq).

Este trabalho teve apoio da Financiadora de Estudos e Projetos (FINEP), Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de Minas Gerais (FAPEMIG) - Rede de Pesquisa em Materiais 2D e Rede de Nanomagnetismo, INCT em Nanocarbono e Materiais 2D, INCT de Spintrônica e Nanoestruturas Magnéticas Avançadas (INCT-SpinNanoMag), CNPq 406836/2022-1.

Esta pesquisa utilizou as instalações do Laboratório Nacional de Nanotecnologia (LNNano), parte do Centro Nacional de Pesquisa em Energia e Materiais (CNPEM), uma Organização Social supervisionada pelo Ministério da Ciência, Tecnologia e Inovações (MCTI). As equipes das instalações de Microscopia Eletrônica de Transmissão (equipamento Titan Cubed Themis) e Microscopia Eletrônica de Varredura & Duplo Feixe (equipamento Scientific Helios NanoLab 660) são reconhecidas pela assistência durante os experimentos (Propostas No. 20233730 e 20243516).

A felicidade só é real quando compartilhada.

## RESUMO

ANDRADE, Murilo Quirino de, M.Sc., Universidade Federal de Viçosa, dezembro de 2025. **Investigação dos fenômenos Hall de spin e Hall orbital inversos em filmes finos de cromo**. Orientador: Joaquim Bonfim Santos Mendes. Coorientador: Rafael Otoniel Ribeiro Rodrigues da Cunha.

O momento angular orbital (OAM) foi por décadas tratado como agente secundário na Spintrônica tradicional. Isto porque acreditava-se que o grau de liberdade de OAM estava congelado em sólidos. Entretanto, estudos recentes confirmaram que o OAM pode ser manipulado em sólidos com textura orbital. O efeito Hall orbital é o fluxo de OAM transversal à aplicação de um campo elétrico externo. Em contraste com o efeito Hall de spin (SHE), o OHE não depende de forte acoplamento spin-órbita (SOC), tornando elementos mais leves os principais candidatos para aplicações na Orbitrônica. Foi inicialmente previsto teoricamente e experimentalmente confirmado que o Cr possui uma grande condutividade Hall orbital positiva no OHE direto. No entanto, o efeito Hall orbital inverso (IOHE), no qual a corrente orbital é convertida em corrente de carga, segue ainda pouco explorado. Neste trabalho, exploramos os mecanismos de conversão spin-para-carga e orbital-para-carga em filmes finos de Cr. Investigamos o SHE inverso (ISHE) em amostras de YIG/Cr(6 nm) e YIG/Pt(6 nm), nas quais a corrente pura de spins é bombeada termicamente via efeito Seebeck de spin (SSE). Para estudar a conversão orbital-carga no Cr, fabricamos amostras YIG/Pt(2 nm)/Cr(t), variando-se a espessura do Cr de 2 a 10 nm. Enquanto as bicamadas YIG/Cr e YIG/Pt são governadas pelo ISHE, o IOHE desempenha um papel importante na estrutura tricamada, onde o YIG/Pt(2 nm) bombeia corrente spin-orbital acoplada para a camada de Cr adjacente. Nossos resultados revelam que o Cr exibe um baixo e negativo ISHE comparado com a Pt, mas um alto e negativo IOHE. Entretanto, na amostra com camada mais fina de Cr ( $t = 2$  nm), detectamos uma contribuição orbital-para-carga positiva, que foi atribuída a efeitos tipo Rashba-Edelstein orbital inverso (IOREE) na interface Pt/Cr, e que é rapidamente suprimida pela contribuição negativa do IOHE no volume do Cr à medida que a espessura aumenta. Esses resultados servem como valioso aparato experimental para o desenvolvimento de modelos teóricos mais abrangentes envolvendo o efeito Hall orbital inverso, a conversão spin-orbital em materiais com forte acoplamento spin-órbita e os efeitos tipo Rashba-Edelstein orbital inverso.

Palavras-chave: Spintrônica; Orbitrônica; magnetismo; correntes orbitais; correntes de spin

## ABSTRACT

ANDRADE, Murilo Quirino de, M.Sc., Universidade Federal de Viçosa, December, 2025. **Investigation of inverse spin Hall and inverse orbital Hall phenomena in chromium thin films**. Adviser: Joaquim Bonfim Santos Mendes. Co-adviser: Rafael Otoniel Ribeiro Rodrigues da Cunha.

The orbital angular momentum (OAM) was for decades treated as a secondary agent in traditional Spintronics. This is because it was believed that the OAM degree of freedom was frozen in solids. However, recent studies have confirmed that OAM can be manipulated in solids with orbital texture. The orbital Hall effect is the flow of OAM transverse to the application of an external electric field. In contrast with the spin Hall effect (SHE), the OHE does not depend on strong spin-orbit coupling (SOC), making lighter elements the main candidates for applications in Orbitronics. It was initially predicted in theory and experimentally confirmed that Cr has a large positive orbital Hall conductivity in the direct OHE. However, the inverse orbital Hall effect (IOHE), in which the orbital current is converted into charge current, remains largely unexplored. In this work, we explore the mechanisms of spin-to-charge and orbital-to-charge conversion in thin films of Cr. We investigate the inverse SHE (ISHE) in YIG/Cr(6 nm) and YIG/Pt(6 nm) samples, in which the pure spin current is thermally pumped via the spin Seebeck effect (SSE). To study orbital-to-charge conversion in Cr, we fabricated YIG/Pt(2 nm)/Cr(t) samples, varying the Cr thickness from 2 to 10 nm. While the YIG/Cr and YIG/Pt bilayers are governed by the ISHE, the IOHE plays an important role in the trilayer structure, where YIG/Pt(2 nm) pumps spin-orbital coupled current into the adjacent Cr layer. Our results reveal that Cr exhibits a low and negative ISHE compared with Pt, but a high and negative IOHE. However, in the sample with the thinnest Cr layer ( $t = 2$  nm), we detect a positive orbital-to-charge contribution, which was attributed to inverse orbital Rashba-Edelstein-like effects (IOREE) at the Pt/Cr interface, and which is rapidly suppressed by the negative IOHE contribution in the Cr bulk as the thickness increases. These results serve as a valuable experimental framework for the development of more comprehensive theoretical models involving the inverse orbital Hall effect, spin-orbital conversion in materials with strong spin-orbit coupling, and inverse orbital Rashba-Edelstein-like effects.

Keywords: Spintronics; Orbitronics; magnetism; orbital currents; spin currents

# Lista de figuras

Figura 2.1 – (a) Esquema do efeito Hall de spin (SHE), onde uma corrente de carga $\vec{J}_C$ gera uma corrente pura de spins $\vec{J}_S$ . (b) Esquema do efeito Hall de spin inverso (ISHE), onde uma corrente pura de spins $\vec{J}_S$ gera corrente elétrica $\vec{J}_C$ transversal. . . . .	17
Figura 2.2 – (a) Esquema do efeito Hall orbital (OHE), onde uma corrente de carga $\vec{J}_C$ gera uma corrente orbital $\vec{J}_L$ . (b) Esquema do efeito Hall orbital inverso (IOHE), onde uma corrente orbital pura $\vec{J}_L$ gera corrente elétrica $\vec{J}_C$ transversal.	19
Figura 2.3 – Ilustração de um átomo em uma cadeia cristalina uniaxial, com os dois íons positivos na direção z. Os harmônicos cúbicos $p_z$ , $p_x$ e $p_y$ são representados em (a), (b) e (c) respectivamente. (d) Linhas sólidas são as energias dos orbitais $p_x$ , $p_y$ e $p_z$ no cristal, e a linha tracejada representa as energias degeneradas no caso do átomo isolado. Figura adaptada da ref. [12] . . . . .	20
Figura 2.4 – Textura orbital no espaço dos momentos. Em vermelho, o círculo de Fermi da banda radial e em azul da banda tangencial. Note que para qualquer vetor $\vec{k}$ , é possível escrever seu estado orbital como combinação linear de $ p_x\rangle$ e $ p_y\rangle$ .	22
Figura 2.5 – Superfície de Fermi da banda radial perturbada por um campo elétrico externo. Um estado arbitrário imediatamente perturbado não se mantém radial à origem do espaço dos momentos. . . . .	23
Figura 2.6 – (a): Cadeia linear de átomos ao longo de x, com orbitais $p_x$ e $p_y$ . O plano xz é um plano-espelho. (b): Interface entre duas cadeias lineares de átomos diferentes, onde a simetria de inversão translacional é quebrada. . . . .	25
Figura 2.7 – Textura quiral de OAM no espaço dos momentos. No equilíbrio (círculo transparente), a soma sobre o círculo de Fermi resulta em zero OAM líquida. Quando um campo elétrico é aplicado, o círculo de Fermi é deslocado (círculo sólido), e um acúmulo de OAM é obtido. . . . .	26
Figura 2.8 – (a): Configuração longitudinal do efeito Seebeck de spin (LSSE). (b): Configuração transversal do efeito Seebeck de spin (TSSE). . . . .	30
Figura 3.1 – Esquema de funcionamento da deposição por <i>magnetron sputtering</i> . Íons de argônio em vermelho bombardeando o alvo em azul, removendo átomos do alvo que são depositados sobre o substrato. . . . .	33

Figura 3.2 – Ilustração da lei de Bragg, onde um feixe incidente (em vermelho) com ângulo $\theta$ é refletido pelos planos cristalinos (linhas horizontais em preto) espaçados entre si com distância $d$ . . . . .	34
Figura 3.3 – Exemplo de padrão de difração, com eixo vertical em unidades arbitrárias, sendo também comum utilizar contagens por segundo (cps), em função de $2\theta$ . Os picos do substrato e filme estão destacados. Medida realizada em um filme de Cr sobre substrato de silício (100) monocristalino. . . . .	35
Figura 3.4 – Exemplo de medida de refletividade em função do vetor $q$ . Medida realizada em um filme de Cr de 50 nm. . . . .	36
Figura 3.5 – Ilustração de um microscópio de força atômica. Note o fluxo das informações de controle e obtenção de dados representados pelas setas em preto, ligando os componentes mencionados. Figura adaptada da ref. [66]. . . . .	38
Figura 3.6 – Ilustração da relação entre força e distância ponta-amostra. O caráter da interação remete ao potencial de Lennard-Jones [66]. Figura adaptada da ref. [66]. . . . .	38
Figura 3.7 – Ilustração de um VSM. Na figura são indicados a haste porta-amostra, os polos magnéticos do eletroímã, duas bobinas de detecção e a amostra posicionada no centro. Figuras adaptadas da ref. [70] . . . . .	41
Figura 3.8 – Montagem experimental do LSSE. . . . .	42
Figura 4.1 – <b>(a)</b> : Imagens de AFM do filme de Cr com tempo de deposição de 10 minutos. A altura do degrau obtida foi de 157 nm. <b>(b)</b> Espessura por tempo de deposição dos filmes de Cr sobre substrato de silício, com potência nominal de 150 W. Os pontos em preto são dados experimentais obtidos por AFM e em vermelho o ajuste linear. . . . .	44
Figura 4.2 – Medida de XRD de amostras de Cr com diferentes espessuras, crescidas sobre Si(100). Em destaque, estão os picos (110) e (200) do Cr, bem com o pico (400) pronunciado do substrato. . . . .	45
Figura 4.3 – <b>(a)</b> : Padrão XRD do filme de 50 nm de Cr crescido sobre substrato de GGG. O <i>inset</i> é a medida XRD com incidência rasante (GIXRD). <b>(b)</b> : Medida de XRR da camada de 50 nm de Cr. Em azul os dados experimentais e em vermelho o ajuste simulado. <b>(c)</b> : Imagem de AFM da superfície do filme GGG/Cr(50 nm). . . . .	46

Figura 4.4 – Caracterização por STEM e EDX da heteroestrutura GGG/Pt/Cr. <b>(a)</b> : Imagem de STEM da seção transversal da bicamada Cr/Pt crescida sobre substrato de GGG, mostrando interfaces comportadas e ausência de interdifusão. <b>(b–d)</b> : Mapas elementares por EDX correspondentes a Cr, Pt e Gd respectivamente. <b>(e)</b> : Perfil de linha de profundidade por EDX, confirmando a transição abrupta de elementos nas interfaces. . . . .	47
Figura 4.5 – Curvas de histerese medidas por VSM. <b>(a)</b> Amostras de YIG (azul), YIG/Cr(6 nm) (vermelho tracejado) e YIG/Pt(2 nm)/Cr(2 nm) (preto). O <i>inset</i> dá detalhe das curvas na região de reversão da magnetização. <b>(b)</b> Curva da amostra de GGG (em vermelho), e GGG/Cr(50 nm) (em azul). <b>(c)</b> Curva de Cr(6 nm) sobre $SiO_2$ . <b>(d)</b> Amostras de Py(10 nm) (preto), Py(10 nm)/Cr(2 nm) (vermelho) e Py(10 nm)/Cr(2 nm) com campo magnético aplicado durante crescimento (azul). . . . .	49
Figura 4.6 – Esquema do LSSE na amostra YIG/NM. . . . .	50
Figura 4.7 – Corrente $I_{LSSE}$ por campo magnético $H$ , para $\phi = 0$ , da amostra YIG/Cr(6 nm). Diferentes valores de diferença de temperatura $\Delta T = 0, 4, 8, 12$ e $18$ K são apresentados em cores diferentes. . . . .	51
Figura 4.8 – <b>(a)</b> Comparação da varredura de campo para o sinal $I_{LSSE}$ entre as amostras YIG/Pt(6 nm) (em vermelho) e YIG/Cr(6 nm) (em azul), com $\Delta T = 18K$ fixo. O <i>inset</i> apresenta um zoom na curva em azul do YIG/Cr(6 nm). <b>(b)</b> Dependência do módulo do sinal $I_{LSSE}$ na região de saturação com $\Delta T$ , para YIG/Pt(6 nm) (em vermelho) e YIG/Cr(6 nm) (em azul). . . . .	52
Figura 4.9 – Esquema do LSSE na amostra YIG/Pt/Cr. . . . .	53
Figura 4.10–Sinal $I_{LSSE}$ por campo magnético $H$ , para $\phi = 0^\circ$ , da amostra YIG/Pt(2 nm)/Cr(2 nm). Diferentes valores de $\Delta T = 0, 4, 8, 12$ e $18$ K são apresentados em cores diferentes. . . . .	53
Figura 4.11–Comparação entre a corrente de carga $I_{LSSE}$ das amostras de YIG/Pt(2 nm) (vermelho) e YIG/Pt(2 nm)/Cr(2 nm) (azul). <b>(a)</b> Varredura de campo magnético $H$ com $\Delta T = 18$ K fixo. <b>(b)</b> Gráfico em barra dos sinais de YIG/Pt(2 nm) (vermelho) e YIG/Pt(2 nm)/Cr(2 nm) (azul), enfatizando o aumento na intensidade com a adição da camada de Cr. <b>(c)</b> Dependência linear da corrente $I_{LSSE}$ com a diferença de temperatura $\Delta T$ , com $H$ saturado. <b>(d)</b> Varredura angular de $\phi$ , com $\Delta T$ fixo e campo saturado. . . . .	54

Figura 4.12–Comparação entre a corrente de carga $I_{LSS E}$ das amostras de YIG/Pt(2 nm)/Cr( $t_{Cr}$ ) com diferentes espessuras da camada de Cr, em cores diferentes. (a) Varredura de campo magnético $H$ com $\Delta T = 18$ K fixo. <i>Inset</i> dá detalhe do sinal das amostras com $t_{Cr} = 6nm$ e $10nm$ . (b) Dependência linear da corrente $I_{LSS E}$ com a diferença de temperatura $\Delta T$ , com $H$ saturado. (c) Varredura angular de $\phi$ , com $\Delta T$ fixo e campo saturado, para diferentes espessuras. . . .	56
Figura 4.13–Dependência da corrente $I_{LSS E}$ com a espessura $t_{Cr}$ . Os pontos são obtidos para campo magnético $H$ saturado, para $\phi = 0$ (azul) e $\phi = 180$ (vermelho), mantendo $\Delta T = 18K$ fixo. . . . .	57
Figura 4.14–Dependência de $\Delta I_{LSS E} = I_{LSS E}^{total} - I_{LSS E}^{YIG/Pt(2nm)}$ com espessura $t_{Cr}$ . As linhas sólida são os ajustes fenomenológicos. . . . .	58

# Lista de abreviaturas e siglas

GMR	Giant Magnetoresistance
SOC	Spin Orbit Coupling
OAM	Orbital Angular Momentum
SDW	Spin Density Waves
YIG	Yttrium Iron Garnet
SHE	Spin Hall Effect
ISHE	Inverse Spin Hall Effect
FMR	Ferromagnetic Resonance
FM	Ferromagnético
NM	Não Magnético
OHE	Orbital Hall Effect
IOHE	Inverse Orbital Hall Effect
OREE	Orbital Rashba-Edelstein Effect
IOREE	Inverse Orbital Rashba-Edelstein Effect
SREE	Spin Rashba-Edelstein Effect
SSE	Spin Seebeck Effect
LSSE	Longitudinal Spin Seebeck Effect
TSSE	Transverse Spin Seebeck Effect

ANE	Anomalous Nernst Effect
FMI	Ferromagnético Isolante
PVD	Physical Vapor Deposition
DC	Direct Current
AC	Alternating Current
RF	Radio Frequency
XRD	X-Ray Diffraction
GIXRD	Grazing Incidence X-Ray Diffraction
XRR	X-Ray Reflectivity
AFM	Atomic Force Microscopy
VSM	Vibrating Sample Magnetometry
GGG	Gadolinium Gallium Garnet
HRTEM	High Resolution Transmission Electron Microscopy
bcc	Body Centered Cubic
STEM	Scanning Transmission Electron Microscopy
EDX	Energy Dispersive X-Ray
EB	Exchange Bias
SP	Spin Pumping

# Sumário

<b>1</b>	<b>Introdução</b>	<b>13</b>
<b>2</b>	<b>Revisão Teórica</b>	<b>16</b>
2.1	Efeito Hall de spin direto e inverso	16
2.2	Efeito Hall orbital	18
2.2.1	<i>Orbital quenching</i>	20
2.2.2	Textura orbital	21
2.3	Efeitos Rashba-Edelstein orbital direto e inverso	24
2.4	Acoplamento spin-órbita	27
2.4.1	Acoplamento spin órbita e relação entre SHE e OHE	28
2.5	Efeito Seebeck de Spin	29
<b>3</b>	<b>Técnicas experimentais</b>	<b>32</b>
3.1	Crescimento por DC Magnetron Sputtering	32
3.2	Difração e Refletividade de raios-X	34
3.3	Microscopia de Força Atômica	37
3.4	Magnetometria de amostra vibrante	40
3.5	Medida de transporte do efeito Seebeck de Spin longitudinal	41
<b>4</b>	<b>Resultados e discussões</b>	<b>43</b>
4.1	Calibração da espessura e caracterização dos filmes de Cr sobre Si	44
4.2	Caracterização dos filmes de GGG/Cr e GGG/Pt/Cr	45
4.3	Caracterizações magnéticas	48
4.4	Spin Seebeck Longitudinal: Amostras de YIG/Cr(6nm) e YIG/Pt(6nm)	50
4.5	Spin Seebeck Longitudinal: Amostras de YIG/Pt(2 nm)/Cr( $t_{Cr}$ )	52
<b>5</b>	<b>Conclusões</b>	<b>60</b>
	<b>Referências</b>	<b>62</b>

# Capítulo 1

## Introdução

Os fenômenos magnéticos em materiais de dimensões reduzidas desempenham um papel central na Física da Matéria Condensada, uma vez que, em sistemas confinados, os efeitos quânticos tornam-se mais pronunciados e revelam propriedades ausentes em estruturas volumétricas. Entre esses efeitos, destaca-se o momento angular de spin dos elétrons, que constitui o principal elemento responsável pelo magnetismo. A possibilidade de manipular, gerar e detectar a informação de spin, além de permitir o estudo de efeitos fundamentais da matéria, pode ter diversas aplicações tecnológicas. Um exemplo claro, que concedeu o prêmio Nobel de Física do ano de 2007 a Albert Fert e Peter Grünberg, foi a magnetoresistência gigante (GMR) [1, 2], descoberta no final da década de 1980, e que revolucionou a tecnologia dos leitores magnéticos de memórias de disco rígido nos anos subsequentes [3]. A GMR é mediada pela interação do spin dos portadores de carga com a magnetização local de materiais ferromagnéticos "sanduichando" um material não magnético, dando origem a um fenômeno de transporte de carga elétrica fortemente dependente do spin. Em poucos anos, com a descoberta experimental do efeito Hall de spin [4], onde corrente de carga elétrica pode gerar fluxo de momento angular de spin (ou corrente de spin) concretiza a Spintrônica como a área da Física que conecta carga elétrica e correntes de spin [5].

O avanço tecnológico nas técnicas de crescimento e caracterização de estruturas nanométricas pavimentou o caminho para que a Spintrônica fosse amplamente explorada ao longo das últimas décadas, viabilizando a síntese de nanoestruturas híbridas, combinando materiais magnéticos e não magnéticos, condutores, semicondutores e isolantes, metais leves e pesados, entre outras diversas propriedades [4–10]. Neste contexto, a alta dependência de um forte acoplamento spin-órbita (*spin orbit coupling*, SOC) para gerar os principais efeitos investigados na Spintrônica tornou-se um limitante à gama de materiais disponíveis [11].

Em contrapartida, a investigação experimental de fenômenos envolvendo a geração, detecção e manipulação de correntes orbitais foi praticamente negligenciada e somente começou a ser investigada mais intensamente nos últimos anos. O grau de liberdade de momento angular orbital (*orbital angular momentum*, OAM) em sólidos era tido como congelado devido ao *orbital quenching* causado pelo campo cristalino [12]. Mesmo com a previsão de um efeito Hall orbital em 2005 por Bernevig *et al.* [13], onde corrente elétrica geraria corrente orbital em silício com estrutura de diamante, a recém nomeada área da Orbitrônica não teve o mesmo impacto na literatura quanto sua análoga de spin. Este cenário mudou drasticamente cerca de 13 anos mais tarde, com destaque para o trabalho teórico de Go *et al* [14], que previa correntes orbitais fora do equilíbrio surgindo devido à textura orbital em materiais centrossimétricos. Além de ser robusto contra o *quenching* do OAM, tal mecanismo seria totalmente independente do SOC, e com o SOC presente poderia realizar interconversões entre os graus de liberdade de spin e OAM [14, 15]. Os estudos experimentais da Orbitrônica ganharam destaque nos anos recentes, e diversos fenômenos com analogia direta ao grau de spin foram reportados, como os efeitos Hall orbital direto e inverso, os efeitos Rashba-Edelstein orbital direto e inverso, torque orbital, injeção de corrente orbital, entre outros [16]. Neste novo cenário, diversos materiais ganharam destaque como fortes candidatos para aplicações na Orbitrônica, como metais de transição, semicondutores e óxidos [15, 16]. Dentre eles, o Cromo (Cr), que é um metal com SOC 15 vezes mais fraco que a platina (Pt) e que possui alta condutividade Hall orbital prevista teoricamente na literatura [17, 18], começou a ser implementado como material gerador de correntes orbitais.

O Cr é um metal de transição de número atômico 24, com características excepcionais. Ele pode apresentar um ordenamento antiferromagnético com temperatura de Neél próxima à temperatura ambiente de cerca de 311 K para *bulk* do Cr [19], e que possui caráter itinerante, ou seja, não localizado em átomos individuais, mas sim contendo ondas de densidade de spin (*spin density waves*, SDW). O antiferromagnetismo do Cr foi extensivamente estudado na literatura, onde mostrou-se que esta propriedade pode ser afetada pela espessura da camada, métodos e condições de crescimento, camadas adjacentes devido a efeitos de proximidade, entre outros fatores [20–22]. O processo de oxidação natural à temperatura ambiente do Cr, diferentemente de muitos materiais metálicos, não forma uma camada superficial bem definida de óxido, mas sim regiões que coexistem com o Cr metálico [23]. O óxido de cromo III ( $Cr_2O_3$ ) também apresenta antiferromagnetismo, com temperatura de Neél de cerca de 318 K [24]. O Cr metálico foi utilizado em um dos trabalhos pioneiros da GMR [1]. Foi mostrado experimentalmente que o efeito Hall de spin inverso no Cr é negativo [25, 26]. Mais recentemente, foi mostrado em

experimentos de *spin-orbit torque* que o Cr não-magnético apresenta uma alta contribuição de correntes orbitais que podem ser convertidas em correntes de spin devido ao SOC de um metal pesado espaçador e gerar torque na magnetização de um ferromagneto adjacente [27, 28]. O acúmulo de OAM causado pelo efeito Hall Orbital no Cr foi detectado também por técnicas magneto-ópticas [29]. Entretanto, os mecanismos orbitais recíprocos no Cr, onde correntes orbitais são convertidas em correntes de carga elétrica, seguem ainda pouco investigados.

Motivados por esta lacuna na literatura, e pelo acelerado progresso da fundamentação teórica da Orbitrônica, este trabalho de mestrado foi desenvolvido com o intuito de investigar sistematicamente os mecanismos de conversão orbital-para-carga do Cr, incluindo o efeito Hall orbital inverso e o efeito Rashba-Edelstein orbital inverso. Primeiro, realizamos um estudo comparativo do efeito Hall de spin inverso entre cromo e platina (Pt), que é um material com forte SOC e alto ângulo Hall de spin, a fim de avaliar a intensidade relativa dos mecanismos de conversão spin-para-carga do Cr. Utilizamos a técnica de bombeamento térmico de correntes de spin através do efeito Seebeck de spin longitudinal [30, 31] em filmes de YIG/Cr e YIG/Pt. Posteriormente, utilizamos heteroestruturas de YIG/Pt para bombear correntes spin-orbital acopladas [32] a uma camada de Cr adjacente, onde a conversão orbital-para-carga ocorre. A dependência com a espessura da camada de Cr foi explorada. Um modelo fenomenológico [33] foi implementado para interpretar os resultados experimentais.

Inicialmente, foi demonstrado que o Cr possui um ângulo Hall de spin negativo e negligenciável comparado com o da Pt. Em relação a conversão orbital-para-carga, os resultados indicam que o Cr apresenta um efeito Hall orbital inverso alto e negativo. De acordo com a interpretação fenomenológica dos resultados, a interface Pt/Cr tem papel fundamental, adicionando uma contribuição positiva para corrente de carga detectada, o que foi atribuído a um efeito tipo Rashba-Edelstein orbital inverso. Nossos resultados sugerem que de fato uma corrente spin-orbital acoplada passa por um processo de conversão para corrente de carga através de dois mecanismos orbitais distintos do Cr.

Além desta introdução, esta dissertação de mestrado foi dividida da seguinte maneira: No Capítulo 2, uma revisão teórica dos principais efeitos e fenômenos spin-orbitrônicos que embasam este trabalho é apresentada; No Capítulo 3, as técnicas experimentais, desde crescimento, caracterização e medidas elétricas utilizadas neste trabalho são descritas; No Capítulo 4 são apresentados os resultados de caracterização e os resultados de efeito Seebeck de spin longitudinal nas estruturas YIG/Pt, YIG/Cr e YIG/Pt/Cr; Por fim, no Capítulo 5 é apresentado um resumo das principais conclusões e contribuições científicas desta dissertação.

# Capítulo 2

## Revisão Teórica

Neste capítulo, foram revisados os principais mecanismos responsáveis pelos efeitos de transporte e interconversão de correntes de spin e correntes orbitais que foram explorados nos experimentos realizados neste trabalho. Foram discutidos os efeitos Hall de spin e Hall de spin inverso, bem como o acoplamento spin-órbita. Também foi definido o efeito Hall orbital gerado por textura orbital em materiais centrossimétricos, e o efeito Rashba-Edelstein orbital gerado por quebra de simetria de translação uniaxial. Por fim, foi explicado o efeito Seebeck de spin, que foi o mecanismo de injeção de correntes puras de spins adotado nos experimentos.

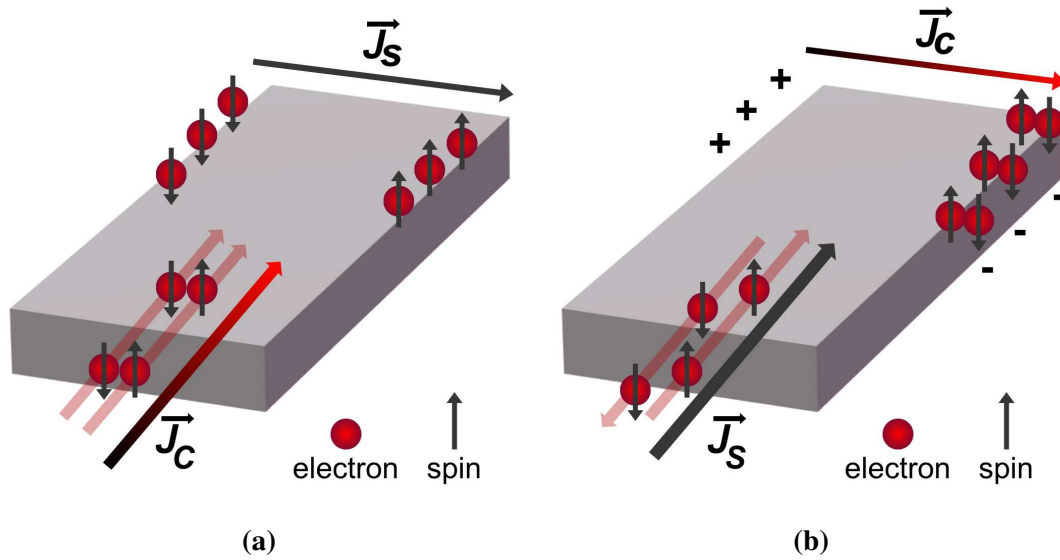
### 2.1 Efeito Hall de spin direto e inverso

O efeito Hall de Spin direto (*spin Hall effect*, SHE) descreve o surgimento de uma corrente de spins transversa à aplicação de um campo elétrico externo em materiais com forte acoplamento spin-órbita (SOC). Previsto em 1971 por Dyakonov & Perel [34], uma maneira experimental de detectar o SHE foi proposta quase 30 anos depois por Hirsch [4], o que fez com que a Spintrônica fosse estudada em larga escala a partir dos anos 2000 até os dias atuais. Uma vez que o SHE gera acúmulo de spins opostos nas extremidades do material, mas nenhum acúmulo de carga, sua detecção não é tarefa trivial. O efeito foi medido experimentalmente pela primeira vez nos semicondutores GaAs e InGaAs [7] por rotação Kerr, e rapidamente foi observado em diversos metais não magnéticos [8,9].

A primeira evidência experimental de um efeito Hall de spin inverso (*inverse spin Hall effect*, ISHE), ou seja, uma corrente de spins que faz surgir uma corrente de cargas transversal em materiais com forte SOC, foi reportada por Azevedo *et al.* [10] em 2005, em experimentos de *spin pumping* por ressonância ferromagnética (FMR) em tricamadas de ferromagneto/não-

magnético/ferromagneto (FM/NM/FM). Entretanto, a voltagem elétrica medida não foi nominalmente atribuída ao ISHE. No ano seguinte, o efeito foi detectado por Saitoh *et al.* [6] que reconheceu a corrente de carga medida como sendo proveniente do ISHE.

A figura 2.1 mostra um esquema dos efeitos SHE direto e inverso. Note que na figura 2.1 (a) a corrente de carga convencional foi definida como sendo formada por dois canais de elétrons com spins opostos se movendo na mesma direção. O forte SOC separa elétrons de spins opostos em extremidades opostas da amostra, gerando um desequilíbrio transversal de spin, mas nenhuma corrente de carga transversal. Na figura 2.1 (b), a corrente pura de spins é modelada como sendo formada por dois canais de elétrons de spins opostos se movendo em direções opostas, de maneira que ambos são defletidos para uma mesma extremidade transversal da amostra, gerando acúmulo de carga negativa, mas com balanceio de spins.



**Figura 2.1** – (a) Esquema do efeito Hall de spin (SHE), onde uma corrente de carga  $\vec{J}_C$  gera uma corrente pura de spins  $\vec{J}_S$ . (b) Esquema do efeito Hall de spin inverso (ISHE), onde uma corrente pura de spins  $\vec{J}_S$  gera corrente elétrica  $\vec{J}_C$  transversal.

As relações matemáticas para corrente de spin  $\vec{J}_S$  gerada por SHE e corrente de carga  $\vec{J}_C$  gerada por ISHE são, respectivamente:

$$\vec{J}_S = \left( \frac{\hbar}{2e} \right) \theta_{SH} (\vec{J}_C \times \hat{\sigma}) \quad (2.1)$$

$$\vec{J}_C = \left( \frac{2e}{\hbar} \right) \theta_{SH} (\vec{J}_S \times \hat{\sigma}) \quad (2.2)$$

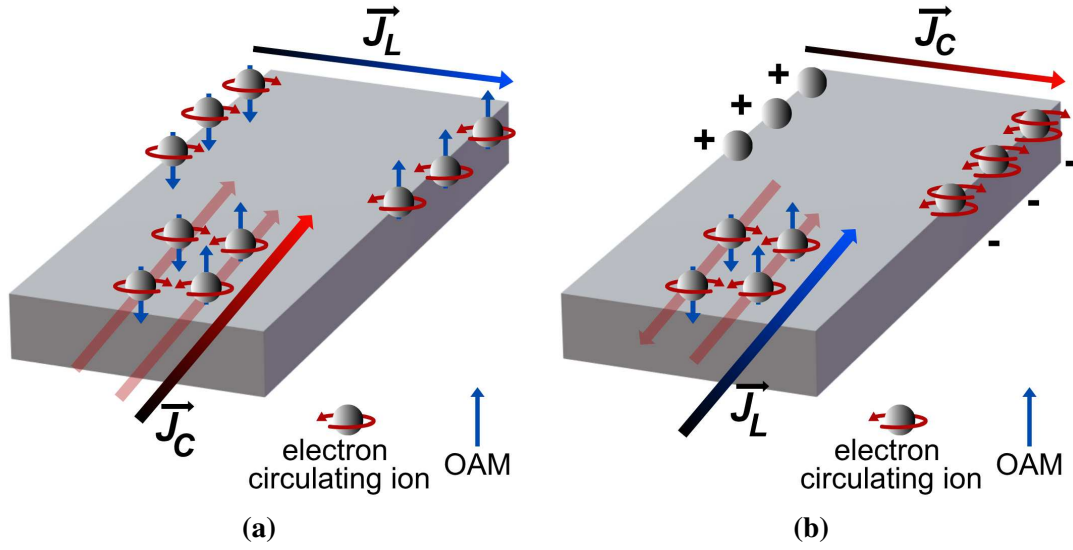
onde  $e$  é a carga do elétron,  $\hbar$  a constante de Planck reduzida,  $\hat{\sigma}$  são os operadores de spin de Pauli que representam a polarização da corrente  $\vec{J}_S$ , e  $\theta_{SH}$  é o denominado ângulo spin Hall, que

é um parâmetro adimensional que quantifica a eficiência de interconversão spin-carga, e pode ser escrito em termos da razão entre a condutividade spin Hall  $\sigma_{SH}$  e a condutividade elétrica. Note que para ambos os efeitos,  $\vec{J}_C$ ,  $\vec{J}_S$  e  $\hat{\sigma}$  são perpendiculares entre si.

O ISHE é consolidado experimentalmente como uma das maneiras mais diretas de se detectar correntes de spin, e será empregado neste trabalho. Os efeitos Hall de spin (SHE e ISHE) foram amplamente mais explorados do que seus análogos orbitais ao longo das últimas duas décadas. Entretanto, como será discutido nas próximas seções, o efeito Hall orbital pode ser classificado como mais fundamental que o SHE, e que o SOC é responsável por sua conversão em SHE [14]. A seção 2.4 abordará brevemente papel do SOC nos efeitos SHE e ISHE, bem como na conversão do efeito Hall orbital em SHE e no acoplamento de correntes de spin e correntes orbitais.

## 2.2 Efeito Hall orbital

O efeito Hall orbital (*orbital Hall effect*, OHE) é a geração de um fluxo transversal de momento angular orbital (OAM) devido a aplicação de um campo elétrico externo [13]. Na Spintrônica tradicional, acreditava-se que o grau de liberdade de OAM estivesse congelado, e portanto era irrelevante para fenômenos de transporte, sendo apenas tratado como ativo de maneira geral na presença de forte interação spin-órbita. Isto porque o teorema do *orbital quenching* dita que em cristais, o campo cristalino faz com que o valor esperado do momento angular orbital deva ir a zero no equilíbrio. Entretanto, quando um campo elétrico externo é aplicado e o sistema é posto fora do equilíbrio, hibridizações entre estados não degenerados com caracteres orbitais distintos ocorrem, o que leva aos portadores carregarem OAM não nulo. Mais do que isso, portadores que se movem em direções opostas carregam polarizações opostas de OAM. A figura 2.2 ilustra o OHE e seu efeito recíproco, o efeito Hall orbital inverso (*inverse orbital Hall effect*, IOHE).



**Figura 2.2** – (a) Esquema do efeito Hall orbital (OHE), onde uma corrente de carga  $\vec{J}_C$  gera uma corrente orbital  $\vec{J}_L$ . (b) Esquema do efeito Hall orbital inverso (IOHE), onde uma corrente orbital pura  $\vec{J}_L$  gera corrente elétrica  $\vec{J}_C$  transversal.

A relação vetorial entre as correntes  $\vec{J}_C$  e  $\vec{J}_L$ , nos efeitos OHE e IOHE podem ser fenomenologicamente descritas como [33, 35–37]:

$$\vec{J}_L = \left( \frac{\hbar}{2e} \right) \theta_{OH} (\vec{J}_C \times \hat{\sigma}_L) \quad (2.3)$$

$$\vec{J}_C = \left( \frac{2e}{\hbar} \right) \theta_{OH} (\vec{J}_L \times \hat{\sigma}_L) \quad (2.4)$$

onde  $\hat{\sigma}_L$  é a polarização de OAM da corrente  $\vec{J}_L$ ,  $\theta_{OH}$  é o ângulo Hall orbital que quantifica a eficiência de interconversão orbital-carga. Diferentemente das equações para os efeitos de spin, os ângulos Hall orbital direto e inverso não são necessariamente iguais, visto que há debate na literatura sobre a reciprocidade da eficiência de conversão direta e inversa [37–39].

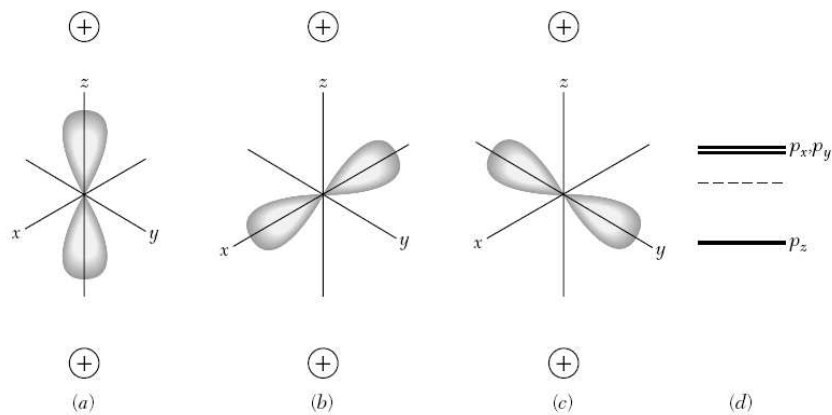
Como o OAM não é um grau de liberdade intrínseco do elétron tal como o spin, a corrente orbital por sua vez é um grau de liberdade emergente: não é possível defini-la no vácuo, somente em um sistema coletivo de átomos [14, 15]. Por isso, a interação com a rede cristalina é fundamental para os efeitos orbitais. Dessa maneira, na figura 2.2 (a), a corrente de carga convencional foi representada como sendo explicitamente elétrons circulando os íons, podendo se mover ao longo do material, e podendo carregar OAM com polarizações opostas, de maneira que  $\vec{J}_C$  não carregue OAM efetiva. No OHE, portadores carregando polarizações opostas de OAM ganham velocidades em direções opostas, gerando a corrente orbital  $\vec{J}_L$  transversal, sem acúmulo de cargas. Na figura 2.2 (b), a corrente orbital  $\vec{J}_L$  é modelada como sendo elétrons

carregando polarizações opostas de OAM se movendo em direções opostas (em semelhança ao ISHE), e que são defletidos para a mesma direção, fazendo surgir um acúmulo negativo de cargas em uma das extremidades transversais, sem OAM residual. Novamente, este esquema reforça a necessidade da rede cristalina (representada pelos íons) para a definição do OAM e da corrente orbital.

### 2.2.1 Orbital quenching

Em um átomo isolado, a simetria de rotação do campo central faz com que os estados de mesmos números quânticos eletrônico ( $n$ ) e de OAM ( $l$ ) sejam todos degenerados. Por exemplo, para o orbital  $p$ , com  $l = 1$ , os estados  $m_l = -1, 0, +1$  são triplamente degenerados. Assim, no equilíbrio, estes três estados são acessíveis, e a circulação líquida entre eles gera OAM resultante [12].

Considere agora um sistema com simetria cristalina uniaxial de orbital  $p$ , descrito na base dos harmônicos cúbicos  $p_x$ ,  $p_y$  e  $p_z$ , como mostra a figura 2.3. Novamente, no átomo isolado,  $p_x$ ,  $p_y$  e  $p_z$  teriam mesma energia. Já na cadeia cristalina mostrada na figura 2.3, o orbital  $p_z$  tem sua nuvem eletrônica mais próxima do íon positivo, o que lhe configura uma energia menor do que para os orbitais  $p_x$  e  $p_y$ . Ou seja, o campo cristalino quebra a degenerescência entre os estados  $p_x$ ,  $p_y$  e  $p_z$ , de maneira que agora há um *gap* de energia, proibindo o elétron de circular livremente entre orbitais distintos. Ele está, portanto, aprisionado no estado fundamental caracterizado pelo orbital  $p_z$ . Assim, o valor esperado do operador de momento angular orbital  $\langle \vec{L} \rangle$  vai a zero, que é o chamado *orbital quenching* [12].



**Figura 2.3** – Ilustração de um átomo em uma cadeia cristalina uniaxial, com os dois íons positivos na direção  $z$ . Os harmônicos cúbicos  $p_z$ ,  $p_x$  e  $p_y$  são representados em (a), (b) e (c) respectivamente. (d) Linhas sólidas são as energias dos orbitais  $p_x$ ,  $p_y$  e  $p_z$  no cristal, e a linha tracejada representa as energias degeneradas no caso do átomo isolado. Figura adaptada da ref. [12]

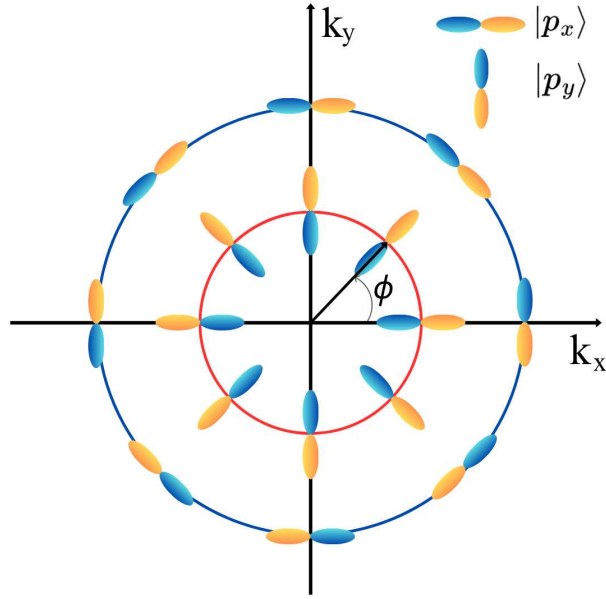
### 2.2.2 Textura orbital

Sistemas multiorbitais em geral possuem o que chamamos de textura orbital, que é a variação de caráter orbital com respeito a banda de energia e ao momento cristalino  $\vec{k}$  no espaço dos momentos [14]. A textura orbital é uma manifestação da interação da rede cristalina com a parte orbital da função de onda dos portadores. O acoplamento entre  $\vec{k}$  e  $\vec{L}$  é fundamental para este tipo de configuração dos orbitais no espaço dos momentos. Matematicamente, tal interação pode ser descrita para a primeira zona de Brillouin, próximo ao ponto  $\Gamma$  pela Hamiltoniana definida no espaço dos momentos:

$$H(\vec{k}) \sim (\vec{k} \cdot \vec{L})^2 \quad (2.5)$$

Uma interação nessa forma foi primeiro estudada em [13] para silício dopado tipo-p, onde os termos *orbitronics* e *orbital hall effect* foram devidamente apresentados à literatura. Este acoplamento alinha o momento angular orbital ao momento cristalino, e uma diagonalização deste Hamiltoniano entrega autovalores de  $m_l$  na direção de  $\vec{L} \parallel \vec{k}$  que dão origem a estados quânticos com caráter orbital radial e tangencial.

A fim de demonstrar como a textura orbital gera o OHE, um *toy model* para um sistema de orbital  $p$  será descrito a seguir, proposto por Go *et al* [14]. Considere duas bandas de energia de um sistema de orbital  $p$ , cujo caráter orbital seja radial para banda de menor energia e tangencial para banda de maior energia. A figura 2.4 mostra um esquema da superfície de Fermi para tais bandas, considerando apenas o plano  $k_z = 0$ .



**Figura 2.4** – Textura orbital no espaço dos momentos. Em vermelho, o círculo de Fermi da banda radial e em azul da banda tangencial. Note que para qualquer vetor  $\vec{k}$ , é possível escrever seu estado orbital como combinação linear de  $|p_x\rangle$  e  $|p_y\rangle$ .

Utilizando como base os estados de orbital  $|p_x\rangle$  e  $|p_y\rangle$ , podemos construir os estados radial e tangencial:

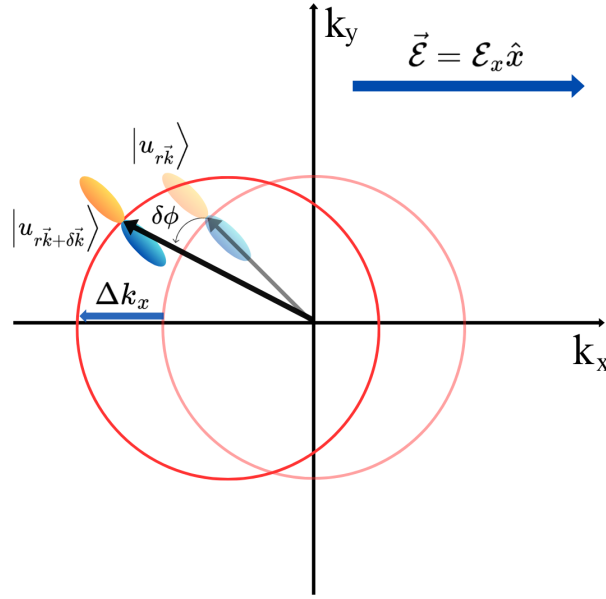
$$\begin{aligned} |u_{r\vec{k}}\rangle &= \cos\phi |p_x\rangle + \sin\phi |p_y\rangle \\ |u_{t\vec{k}}\rangle &= -\sin\phi |p_x\rangle + \cos\phi |p_y\rangle \end{aligned} \quad (2.6)$$

onde os subíndices  $r$  e  $t$  indicam radial e tangencial, e o ângulo  $\phi$  é definido na figura 2.4. Usando estes autoestados ortogonais, podemos definir o seguinte Hamiltoniano:

$$H(\vec{k}) = E_{r\vec{k}} |u_{r\vec{k}}\rangle \langle u_{r\vec{k}}| + E_{t\vec{k}} |u_{t\vec{k}}\rangle \langle u_{t\vec{k}}| \quad (2.7)$$

Note que calcular explicitamente o valor esperado de  $\vec{L}$  resulta em zero para qualquer um dos dois estados, para qualquer valor de  $\phi$ . Esta é uma manifestação do *orbital quenching* no equilíbrio.

Agora, considere a aplicação de um campo elétrico externo  $\vec{\mathcal{E}} = \mathcal{E}_x \hat{x}$  perturbando o sistema. Toda superfície de Fermi será então deslocada para a direção  $-\hat{x}$ , com  $\Delta k_x = -e\mathcal{E}_x \delta t / \hbar$ , como mostra a figura 2.5, para a banda radial.



**Figura 2.5** – Superfície de Fermi da banda radial perturbada por um campo elétrico externo. Um estado arbitrário imediatamente perturbado não se mantém radial à origem do espaço dos momentos.

Temos então que cada vetor  $\vec{k}$  sofrerá deslocamento na forma:

$$\vec{k} + \delta\vec{k} = |\vec{k} + \delta\vec{k}| [\cos(\phi + \delta\phi)\hat{x} + \sin(\phi + \delta\phi)\hat{y}] \quad (2.8)$$

Note que o ângulo  $\phi$  por consequência é deslocado também para  $\phi + \delta\phi$ . Uma vez deslocados para o ponto  $\vec{k} + \delta\vec{k}$ , os novos estados perturbados não são mais autoestados, visto que podem ser escritos como combinações lineares de  $|u_{r\vec{k}}\rangle$  e  $|u_{r\vec{k}+\delta\vec{k}}\rangle$  utilizando expansão em série de Taylor das funções trigonométricas. Também é possível representar, digamos, o estado radial  $|u_{r\vec{k}}\rangle$  como combinação linear dos estados deslocados. Seja então o estado  $|u_{r\vec{k}}\rangle$  no instante  $t = 0$ , imediatamente após a aplicação de  $\vec{\mathcal{E}}$ , representado como:

$$|u_{r\vec{k}}(t = 0)\rangle = |u_{r\vec{k}+\delta\vec{k}}\rangle - \delta\phi |u_{r\vec{k}+\delta\vec{k}}\rangle \quad (2.9)$$

Aplicando a operação de evolução temporal, para um curto tempo  $\delta t$  temos que:

$$|u_{r\vec{k}}(t = \delta t)\rangle = \exp(-iE_{rk}\delta t/\hbar) |u_{r\vec{k}+\delta\vec{k}}\rangle - \delta\phi \exp(-iE_{rk}\delta t/\hbar) |u_{r\vec{k}+\delta\vec{k}}\rangle \quad (2.10)$$

onde os estados evoluem separadamente devido ao *gap* de energia entre eles. Calcular a razão entre os coeficientes dos estados perturbados na equação 2.10 resulta em um número complexo, de maneira que esta superposição contenha componentes tipo  $|u_{r\vec{k}}\rangle \sim |u_{r\vec{k}+\delta\vec{k}}\rangle \pm i |u_{r\vec{k}+\delta\vec{k}}\rangle$ . Fascinantemente, essas componentes são autoestados do operador  $\vec{L}_z$ . Portanto, a superposição entre bandas causada por um campo elétrico externo gera um estado com  $\langle \vec{L} \rangle$  não nulo. De maneira

mais intuitiva, quando um estado radial sofre o deslocamento, seu orbital tende a manter-se radial à origem do espaço  $k$ , não estando mais radial à superfície de Fermi, de maneira que o orbital no espaço  $k$  experiencia uma espécie de precessão ao longo do eixo  $k_z$ . É possível ainda mostrar que  $\langle \vec{L} \rangle \propto \delta\phi \hat{z}$ . Uma vez que  $\delta\phi$  é positivo (negativo) para valores positivos (negativos) de  $k_y$ , um campo elétrico externo aplicado ao longo de  $+\hat{x}$  gera OAM não nula polarizada em  $+\hat{z}$  ( $-\hat{z}$ ) que se move ao longo de  $+\hat{y}$  ( $-\hat{y}$ ), que é efetivamente o efeito Hall orbital. Somar o OAM sobre todos os estados ocupados ainda resulta em zero, mas a corrente orbital caracterizada por  $\langle v_y L_z \rangle$  não será nula.

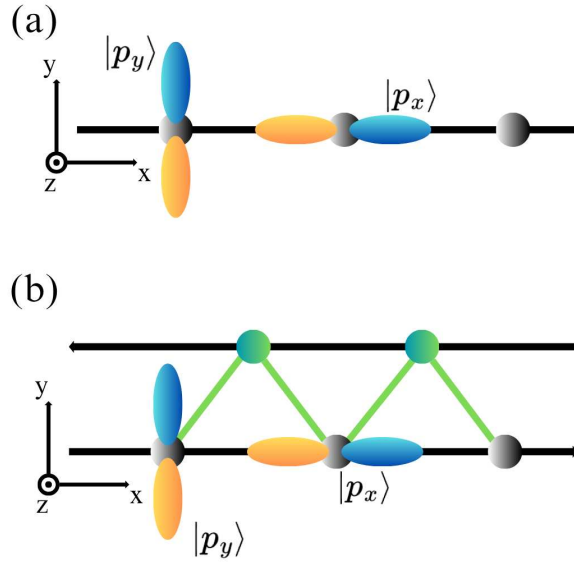
Este simples mas poderoso modelo consegue explicar como a textura orbital gera o OHE em materiais centrossimétricos, e pode ser estendido para sistemas mais complexos, como por exemplo orbitais  $d$  e  $f$  [17]. Dessa maneira, muitos materiais antes tidos como secundários para a Spintrônica tradicional tornam-se pivotais para a Orbitrônica. Em especial, materiais que não possuem forte acoplamento spin-órbita, como metais de transição leves [28, 29, 33, 40] e alguns semicondutores [13, 41], tornaram-se centrais nos esforços para otimização da Spin-orbitrônica.

### 2.3 Efeitos Rashba-Edelstein orbital direto e inverso

Enquanto o OHE é um efeito que ocorre ao longo do volume dos materiais, o efeito Rashba-Edelstein orbital (*orbital Rashba-Edelstein effect*, OREE) descreve a conversão de corrente de carga em corrente orbital em interfaces e superfícies [15, 16]. Isto porque o acoplamento Rashba orbital é uma interação entre o OAM e o momento cristalino dos portadores que surge em sistemas com quebra de simetria de inversão translacional em um determinado eixo. Se um campo elétrico externo é aplicado à um sistema Rashba, um acúmulo de OAM de não equilíbrio é gerado. Em outras palavras, corrente de carga pode gerar corrente orbital em um sistema Rashba, o que é efetivamente o OREE.

Nesta seção, apresentamos um simples modelo para explicar como a quebra de simetria gera OAM não nula [42]. Suponha uma cadeia atômica que se estende ao longo de todo eixo  $x$ . Os átomos dessa cadeia podem conter os orbitais  $p_x$  e  $p_y$ , como mostra a figura 2.6 (a). Se neste caso existe uma simetria de inversão translacional ao longo do eixo  $y$  (plano-espelho  $xz$ ), isso significa que o potencial eletrostático é par à troca de  $y \rightarrow -y$ . Além disso, os orbitais  $p_x$  e  $p_y$  são par e ímpar, respectivamente, à inversão em  $y$ . Como os termos de *hopping* entre orbitais é proporcional às integrais de sobreposição das funções de onda, o *hopping* entre  $p_x$  e  $p_y$  é proibido devido à paridade do integrando. Efetivamente, se não há circulação líquida entre

orbitais  $p_x$  e  $p_y$ , estes formam bandas de energia independentes com zero OAM.



**Figura 2.6** – (a): Cadeia linear de átomos ao longo de  $x$ , com orbitais  $p_x$  e  $p_y$ . O plano  $xz$  é um plano-espelho. (b): Interface entre duas cadeias lineares de átomos diferentes, onde a simetria de inversão translacional é quebrada.

Agora, suponha que a simetria seja quebrada pela presença de átomos de um outro material, configurando uma interface, como mostra a figura 2.6 (b). Isso gera um gradiente no potencial eletrostático, fazendo com que este não seja mais par à inversão de  $y$ . As integrais de *hopping* neste cenário não serão mais nulas. A Hamiltoniana deste modelo é dada por [42]:

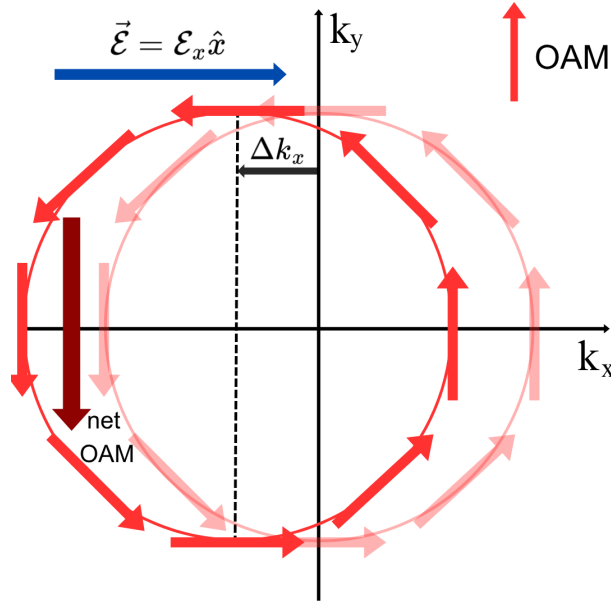
$$H(k) = \begin{pmatrix} \varepsilon_{p_x} + 2t_{p_x p_x} \cos(ka) & 2it_{p_x p_y} \sin(ka) \\ -2it_{p_x p_y} \sin(ka) & \varepsilon_{p_y} + 2t_{p_y p_y} \cos(ka) \end{pmatrix} \quad (2.11)$$

onde  $\varepsilon_p$  são as energias de sítio dos orbitais  $p_x$  e  $p_y$ ,  $t_{pp'}$  são os termos de *hopping* entre orbitais,  $a$  é o parâmetro de rede e  $k$  é o número de onda. O termo complexo  $i \sin(ka)$  surge nos termos fora da diagonal principal devido à paridade diferente dos orbitais  $p_x$  e  $p_y$  com relação à inversão em  $x$ , ou seja, diferentes sinais destes *hoppings* para as diferentes direções  $-x$  e  $+x$ .

É possível diagonalizar essa matriz e encontrar que, apesar de  $\langle L_x \rangle = \langle L_y \rangle = 0$ ,  $\langle L_z \rangle$  é proporcional à  $t_{p_x p_y} \sin(ka)$ . Ou seja, a circulação líquida entre  $p_x$  e  $p_y$ , permitida pela quebra de simetria de inversão, gera OAM não nulo polarizado em  $z$  para cada autoestado eletrônico, e que depende do momento cristalino  $k$ .

De maneira geral o acoplamento Rashba orbital é representado por  $\vec{L} \cdot (\hat{z} \times \vec{k})$ , e pode gerar texturas de OAM no espaço dos momentos, como por exemplo a textura quirál [43, 44] mostrada na figura 2.7. Note que neste caso a textura gerada já possui OAM polarizada para

cada autoestado, diferentemente do caso de textura orbital na figura 2.4. No equilíbrio, somar OAM sobre todos os estados ainda é zero, visto que  $\langle L \rangle_k = -\langle L \rangle_{-k}$ . Quando um campo elétrico externo é aplicado paralelo à interface (por exemplo ao longo de  $\hat{x}$ ), isso desloca o círculo de Fermi, gerando OAM líquido polarizado (por exemplo em  $-\hat{y}$ ). Este acúmulo pode se difundir como corrente orbital ao longo da direção normal ao plano da interface (por exemplo  $\hat{z}$ ) [45].



**Figura 2.7** – Textura quiral de OAM no espaço dos momentos. No equilíbrio (círculo transparente), a soma sobre o círculo de Fermi resulta em zero OAM líquida. Quando um campo elétrico é aplicado, o círculo de Fermi é deslocado (círculo sólido), e um acúmulo de OAM é obtido.

O efeito recíproco, chamado de efeito Rashba-Edelstein inverso (*inverse orbital Rashba-Edelstein effect*, IOREE) também pode ocorrer, onde uma corrente orbital injetada normal ao plano da interface gera corrente de carga no plano. Para este trabalho, o IOREE será especialmente importante na interpretação dos resultados experimentais. Matematicamente, a corrente de cargas gerada pelo IOREE pode ser descrita como [33]:

$$\vec{J}_C = \lambda_{\text{IOREE}} (\hat{z} \times \delta \vec{L}) \quad (2.12)$$

onde  $\lambda_{\text{IOREE}}$  é o coeficiente orbital Rashba-Edelstein, que quantifica a eficiência da conversão orbital-carga e  $\delta \vec{L}$  o OAM de não equilíbrio.

Os efeitos OREE e IOREE já foram extensivamente investigados na interface de cobre/óxido de cobre [45–48], interfaces metálicas [33, 49, 50] e interfaces entre óxidos [51]. Assim como no caso do OHE, o acoplamento Rashba orbital é entendido como mais fundamental que o acoplamento Rashba de spin, onde o forte SOC tende a alinhar o spin dos portadores com

seu OAM, gerando secundariamente os efeitos tipo Rashba-Edelstein de spin (*spin Rashba-Edelstein effect*, SREE) e seu inverso [15, 16].

## 2.4 Acoplamento spin-órbita

O acoplamento spin-órbita (SOC) é uma interação que resulta de correções relativísticas sobre o movimento de um portador de carga e spin, como por exemplo um elétron próximo ao núcleo. Esta interação acopla o momento angular orbital com o momento angular de spin do elétron, e tem causas fundamentais no comportamento de átomos, sólidos e portadores de carga, como por exemplo quebra de degenerescências, superação do *orbital quenching* [12], e mais importante aqui, é responsável pelos efeitos SHE e ISHE [5].

O SOC ocorre da seguinte maneira: suponha que um elétron se mova com momento linear  $\vec{p}$  e esteja submetido a um campo elétrico  $\vec{E}$ , que gera um potencial  $\vec{\nabla}V$ . Porém, no próprio referencial do elétron, o campo elétrico se transforma em um campo magnético efetivo por transformação de Lorentz,  $\vec{B}_{efe} = (1/mc^2)\vec{E} \times \vec{p}$ . O spin do elétron sente esse campo magnético efetivo em termos de uma interação Zeeman,  $H = -\vec{\mu} \cdot \vec{B}_{efe}$ . Podemos então escrever essa interação como:

$$H_{So} = \frac{1}{2m^2c^2} \vec{S} \cdot (\vec{\nabla}V \times \vec{p}) \quad (2.13)$$

Para o caso de um elétron ligado a um átomo, o potencial  $\vec{\nabla}V$  é esfericamente simétrico, ou seja, pode ser escrito na forma:

$$\vec{\nabla}V = \left( \frac{\partial V}{\partial r} \right) \frac{\vec{r}}{r} \quad (2.14)$$

Mas como  $\vec{L} = \vec{r} \times \vec{p}$ , temos que:

$$H_{So} = \frac{1}{2m^2c^2r} \left( \frac{\partial V}{\partial r} \right) \vec{L} \cdot \vec{S} \quad (2.15)$$

É possível demonstrar que o SOC escala aproximadamente com o número atômico  $Z$  à quarta potência [52], o que naturalmente confere uma maior intensidade de SOC em metais mais pesados.

Em sólidos cristalinos, o potencial  $\vec{\nabla}V$  não é esfericamente simétrico, mas sim periódico. Ainda sim, nas proximidades do núcleo atômico,  $\vec{\nabla}V$  é dominado pela contribuição  $\left( \frac{\partial V}{\partial r} \right) \frac{\vec{r}}{r}$ , e o SOC pode ser aproximado como uma soma sobre contribuições de átomos individuais:

$$H_{SO}^{solido} \approx \sum_i \xi_{SO}^i \vec{L}_i \cdot \vec{S} \quad (2.16)$$

onde  $\xi_{SO}^i$  é um parâmetro de intensidade do SOC no sítio  $i$ .

Os mecanismos do SHE e ISHE podem ser divididos em três contribuições distintas [5, 11]:

(i) *intrínseco*, que está relacionado à estrutura de bandas do cristal perfeito, e surge da dinâmica dos elétrons de Bloch acelerados por campo elétrico e a precessão de seus spins no espaço dos momentos devido ao campo magnético efetivo que surge do SOC. Quando é projetado nos estados de Bloch, tal campo magnético gera uma velocidade anômala que espalha portadores com spins opostos em direções opostas. Essa velocidade anômala é proporcional à curvatura de Berry integrada sobre o mar de Fermi. Ou seja, está relacionado às texturas de spin da estrutura de bandas, similarmente ao mecanismo orbital apresentado na seção 2.2, que também é intrínseco.

(ii) *skew scattering*, que está relacionado com o SOC vindo do potencial das impurezas, e surge devido ao espalhamento de portadores com spins opostos em direções opostas com probabilidades assimétricas quando sofrem colisões elásticas com impurezas. Sua intensidade é diretamente proporcional ao tempo médio de vida  $\tau$  do estado de Bloch, já que a cada colisão há uma contribuição líquida para a deflexão. Portanto, a *skew scattering* é dominante quanto menor for a concentração de impurezas.

(iii) *side jump*, que também está relacionado ao SOC vindo do potencial de impurezas, mas que contabiliza os deslocamentos laterais efetivos dependentes de spin do pacote de onda incidente sobre o corpo espalhador. Este mecanismo depende diretamente da concentração de impurezas.

#### 2.4.1 Acoplamento spin órbita e relação entre SHE e OHE

Apesar dos mecanismos do SHE e ISHE terem sido estudados e desenvolvidos independentemente do OHE, esse último é tido como mais fundamental, e o papel do SOC é converter o OHE em SHE [14]. Note que até então, a presença de SOC foi negligenciada na seção 2.2. Quando o SOC está presente, existe consenso de que os seguintes fenômenos podem ocorrer:

(i) Ao aplicar  $\vec{E}$  em material com forte SOC e textura orbital, ambos OHE e SHE ocorrem. A polarização de spin e OAM das correntes serão paralelas (antiparalelas) se a correlação  $\langle \vec{L} \cdot \vec{S} \rangle$  for positiva (negativa), o que significa que as condutividades spin Hall e orbital Hall

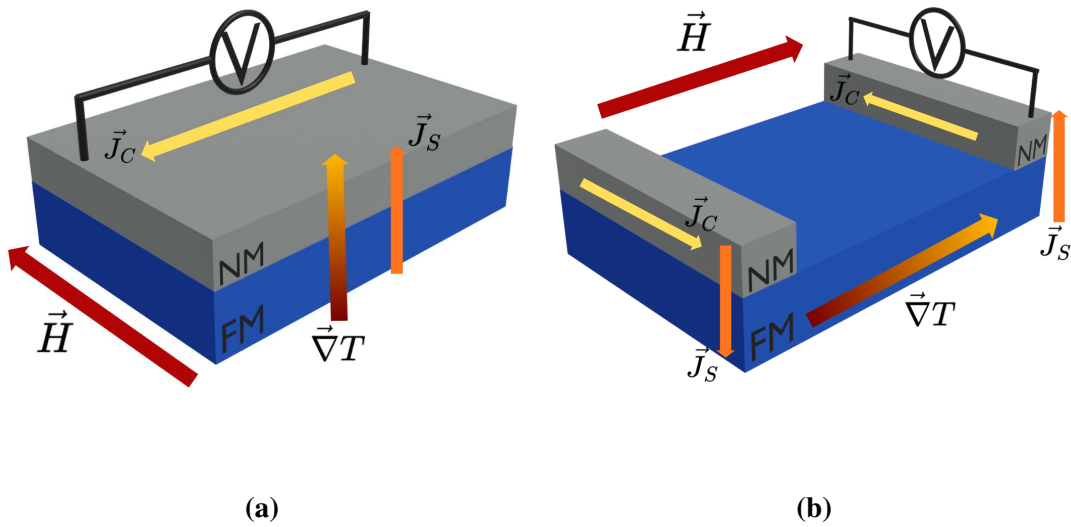
terão sinais iguais (opostos) [14, 15, 17].

(ii) O forte SOC é capaz de realizar a interconversão entre correntes de spin e correntes orbitais [28], bem como acoplar ambas as correntes formando uma corrente spin-orbital-acoplada [32].

Portanto, a utilização de materiais com forte SOC em conjunto com metais mais leves e com diferentes sinais de  $\langle \vec{L} \cdot \vec{S} \rangle$  é uma maneira estratégica de estudar experimentalmente as interconversões spin-orbital-carga, bem como possibilitar a separação das contribuições orbitais das contribuições de spin nos efeitos SHE e OHE inversos.

## 2.5 Efeito Seebeck de Spin

O efeito Seebeck de Spin (*spin Seebeck effect*, SSE) é a geração de uma corrente pura de spins em um material ferromagnético (FM) devido a aplicação de um gradiente de temperatura. Descoberto em 2008 [30], o SSE se consolidou como um dos principais métodos utilizado para injeção de correntes de spin, sendo observado em uma gama diversa de materiais como Permalloy [30], no isolante granada de ítrio e ferro (YIG) [53], no isolante topológico  $Bi_2Se_3$  [54], no semicondutor  $GaMnAs$  [55], entre outros. De maneira geral, o SSE é observado em bicamadas formadas por um material FM onde a corrente de spin é gerada, e uma camada adjacente de metal não magnético (NM), onde a corrente de spin injetada neste pode ser convertida em corrente de carga por meio do ISHE, gerando uma tensão elétrica mensurável em suas extremidades. A corrente de spin gerada pode ser paralela ou transversal ao gradiente térmico, que são chamadas configurações longitudinal (LSSE) [31] e transversal (TSSE) [30], respectivamente, como ilustra a figura 2.8.



**Figura 2.8** – (a): Configuração longitudinal do efeito Seebeck de spin (LSSE). (b): Configuração transversal do efeito Seebeck de spin (TSSE).

Apesar de ter sido primeiramente observado na configuração transversal, esta é uma estrutura muito mais complexa do que a longitudinal, tornando a detecção também mais complicada [56]. Por isso, do ponto de vista de praticidade na construção dos dispositivos SSE, a configuração longitudinal tornou-se mais implementada. No entanto, o LSSE em FM condutores é acompanhado pelo efeito Nernst anômalo (*anomalous Nernst effect, ANE*) [57], fazendo com que apenas utilizando materiais FM isolantes seja possível de fato observar unicamente o SSE. Portanto, a implementação da granada de ítrio e ferro,  $Y_3Fe_5O_{12}$  (*Yttrium iron garnet, YIG*), que é um material ferrimagnético isolante (FMI) com baixas perdas magnéticas, elimina qualquer artefato gerado pelo ANE.

Em um FMI, uma corrente de spins não é transportada por elétrons, mas sim por mágnons, que são ondas de spin quantizadas [31]. O modelo mais consolidado para explicar a geração de corrente de spin devido a gradiente térmico na configuração LSSE em FMI's é o modelo de correntes de spin de mágnons ao longo de toda espessura do FMI, proposto por S. M. Rezende *et al.* [58]. Neste modelo, o fluxo de mágnons no *bulk* do FMI é tratado macroscopicamente pela equação de transporte de Boltzmann, onde os mágnons são termicamente excitados pelo gradiente de temperatura. Para que o processo seja estável, deve haver uma camada NM adjacente, pois o FMI precisa bombear a corrente de spin para dentro do NM para preservar a continuidade do fluxo de spins. Utilizando uma abordagem de *spin mixing conductance* semelhante a utilizada no *spin pumping* por ressonância ferromagnética, as devidas condições de contorno para a interface FMI/NM são consideradas. A corrente de spins na

interface é simplificada dada por:

$$J_S(0) = -C_S g_{eff}^{\uparrow\downarrow} \rho \nabla T \quad (2.17)$$

onde o termo  $C_S$  é um fator dependente de propriedades do FMI e de constantes universais;  $g_{eff}^{\uparrow\downarrow}$  é o termo de *spin mix conductance* associado a interface FMI/NM; e  $\rho$  é o termo de dependência da espessura da camada FMI em relação ao comprimento de difusão de mágnons. Dessas relações, fica explícita a dependência linear da corrente de spins com o gradiente térmico, bem como com o termo de *spin mix conductance*, reforçando a necessidade de haver uma camada NM adjacente para que o efeito seja possível.

A corrente de spin injetada no NM é então transportada pelos elétrons, regida por uma equação de difusão. Se o material NM possui forte SOC, essa corrente de spins é finalmente convertida em corrente de carga transversal através do ISHE. A tensão LSSE medida no NM é dada por:

$$V_{LSSE} = R_{NM} w_{NM} \lambda_{NM} \frac{2e}{\hbar} \theta_{SH} \tanh\left(\frac{t_{NM}}{2\lambda_{NM}}\right) J_S(0) \quad (2.18)$$

onde  $R_{NM}$ ,  $w_{NM}$ ,  $t_{NM}$ ,  $\lambda_{NM}$  são respectivamente a resistência elétrica, a largura, a espessura, e o comprimento de difusão de spins da camada NM.

## Capítulo 3

# Técnicas experimentais

Neste capítulo, as técnicas experimentais utilizadas neste trabalho, desde crescimento das amostras, caracterização estrutural, morfológica e magnética, bem como as medidas de transporte dos principais fenômenos investigados, realizadas nas instalações do Departamento de Física da Universidade Federal de Viçosa são apresentadas.

Destacamos que as técnicas de epitaxia de fase líquida e a microscopia eletrônica de transmissão, que foram realizadas em colaboração, respectivamente, com o Departamento de Física da Universidade Federal de Pernambuco e o laboratório multiusuário do Centro Nacional de Pesquisa em Energia e Materiais - CNPEM, não serão abrangidas.

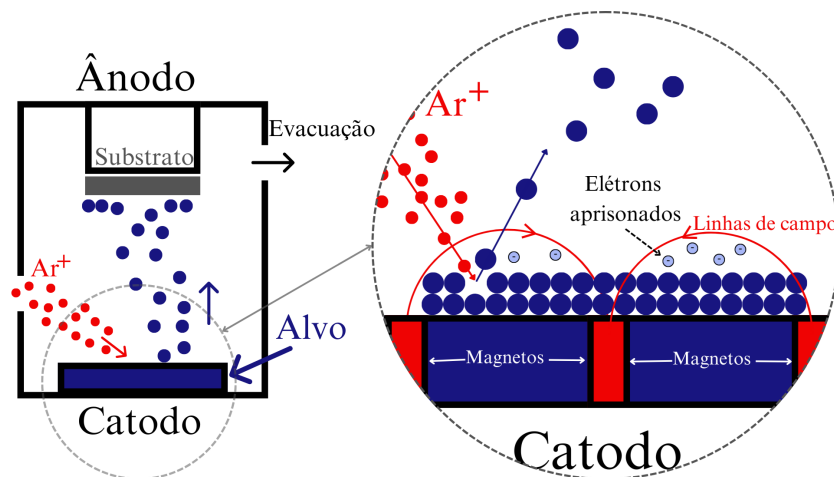
### 3.1 Crescimento por DC Magnetron Sputtering

A deposição por evaporação catódica ou *sputtering* é atualmente uma das técnicas mais populares para deposição de filmes finos, seja na pesquisa científica ou mesmo na indústria [59]. A técnica consiste em ejetar átomos de um material alvo através de transferência de momento por colisões, utilizando partículas altamente energizadas. Os átomos ejetados com energia cinética suficiente chegam até uma superfície ou substrato, onde são condensados camada sobre camada. O *sputtering* é portanto classificado como uma técnica de deposição física de vapor (PVD), juntamente com a evaporação térmica e evaporação por laser pulsado [60].

Tipicamente, o procedimento experimental do *sputtering* envolve a utilização de íons de um plasma, que é um gás de trabalho parcialmente ionizado, dentro de uma câmara de alto vácuo. Para energizar os átomos do gás de trabalho, utiliza-se terminais elétricos alimentados por uma fonte DC ou AC (radiofrequência, RF). Para filmes metálicos, como os depositados neste trabalho, é mais comum utilizar o DC *sputtering*, visto que a aplicação da fonte RF se

faz necessária somente na deposição de óxidos e semicondutores [59, 60]. O material alvo que se deseja depositar é posicionado no catodo da fonte, enquanto o substrato é posicionado no ânodo.

Inicialmente, a câmara é evacuada com o auxílio de uma bomba turbo mantida à 1000 Hz, até uma pressão de base da ordem de  $10^{-7}$  Torr. Então um gás nobre, usualmente argônio (Ar), é introduzido de maneira controlada, com fluxo de 10 sccm, fazendo a pressão da câmara subir para ordem de  $10^{-3}$  Torr. Aplica-se uma alta diferença de potencial entre os eletrodos, gerando íons positivos de argônio energizados, que serão acelerados contra o catodo. A figura 3.1 ilustra o processo de sputtering. Os íons  $\text{Ar}^+$  (em vermelho) são acelerados pelo campo elétrico em direção ao alvo (em azul), colidindo com as primeiras camadas do alvo, transferindo energia cinética para que estes atinjam o substrato (em cinza) [60]. Elétrons secundários também podem ser gerados nas colisões entre  $\text{Ar}^+$  e catodo. Tanto os elétrons do plasma (originalmente nos átomos de Ar) quanto elétrons secundários (em azul claro) podem ionizar ainda mais átomos de Ar através de colisões, o que faz com que a geração e manutenção de plasma seja praticamente autosustentável, desde que o fluxo ideal de gás seja mantido. Para tal, a câmara é constantemente evacuada durante o processo de crescimento, de maneira que a pressão de gás nas mediações seja constante.



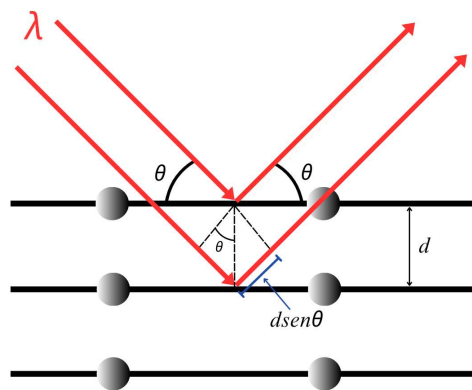
**Figura 3.1** – Esquema de funcionamento da deposição por *magnetron sputtering*. Íons de argônio em vermelho bombardeando o alvo em azul, removendo átomos do alvo que são depositados sobre o substrato.

O catodo pode conter ímãs permanentes (*magnetrons*) capazes de "aprisionar" os elétrons do plasma e os elétrons secundários em trajetórias helicoidais devido à força de Lorentz, o que sustenta ainda mais o plasma e o focaliza na região próxima ao alvo [60]. A figura 3.1 mostra como as linhas de campo magnético se comportam na configuração planar dos *magnetrons* [60].

De maneira geral, a energia que deve ser fornecida ao gás de trabalho, controlada pela ddp aplicada, depende de cada material, e influencia diversos parâmetros de crescimento como taxa de deposição, morfologia dos grãos, estrutura cristalina, entre outros [59, 60]. Os alvos metálicos utilizados neste trabalho são de altíssima pureza (maior que 99,9%).

### 3.2 Difração e Refletividade de raios-X

Raios-X são fótons com comprimento de onda de cerca de 0,15 nm a 0,5 nm, que estão na mesma ordem de grandeza de distâncias interatômicas típicas de cristais [61]. Por esta razão, feixes de raios-X incidentes em um material podem interagir com os planos cristalinos resultando em fenômenos de interferência construtiva e destrutiva. A difração de raios-X (XRD) é regida pela lei de Bragg [12]. A figura 3.2 ilustra a derivação da lei de Bragg. Quando um feixe de comprimento de onda  $\lambda$  incide sobre a amostra fazendo um ângulo  $\theta$  com um determinado plano atômico da amostra (linhas horizontais na figura 3.2), ele pode ser parcialmente refletido com mesmo ângulo  $\theta$ . Seja  $d$  a distância entre planos atômicos paralelos, quando dois feixes refletidos por planos adjacentes possuem uma diferença de caminho óptico, que é dada por  $2d\sin\theta$ , e essa diferença equivale a um número inteiro  $n$  do comprimento de onda  $\lambda$  do feixe incidente, estes interagem construtivamente.



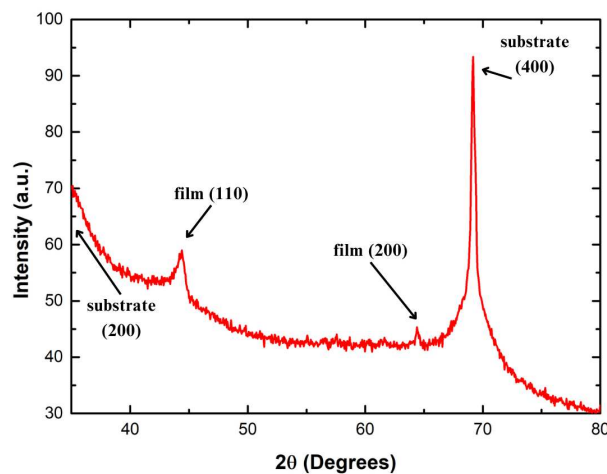
**Figura 3.2** – Ilustração da lei de Bragg, onde um feixe incidente (em vermelho) com ângulo  $\theta$  é refletido pelos planos cristalinos (linhas horizontais em preto) espaçados entre si com distância  $d$ .

Ou seja, a difração ocorre quando a lei de Bragg, matematicamente escrita como [12]:

$$2d\sin\theta = n\lambda, \quad (3.1)$$

é satisfeita. Note que isso só é possível quando  $\lambda \leq 2d$ , o que justifica o uso de raios-X.

A fonte de raios-X é formada por um filamento de tungstênio aquecido que emite elétrons via efeito termiônico em um ambiente a vácuo, que atingem um material como Cu, cujos átomos são excitados e então relaxam emitindo fótons com comprimento de onda característico (para radiação  $K_\alpha$  do Cu,  $\lambda = 0,15418 \text{ nm}$  [61]). A radiação gerada passa por um sistema óptico para criar um feixe colimado e monocromático, e atingir a amostra. Os raios difratados passam por uma segunda óptica até atingir o detector que traduz os fótons capturados em sinal elétrico. O padrão de difração é obtido girando-se a amostra e/ou o detector de maneira a varrer o ângulo  $2\theta$  dos raios coletados. De acordo com a lei de Bragg, certos ângulos  $\theta$  irão gerar elevados sinais de difração referentes aos planos cristalinos presentes na amostra. É possível, portanto, obter informações acerca dos planos e fases cristalinas medidas, a distância interplanar  $d$ , bem como orientações preferenciais, a composição química, entre outras informações [62]. A figura 3.3 apresenta um exemplo de padrão de difração. As informações mais importantes são extraídas a partir das posições, intensidades e larguras dos picos. Por isso, filmes amorfos são "invisíveis" em uma medida de XRD.

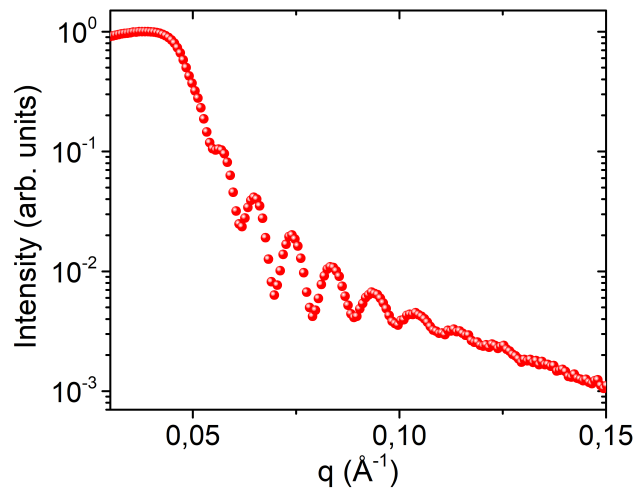


**Figura 3.3** – Exemplo de padrão de difração, com eixo vertical em unidades arbitrárias, sendo também comum utilizar contagens por segundo (cps), em função de  $2\theta$ . Os picos do substrato e filme estão destacados. Medida realizada em um filme de Cr sobre substrato de silício (100) monocristalino.

É importante destacar que, como o sinal XRD depende fortemente dos planos espalhadores, e o comprimento de penetração dos raios-X é muito maior que a espessura usual de filmes finos, o padrão de difração desses sistemas é comumente dominado pelo sinal do substrato que

por muitas vezes é um material monocristalino (como Si e GGG no nosso caso), ocultando o sinal do filme de interesse [61]. Uma das maneiras de contornar este problema é utilizando a técnica de XRD com incidência rasante (*Grazing incidence XRD - GIXRD*), onde o ângulo de incidência do feixe é fixo em um valor muito pequeno, um pouco acima do ângulo crítico, cuja reflexão seria total, e o detector varre  $2\theta$ . Isso impede que o feixe penetre profundamente e atinja o substrato, ressaltando o sinal do filme fino.

Diferente da XRD, a refletividade de raios-X (XRR) depende da reflexão do feixe pela superfície dos materiais, não dependendo da cristalinidade. Nesse modo de operação, o feixe também incide com ângulos muito pequenos, fazendo com que a medida seja sensível a superfícies devido a baixa penetração [63]. Através da medida de XRR é possível obter parâmetros como rugosidade média da superfície do topo da amostra e da interface entre filme e substrato, densidade e espessura do filme com bastante precisão. Em muitos casos essas informações são extraídas quantitativamente dos dados experimentais através ajustes obtidos por simulações da estrutura. A figura 3.4 apresenta uma medida de XRR, que mostra a intensidade do sinal refletido em escala logarítmica em função da componente fora do plano do vetor de espalhamento  $q$ . A relação de  $q$  com o ângulo de incidência é dada por  $q = (4\pi/\lambda)\text{sen}\theta$  [64].



**Figura 3.4** – Exemplo de medida de refletividade em função do vetor  $q$ . Medida realizada em um filme de Cr de 50 nm.

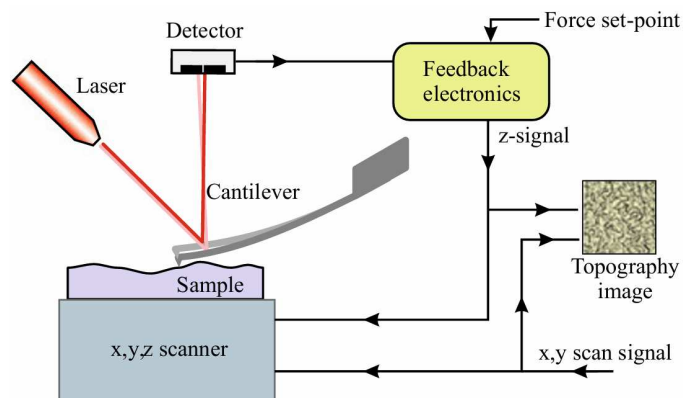
As oscilações periódicas presentes na medida de XRR são chamadas de franjas de Kiessig, que surgem devido à interferência entre o feixe refletido pela superfície do topo e a interface filme/substrato. Para obter a espessura do filme, calcula-se  $t = 2\pi/\Delta q$ , onde  $\Delta q$  nada mais é do que o período das oscilações. A amplitude das franjas está relacionada com o contraste de den-

sidade entre os materiais. A primeira queda da medida indica a passagem pelo ângulo crítico, o que fornece a densidade do filme devido a mudança dos índices de refração [64]. Por fim, a rugosidade está relacionado com a inclinação da queda de intensidade do sinal.

As técnicas de XRD e XRR são essenciais na caracterização de filmes finos, e talvez suas principais vantagens experimentais sejam o caráter não destrutivo e a rapidez da medida.

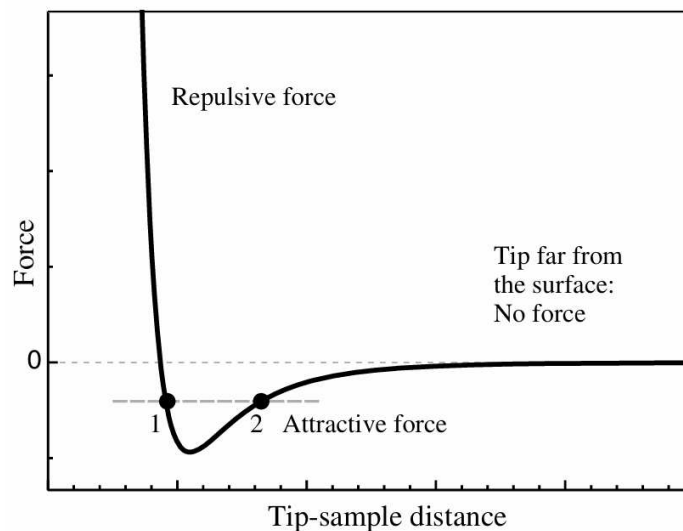
### 3.3 Microscopia de Força Atômica

A microscopia de força atômica (*Atomic Force Microscopy*, AFM) é uma técnica de microscopia de varredura que se baseia na interação entre uma ponta de dimensões nanométricas, e os átomos da superfície da amostra. A técnica foi apresentada à literatura em 1986 por Binnig *et al.* [65]. Como as interações na AFM são de cunho interatômico, elas podem ser atrativas, como uma força de Van Der Waals, ou repulsivas como uma repulsão coulombiana [66]. A força entre a ponta e a amostra é efetivamente medida através de deflexões de uma alavanca flexível, chamada *cantilever*, que possui a ponta em sua extremidade. Um laser incide sobre o *cantilever* e é refletido em um detector óptico (fotodiodo). Dessa maneira, deflexões no *cantilever* são acusadas pela mudança do laser, e a informação é armazenada. Essa informação pode conter o valor  $z$  referente a quanto o *cantilever* está deslocado (dobrado) de sua posição de equilíbrio, a força efetiva sentida pela ponta, que é dada pela lei de Hooke  $F_{mola} = -kz$  onde o *cantilever* funciona como uma mola de constante  $k$  conhecida, entre outras [66]. O microscópio é equipado com uma eletrônica de *feedback* responsável por controlar os parâmetros continuamente durante a medida, e também controlar o suporte da amostra alterando as posições  $x$  e  $y$  para varrer toda a área de interesse, bem como gerar a imagem da topografia em tempo real. A figura 3.5 ilustra o microscópio de força atômica com os componentes mencionados.



**Figura 3.5** – Ilustração de um microscópio de força atômica. Note o fluxo das informações de controle e obtenção de dados representados pelas setas em preto, ligando os componentes mencionados. Figura adaptada da ref. [66].

Devido as diversas forças que podem surgir entre a ponta e a amostra, que dependem fortemente da distância relativa entre elas, podemos identificar três diferentes regimes de interação: um cuja ponta está longe o suficiente da amostra de maneira que nenhuma interação entre elas é sentida; uma região onde a ponta começa a se aproximar mais da amostra e uma força atrativa é sentida entre elas; e um terceiro regime que surge para distâncias muito curtas, onde uma força repulsiva intensa aparece [66]. Tais regimes são ilustrados na figura 3.6.



**Figura 3.6** – Ilustração da relação entre força e distância ponta-amostra. O caráter da interação remete ao potencial de Lennard-Jones [66]. Figura adaptada da ref. [66].

Os diferentes modos de operação do AFM atuam em regimes distintos da relação força-distância, principalmente devido ao aparecimento de um mínimo que divide as regiões de decrescimento e crescimento monotônico. Note que os pontos destacados 1 e 2 da figura 3.6 possuem mesmo

valor de força para distâncias diferentes, que não seria possível diferenciar na medida da topografia.

O chamado modo estático do AFM opera com o *cantilever* mantido a uma distância fixa, de maneira que a força atômica entre a ponta e amostra é mantida constante. Para tal, a amostra (ou ponta) deve ter sua posição  $z$  correspondente calculada a todo momento pelo sistema de *feedback*, e tais valores fornecem a topografia. As medidas podem ser realizadas no regime repulsivo da força, onde é chamado de modo de contato, visto que os últimos átomos da ponta estão em contato direto com os átomos da superfície da amostra. O modo estático fornece imagens com melhor resolução, mas tende a ser mais lento e mais invasivo, podendo ser danoso a amostras mais sensíveis [66].

No modo dinâmico do AFM, o *cantilever* vibra em uma frequência próxima de sua ressonância de vibração livre. Esta vibração é excitada, e quando a ponta interage com a amostra, a frequência de ressonância muda, o que causa uma mudança na amplitude de oscilação. Tal mudança pode ser usada como detecção e servirá para regular a distância entre ponta e amostra. Este modo pode operar na região atrativa da força, onde é chamado de modo de não-contato. Por não manter contato direto, nesse modo as forças sentidas pela amostra são muito menos intensas, o que torna essa forma favorável para amostras macias. A dinâmica do *cantilever* pode ser bem descrita como um oscilador harmônico forçado com amortecimento, onde a força excitadora costuma ser proveniente de um piezoelétrico de corrente alternada que gera a vibração e as forças dissipativas podem vir de resistência do ar ou mesmo resistências internas do *cantilever* [66].

O AFM é uma técnica que requer um ambiente muito bem controlado. Para evitar gotículas de água na superfície da amostra, que geram complicações como mudar a frequência de vibração, a umidade relativa do ar deve estar baixa. Vibrações externas, desde barulhos e ruídos nas proximidades, até tremores advindos do tráfego de veículos, podem interferir na medida, gerando artefatos no sinal e até danos na ponta. Alguns aparelhos podem operar até mesmo em condições de alto vácuo para evitar tais problemas [66].

O AFM tem sensibilidade e resolução para medir alturas  $Z$  de alguns angstroms (ou picômetros dependendo da resolução fornecida pelo equipamento), até alguns micrometros, varrendo áreas  $XY$  de centenas de micrometros até alguns nanometros [67]. É possível aplicar a técnica de AFM para estimar precisamente a espessura de filmes finos, crescidos em formato de degrau, bem como obter parâmetros como rugosidade da superfície, tamanho médio dos grãos, entre outros.

### 3.4 Magnetometria de amostra vibrante

A magnetometria de amostra vibrante (*Vibrating Sample Magnetometry*, VSM) foi originalmente desenvolvido por Foner [68] em 1956, e até hoje é uma das técnicas mais robustas de caracterização de magnetização utilizadas, podendo medir materiais ferromagnéticos, ferri-magnéticos, antiferromagnéticos, paramagnéticos e diamagnéticos. No VSM, a amostra é posicionada dentro de um campo magnético homogêneo  $H$ , e o porta amostra vibra senoidalmente com uma amplitude fixa. A vibração da amostra magnetizada induz uma força eletromotriz via Lei de Faraday em bobinas estacionárias, gerando a tensão dada por [69, 70]:

$$V(t) = \sum_n \int_A \frac{\partial \vec{B}(t)}{\partial t} d\vec{A} \quad (3.2)$$

onde  $\vec{A}$  é o vetor de área de uma volta da bobina e a soma é realizada sobre  $n$  voltas, e o campo  $\vec{B}(t)$  é dado pela aproximação dipolar, ou seja, tratando a amostra como um dipolo pontual, válido na situação em que as dimensões da amostra são muito menores que sua distância até as bobinas. Matematicamente, temos [70]:

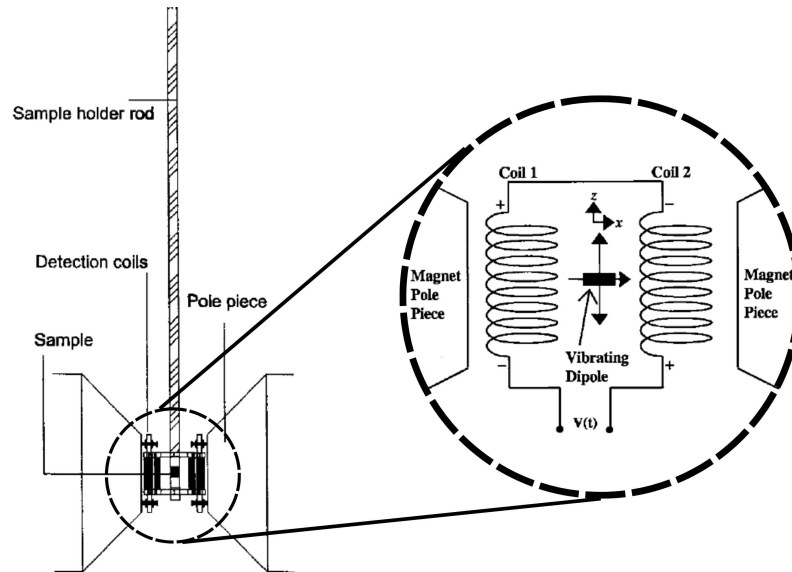
$$\vec{B}(\vec{r}) = \frac{\mu_0}{4\pi} \left( \frac{\vec{m}}{r^3} - \frac{3(\vec{m} \cdot \vec{r})\vec{r}}{r^5} \right) \quad (3.3)$$

onde  $\vec{r}$  é um ponto dentro da bobina de detecção,  $\mu_0$  a permeabilidade magnética do vácuo, e  $\vec{m}$  a magnetização de dipolo da amostra. Isso resulta em uma tensão gerada [69, 70]:

$$V(t) \propto ma\omega \cos(\omega t) \quad (3.4)$$

onde a vibração senoidal  $a \sin(\omega t)$  (amplitude  $a$  e frequência  $\omega$ ) da amostra gera a oscilação no sinal detectado. Indiretamente, a tensão  $V(t)$  mede a magnetização  $m$  da amostra.

A figura 3.7 ilustra uma montagem típica de um VSM. Um VSM pode conter desde duas até doze bobinas detectoras, o que altera a geometria da área de fluxo. Geralmente o VSM possui um amplificador *lock-in* que compara o sinal detectado  $V(t)$  com um sinal elétrico de referência que esteja em fase com a vibração da amostra, fazendo com que quaisquer desvios de fase sejam detectados [69]. O campo magnético pode ser gerado por eletromagnetos convencionais que atigem até 3 T ou magnetos supercondutores podendo chegar até 16 T [71]. A medida geralmente é bastante rápida, e a resolução de ruído de um VSM comercial pode chegar até  $10^{-7}$  emu [71]. Para o caso de caracterização de filmes finos com dimensões de área da ordem de poucos (ou frações) de milímetros, tal resolução é mais que suficiente.

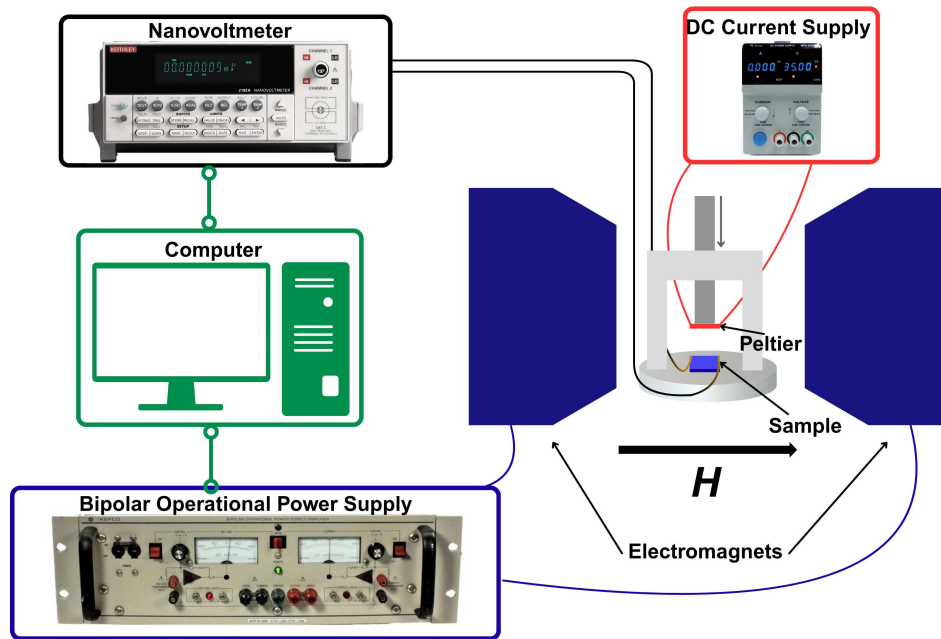


**Figura 3.7** – Ilustração de um VSM. Na figura são indicados a haste porta-amostra, os polos magnéticos do eletroímã, duas bobinas de detecção e a amostra posicionada no centro. Figuras adaptadas da ref. [70]

A medida fornecida pelo VSM é uma curva de histerese padrão, com campo magnético  $H$  aplicado no eixo horizontal (em  $Oe$ ) pela magnetização da amostra (em emu). Muitos aparelhos comerciais incluem uma interface de tratamento de dados, sendo possível normalizar a curva de magnetização desde que forneça o volume da amostra, subtrair uma reta de inclinação, entre outras funcionalidades.

### 3.5 Medida de transporte do efeito Seebeck de Spin longitudinal

A montagem experimental para realização das medidas elétricas do LSSE neste trabalho foi composta pelos seguintes componentes: 1) um eletroímã alimentado por uma fonte de tensão bipolar contínua, para gerar o campo magnético externo  $\vec{H}$ ; 2) nanovoltímetro de alta precisão para medir a tensão elétrica  $V_{LSSE}$  gerada por ISHE e/ou IOHE e/ou IOREE; 3) uma célula Peltier, alimentada por uma fonte de corrente contínua, para gerar o gradiente térmico  $\vec{\nabla}T$  ao longo da amostra; 4) um porta-amostra que permite rotação de  $360^\circ$  no plano e que possui um suporte para posicionar o Peltier cuidadosamente sobre o topo da amostra. A figura 3.8 ilustra os componentes da montagem experimental.



**Figura 3.8** – Montagem experimental do LSSE.

A diferença de temperatura  $\Delta T$  entre as superfícies do topo e base da amostra foi determinada com auxílio de termopares. O Peltier é sempre colocado no topo da amostra, podendo esquentar ou esfriar (corrente DC entre -800mA até 800mA). A temperatura ambiente é controlada em 18° C, porém a amostra pode ser submetida a temperaturas maiores ou menores que este valor dependendo da configuração do Peltier. Apenas o valor de  $\Delta T$  é experimentalmente relevante para o LSSE, ou seja, os valores absolutos de temperatura do topo e base da amostra não. Uma pasta térmica é utilizada entre o Peltier e o topo do dispositivo, e entre a base do dispositivo e o porta-amostra.

Os contatos elétricos nas extremidades da amostra são realizados com fios finos de cobre fixados com tinta de prata. O porta amostra é então posicionado centralizado entre os eletroímãs, de maneira a garantir uniformidade do campo magnético. A aplicação do campo magnético e aquisição de dados do nanovoltímetro é totalmente automatizada por computador, e é possível acompanhar a medida em tempo real. A varredura de campo magnético é realizada desde um valor máximo de 300 *Oe* até zero, e tem sentido invertido até um valor mínimo de -300 *Oe* (e vice-versa). Na medida típica de LSSE, a inversão de campo magnético resulta em uma inversão da polarização da tensão elétrica medida, o que gera um degrau característico. Isso ocorre devido a mudança da magnetização do material FMI, que conseqüentemente muda a polarização dos spins da corrente de spins injetada.

# Capítulo 4

## Resultados e discussões

Neste capítulo, foram investigados os mecanismos de conversão de correntes spin-para-carga e orbital-para-carga em filmes finos de Cr. Foram fabricadas bicamadas de ferrimagneto isolante/metal não-magnético (FMI/NM) e tricamadas de FMI/NM1/NM2. O YIG foi empregado como material FMI nos experimentos de LSSE. Filmes monocristalinos de YIG de aproximadamente 1 micrometro de espessura foram crescidos sobre substrato de granada de gadolínio e gálio,  $Gd_3Ga_5O_{12}$  (*Gadolinium Gallium Garnet*, GGG), de orientação (111) pela técnica de epitaxia de fase líquida. As camadas metálicas (Pt e Cr) foram depositadas pela técnica de DC *sputtering*.

Para o Cr, foi realizada uma etapa de calibração de espessura por tempo de deposição sobre substrato de Si, estabelecendo uma taxa de crescimento dos filmes que será abordada na seção 4.1. Também foi realizada uma breve investigação acerca da estrutura cristalina do Cr para otimização dos filmes crescidos.

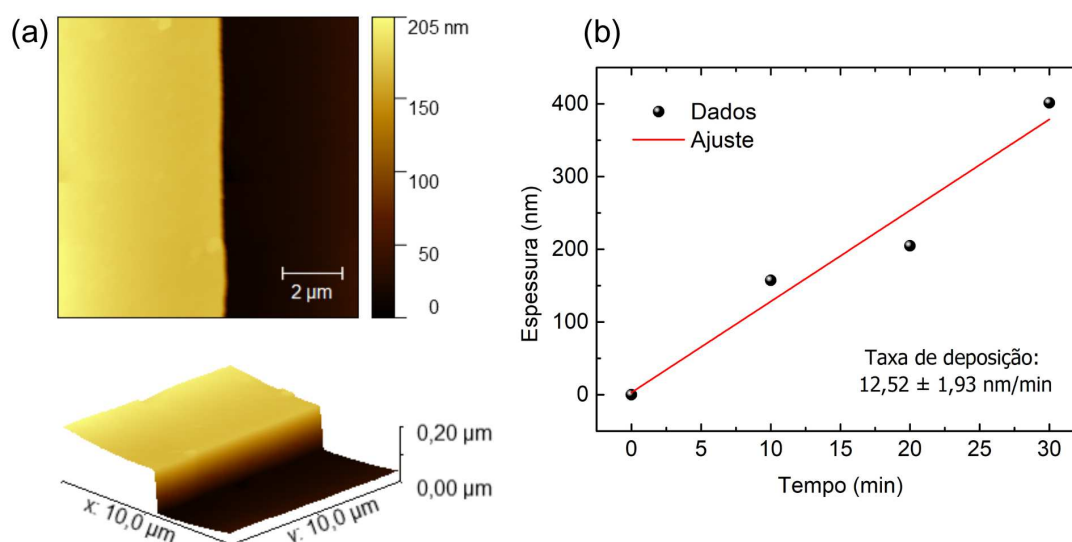
Um estudo sistemático de caracterização estrutural e cristalina em amostras de GGG/Cr e GGG/Pt/Cr será apresentado na seção 4.2, onde foram empregadas as técnicas de difração de raios-X (XRD), refletividade de raios-X (XRR), microscopia de força atômica (AFM) e microscopia eletrônica de transmissão de alta resolução (HR-TEM).

Na seção 4.3 foram investigadas as curvas de histerese de filmes de Cr em diferentes substratos para estudar o estado magnético dos filmes utilizados neste trabalho.

Os principais resultados experimentais de spin Seebeck longitudinal nos dispositivos YIG/Pt, YIG/Cr e YIG/Pt/Cr serão apresentados nas seções 4.4 e 4.5. Uma análise fenomenológica foi empregada para interpretar os resultados obtidos.

#### 4.1 Calibração da espessura e caracterização dos filmes de Cr sobre Si

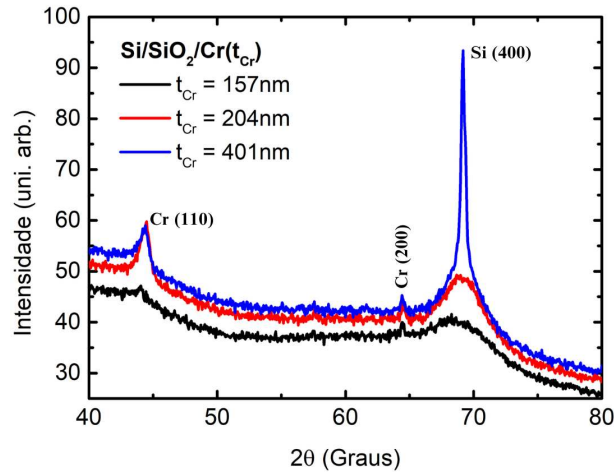
Os filmes de Cr foram depositados com potência DC de 150 W, rotação do substrato de 40 rpm, com diferentes tempos de deposição, em formato de degrau sobre substrato de Si (100). A altura do degrau foi medida pela técnica de microscopia de força atômica (AFM), no modo dinâmico, para cada uma das amostras, como apresenta a figura 4.1 (a) para amostra depositada por 10 minutos. Para os tempos de deposição de 10, 20 e 40 minutos foram obtidas as espessuras 157, 204 e 401 nm, respectivamente. O gráfico da figura 4.1 (b) apresenta a espessura medida por AFM em função do tempo de deposição, de onde foi extraída uma taxa de deposição para o Cr de  $12,5 \pm 1,93$  nm/min através de ajuste linear (em vermelho). Todos os filmes de Cr utilizados neste trabalho foram depositados sob as mesmas condições, incluindo pressão de base de cerca de  $7 \times 10^{-7}$  Torr, pressão de trabalho de  $2,3 \times 10^{-3}$  Torr e temperatura de 22°C.



**Figura 4.1 – (a):** Imagens de AFM do filme de Cr com tempo de deposição de 10 minutos. A altura do degrau obtida foi de 157 nm. **(b)** Espessura por tempo de deposição dos filmes de Cr sobre substrato de silício, com potência nominal de 150 W. Os pontos em preto são dados experimentais obtidos por AFM e em vermelho o ajuste linear.

A estrutura cristalina dos filmes de Cr depositados para calibração foi caracterizada por meio da técnica de XRD, como mostra a figura 4.2. Os picos mais pronunciados observados para o Cr são referentes aos planos cristalinos 110 (aproximadamente  $44,4^\circ$ ) e 200 (aproximadamente  $64,6^\circ$ ), relacionados à estrutura cúbica de corpo centrado (*body centered cubic*, bcc). A figura 4.2 também apresenta o pico 440 do substrato de Si. É possível notar que a intensidade

do sinal dos picos de Cr para o filme mais fino é expressivamente menor.

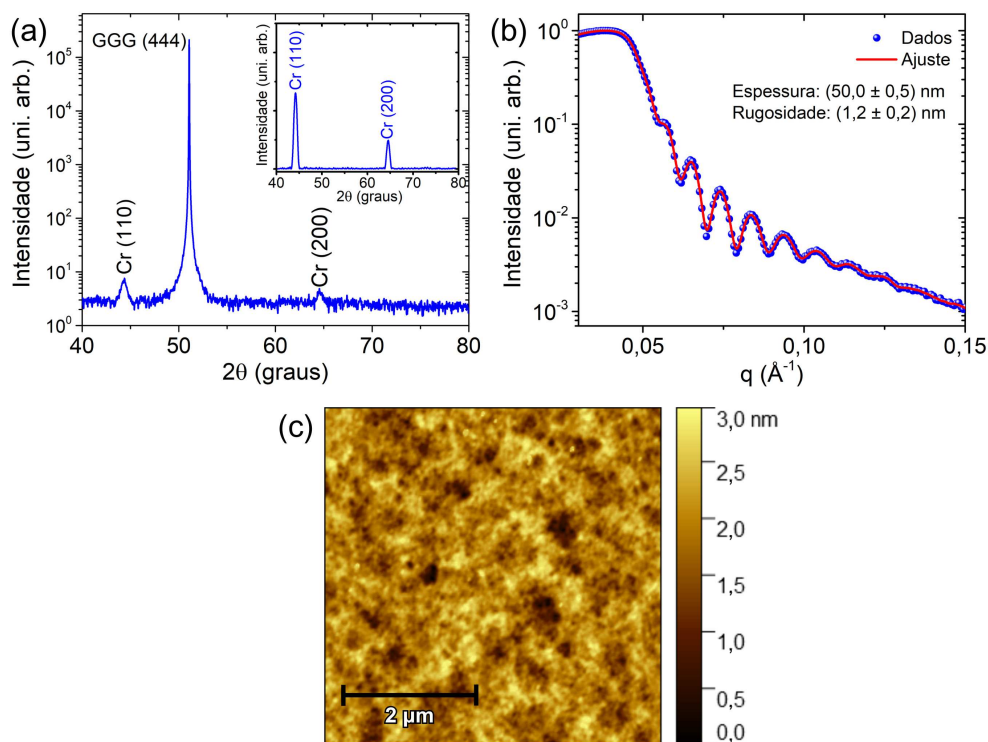


**Figura 4.2** – Medida de XRD de amostras de Cr com diferentes espessuras, crescidas sobre Si(100). Em destaque, estão os picos (110) e (200) do Cr, bem com o pico (400) pronunciado do substrato.

#### 4.2 Caracterização dos filmes de GGG/Cr e GGG/Pt/Cr

Para caracterização estrutural e morfológica dos filmes de Cr, inicialmente foi depositado 50 nm de Cr sobre substrato de GGG. Uma vez que o GGG possui parâmetro de rede similar ao YIG [72, 73], e é utilizado como substrato para seu crescimento favorecendo a formação de filmes monocristalinos bem orientados, espera-se que a interface GGG/Cr seja muito semelhante à interface YIG/Cr.

A textura cristalográfica da amostra GGG/Cr(50 nm) foi analisada por XRD como mostra a figura 4.3 (a). O padrão de difração revela a orientação preferencial do plano (110) do Cr, bem como o pico (200), ambos associados à estrutura bcc. O pico de difração (444) do substrato de GGG é também mostrado prevalentemente. O *inset* da figura 4.3 (a) mostra a medida de XRD com incidência rasante, ocultando o pico do GGG da medida e otimizando os picos de difração do Cr. A escolha da espessura de 50 nm para a amostra referência foi tomada com base no baixo fator de espalhamento atômico do Cr, que faz com que a medida do padrão de difração de amostras abaixo de 10 nm, tais quais às utilizadas nos dispositivos de LSSE, seja experimentalmente desafiadora.

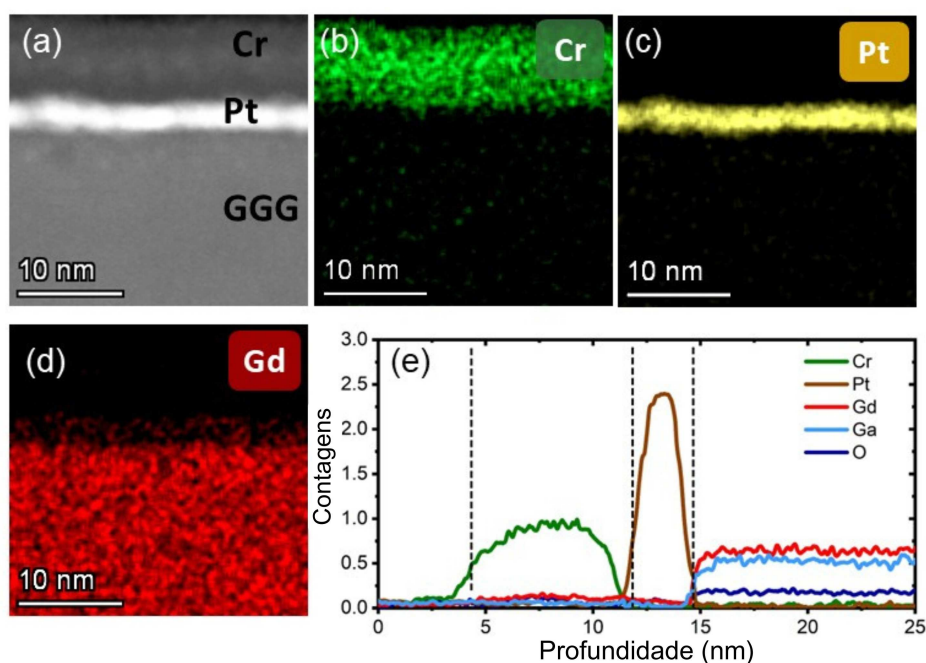


**Figura 4.3** – (a): Padrão XRD do filme de 50 nm de Cr crescido sobre substrato de GGG. O *inset* é a medida XRD com incidência rasante (GIXRD). (b): Medida de XRR da camada de 50 nm de Cr. Em azul os dados experimentais e em vermelho o ajuste simulado. (c): Imagem de AFM da superfície do filme GGG/Cr(50 nm).

A figura 4.3 (b) apresenta a medida de XRR da camada de 50 nm de Cr. O ajuste teórico em vermelho foi realizado através da simulação por método de Parratt, fornecendo uma rugosidade de  $1,2 \pm 0,2$  nm. A topografia da superfície do filme GGG/Cr(50 nm) foi apurada por AFM no modo dinâmico, como mostra a figura 4.3 (c), de onde extraiu-se uma rugosidade média quadrática  $R_q = 0,42 \pm 0,06$  nm. Note que existe uma discrepância com a rugosidade obtida por XRR. É importante mencionar que a rugosidade obtida por AFM avalia apenas uma região limitada da superfície da amostra cuja varredura foi realizada, enquanto o valor obtido por simulação na curva de XRR, contém a informação de toda superfície do filme. Ambos os valores obtidos estão dentro do esperado para filmes depositados por *sputtering*.

Uma amostra de GGG/Pt(2 nm)/Cr(6 nm) foi sintetizada para caracterização da qualidade estrutural e distribuição química da interface Cr/Pt, que é fundamental nos dispositivos tricamadas de YIG/Pt/Cr empregados nos experimentos de LSSE. A camada de Pt foi depositada também por *DC magnetron sputtering*, com corrente elétrica entre eletrodos fixa em 50 mA, e mesmas condições de pressão e temperatura da camada de Cr, descritas anteriormente. Foi utilizada a técnica de microscopia eletrônica de transmissão de varredura (*Scanning Transmission Electron Microscopy*, STEM) para capturar imagens da seção transversal do filme de

GGG/Pt/Cr, como mostra a figura 4.4 (a), onde pode-se observar o bom comportamento das camadas da heteroestrutura. As figuras 4.4 (b)-(d) apresentam os mapas elementares correspondentes para Cr, Pt e Gd, respectivamente, obtidos por espectroscopia de raios-X por dispersão em energia (*Energy Dispersive X-Ray*, EDX). A distribuição elementar confirma a localização espacial de cada camada constituinte, corroborando ainda mais a ausência de interdifusão entre Cr e Pt, ou entre os filmes metálicos e substrato. O sinal do Cr está de fato contido dentro da espessura esperada, e a distribuição da Pt é uniforme, indicando uma composição consistente do filme. O GGG por sua vez permanece quimicamente distinto, sem evidências de difusão deste ao longo das camadas metálicas.



**Figura 4.4** – Caracterização por STEM e EDX da heteroestrutura GGG/Pt/Cr. (a): Imagem de STEM da seção transversal da bicamada Cr/Pt crescida sobre substrato de GGG, mostrando interfaces comportadas e ausência de interdifusão. (b–d): Mapas elementares por EDX correspondentes a Cr, Pt e Gd respectivamente. (e): Perfil de linha de profundidade por EDX, confirmando a transição abrupta de elementos nas interfaces.

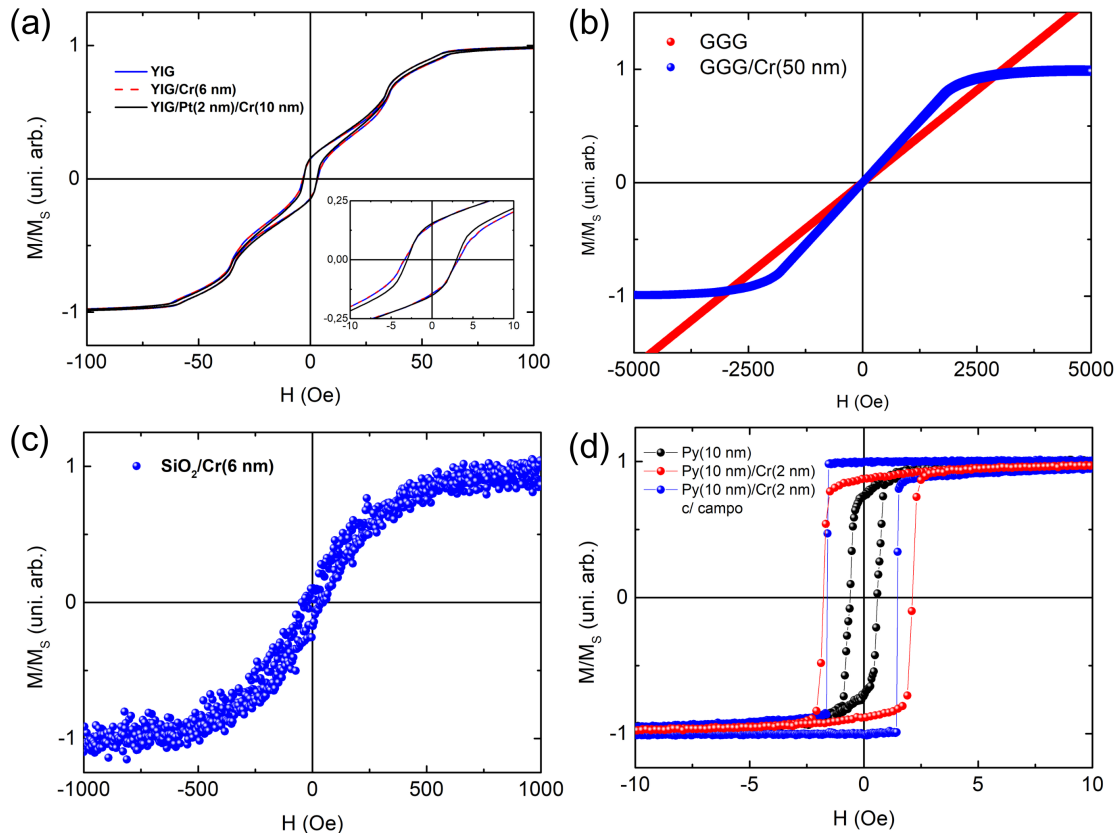
O perfil de profundidade quantitativo por EDX mostrado na figura 4.4 (e) fornece uma confirmação adicional para a nitidez química das interfaces. As transições de intensidade entre as camadas de Pt, Cr e GGG ocorrem em uma faixa muito estreita, reforçando a ideia de que a difusão interfacial é mínima ou desprezível. Tais resultados demonstram a integridade estrutural e a estabilidade composicional da heteroestrutura Pt/Cr, que são cruciais para garantir um desempenho confiável nas aplicações exigidas neste trabalho.

### 4.3 Caracterizações magnéticas

Para as caracterizações magnéticas das amostras utilizadas nesta dissertação, foram obtidas curvas de histerese por meio de medidas realizadas em um VSM. A figura 4.5 apresenta curvas de magnetização  $M$  normalizadas pelo valor de saturação  $M_S$  individual de cada amostra, por campo magnético. A figura 4.5(a) apresenta as curvas magnéticas do YIG puro em azul, YIG/Cr(6 nm) em vermelho tracejado e YIG/Pt(2 nm)/Cr(10 nm) em preto. É possível observar que o forte sinal do YIG ( $M_S$  da ordem de  $10 \text{ m emu}$  para  $H = 100$ ) é dominante em todas as curvas. A adição de 6 nm de Cr não gera nenhuma assinatura magnética distinta comparada com a amostra de YIG puro, visto que as curvas são idênticas. Para a tricamada YIG/Pt(2 nm)/Cr(10 nm), é possível observar uma pequena mudança na coercividade de cerca de  $0,3 \text{ Oe}$ , além de algumas regiões onde a curva destoa ligeiramente comparada às anteriores. O formato peculiar da curva de magnetização do YIG está relacionado com sua anisotropia magnética intrínseca [74]. Também foi investigada a curva magnética do filme de GGG/Cr(50 nm), comparando-a com a curva do GGG puro, como mostra a figura 4.5(b). A curva de magnetização do GGG apresenta paramagnetismo que não tende a saturar, enquanto que adicionando 50 nm de Cr, observa-se uma tendência de saturação a partir de aproximadamente 2 kOe. Além disso, a suscetibilidade magnética também é alterada. Isto indica que o Cr possui uma assinatura magnética que torna-se mais perceptível para campos mais altos (por volta de kOe). Porém, para campos mais baixos, o paramagnetismo do substrato é dominante. Na intenção de investigar a magnetização do Cr sem forte influência dos substratos de YIG e GGG, foi realizada uma medida magnética na amostra de  $Si/SiO_2/Cr(6\text{nm})$ , apresentada na figura 4.5(c), onde a inclinação negativa devido ao diamagnetismo do substrato foi subtraída. O sinal de magnetização observado possui baixíssima intensidade ( $M_S$  da ordem de  $\mu\text{emu}$ ), e é proveniente da camada de Cr.

Por fim, foi investigado se uma possível assinatura antiferromagnética do Cr poderia se manifestar em amostras de Permalloy (Py,  $Ni_{80}Fe_{20}$ )/Cr, por meio do fenômeno de *exchange bias* (EB) [75–77], que se manifestaria como um deslocamento horizontal do *loop* de histerese. Para tal, foram crescidas amostras de Py(10 nm), Py(10 nm)/Cr(2 nm) e uma amostra de Py(10 nm)/Cr(2 nm) com campo magnético aplicado durante o crescimento, cuja as curvas magnéticas são mostradas na figura 4.5(d). A curva para o Py puro (em preto) apresenta a menor coercividade dentre as amostras. Com a adição de 2 nm de Cr, a curva (em vermelho) aumenta em coercividade, e apresenta um ligeiro deslocamento para a direita de cerca de  $0,15 \text{ Oe}$ , que pode ser uma possível assinatura do acoplamento de EB na bicamada Py/Cr(2nm). Entretanto,

tal deslocamento não é evidenciado em amostras com espessuras maiores para Cr. A amostra crescida com campo (em azul) mostra claramente uma curva menos suave de histerese, onde possivelmente anisotropias foram induzidas durante o crescimento. Ainda sim, nenhum deslocamento relevante de EB é observado.



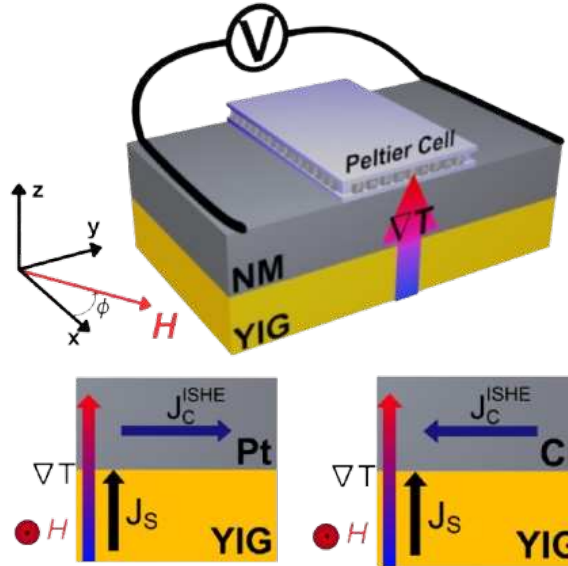
**Figura 4.5** – Curvas de histerese medidas por VSM. **(a)** Amostras de YIG (azul), YIG/Cr(6 nm) (vermelho tracejado) e YIG/Pt(2 nm)/Cr(2 nm) (preto). O *inset* dá detalhe das curvas na região de reversão da magnetização. **(b)** Curva da amostra de GGG (em vermelho), e GGG/Cr(50 nm) (em azul). **(c)** Curva de Cr(6 nm) sobre  $SiO_2$ . **(d)** Amostras de Py(10 nm) (preto), Py(10 nm)/Cr(2 nm) (vermelho) e Py(10 nm)/Cr(2 nm) com campo magnético aplicado durante crescimento (azul).

Os resultados de magnetização indicam que qualquer assinatura paramagnética ou anti-ferromagnética do Cr não é intensa o suficiente para ser perceptível nas amostras de YIG/Cr e YIG/Pt/Cr, de maneira que não influencia os experimentos de LSSE no regime de temperaturas trabalhado. Porém, o Cr de fato possui propriedades magnéticas não triviais, como acusam as caracterizações feitas nos demais substratos. Para melhor caracterização magnética, seria necessário realizar também uma análise da dependência térmica das curvas de magnetização, o que não foi experimentalmente viável no nosso caso. Outro fato importante a se destacar é de que as medidas de LSSE, apresentadas nas próximas seções, trabalham com o aquecimento da superfície das amostras, onde a temperatura de Néel de *bulk* do Cr (311 K [78]) é certamente

ultrapassada durante os experimentos. Além disso, a temperatura de Neél pode ser afetada pela espessura dos filmes [21, 79], o que não será tratado neste trabalho.

#### 4.4 Spin Seebeck Longitudinal: Amostras de YIG/Cr(6nm) e YIG/Pt(6nm)

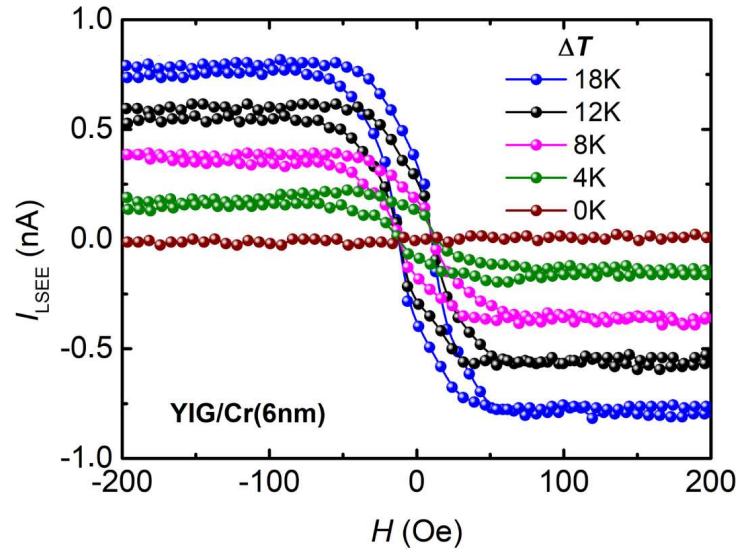
A técnica de injeção de corrente pura de spins via efeito Seebeck de spin longitudinal (LSSE) foi empregada para investigar os mecanismos de conversão spin-para-carga nas amostras YIG/Cr(6 nm) e YIG/Pt(6 nm). Como discutido na seção 2.5, no LSSE a aplicação de um gradiente térmico gera corrente pura de spins que é injetada na camada NM adjacente. Como o SOC do YIG é negligenciável, espera-se que nenhuma corrente orbital seja injetada. A figura 4.6 ilustra esquematicamente o LSSE nas amostras YIG/NM.



**Figura 4.6** – Esquema do LSSE na amostra YIG/NM.

Um módulo de Peltier foi utilizado para aplicar o gradiente térmico  $\nabla T$ . A corrente de spins  $\vec{J}_S$  é injetada no mesmo sentido do gradiente térmico (direção  $\hat{z}$ ). Um campo magnético externo  $\vec{H}$  é aplicado para magnetizar o YIG e polarizar os spins. De acordo com a equação (2), uma corrente de spin  $J_S$  na direção  $\hat{z}$  polarizada na direção  $\hat{x}$  gera uma corrente de cargas na direção  $\hat{y}$ . O sentido da corrente de cargas ( $\pm\hat{y}$ ) é determinado pela condutividade spin Hall do material. Na literatura [18],  $\sigma_{SH}^{Cr} = -162$  e  $\sigma_{SH}^{Pt} = +2212$ , em unidades de  $(\hbar/e)(\Omega cm)^{-1}$ . Portanto, estes materiais geram corrente de carga em sentidos opostos através do ISHE.

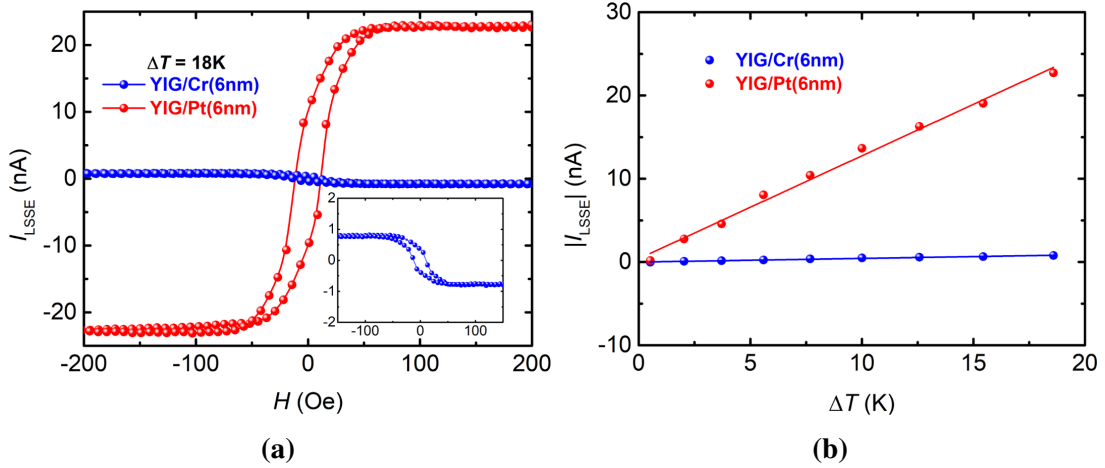
A figura 4.7 mostra a medida da corrente elétrica  $I_{LSSE} = V_{LSSE}/R_{NM}$  pela varredura do campo magnético  $H$ , para diferentes valores de diferença de temperatura  $\Delta T$ .



**Figura 4.7** – Corrente  $I_{LSSE}$  por campo magnético  $H$ , para  $\phi = 0$ , da amostra YIG/Cr(6 nm). Diferentes valores de diferença de temperatura  $\Delta T = 0, 4, 8, 12$  e  $18$  K são apresentados em cores diferentes.

A medida da figura 4.7 apresenta o degrau característico do LSSE, que está diretamente relacionado à reversão da magnetização do YIG com a mudança do sentido de campo magnético. Note que para valores negativos(positivos) de campo magnético, o sinal da corrente de carga gerada no Cr é positivo(negativo), o que está condizente com sua condutividade spin Hall negativa. É possível observar que o sinal elétrico medido aumenta em intensidade com o aumento de  $\Delta T$ .

Comparamos as medidas de LSSE feitas na amostra YIG/Cr(6 nm) com a amostra controle YIG/Pt(6 nm), apresentadas na figura 4.8. Na figura 4.8 (a), o sinal  $I_{LSSE}$  pela varredura de campo para ambas as amostras, com mesmo valor de  $\Delta T$ , evidencia a discrepância na intensidade da conversão spin-para-carga dos diferentes materiais. O sinal da Pt é cerca de 20 vezes mais intenso que do Cr. Além disso, o *inset* dá detalhe da curva em azul do Cr (mesma curva em azul da figura 4.7), onde é possível notar que de fato a polarização é oposta à da Pt, devido às condutividades spin Hall serem opostas. A figura 4.8 (b) mostra a dependência linear do módulo do sinal  $I_{LSSE}$  com a diferença de temperatura, dado por  $I_{LSSE} = \delta_{SSE}\Delta T$ .

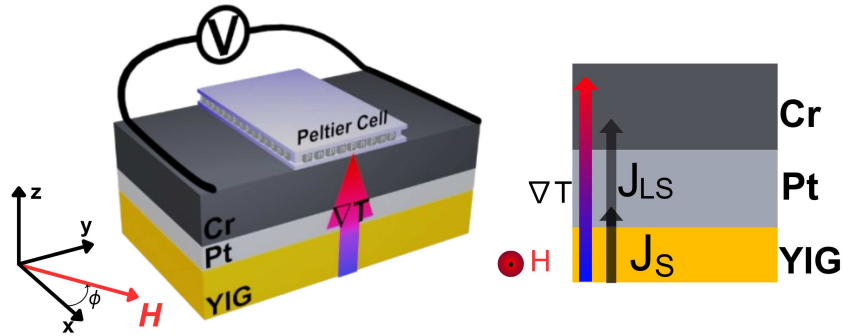


**Figura 4.8** – (a) Comparação da varredura de campo para o sinal  $I_{LSSE}$  entre as amostras YIG/Pt(6 nm) (em vermelho) e YIG/Cr(6 nm) (em azul), com  $\Delta T = 18K$  fixo. O *inset* apresenta um zoom na curva em azul do YIG/Cr(6 nm). (b) Dependência do módulo do sinal  $I_{LSSE}$  na região de saturação com  $\Delta T$ , para YIG/Pt(6 nm) (em vermelho) e YIG/Cr(6 nm) (em azul).

O coeficiente  $\delta_{SSE}$  extraído através do ajuste linear na figura 4.8(b) para cada amostra é de  $\delta_{SSE}(YIG/Pt) = 1,23 \text{ nA/K}$  e  $\delta_{SSE}(YIG/Cr) = -0,049 \text{ nA/K}$ . É possível utilizar as equações 2.17 e 2.18 para estimar o ângulo Hall de spin de ambos os materiais. Utilizando  $C_S = 3 \times 10^{-24} \text{ erg} \cdot \text{cm} \cdot \text{K}^{-1}$  [58, 80],  $\rho \approx 1$  para espessura do YIG da ordem de unidade de micrometros [80, 81],  $g_{eff}^{\uparrow\downarrow} = 1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$  [58],  $t_{amostra} = 0,5 \text{ mm}$ ,  $w = 1,5 \text{ mm}$  para ambas as amostras, e os comprimentos de difusão de spin  $\lambda_S^{Pt} = 3,7 \text{ nm}$  [58] e  $\lambda_S^{Cr} = 1,8 \text{ nm}$  [27], foram estimados os ângulos Hall de spin  $\theta_{SH}^{Pt} = 0,027$  e  $\theta_{SH}^{Cr} = -0,0016$ , que estão de acordo com os valores esperados para esses materiais.

#### 4.5 Spin Seebeck Longitudinal: Amostras de YIG/Pt(2 nm)/Cr( $t_{Cr}$ )

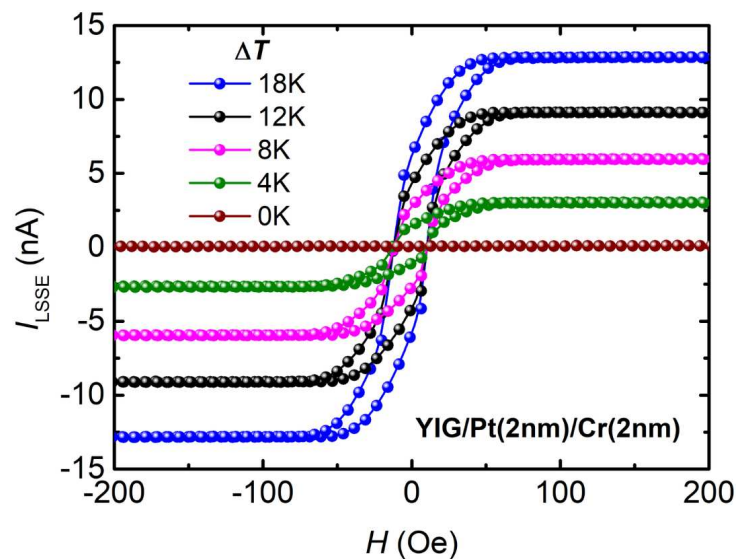
Para investigar a conversão orbital-para-carga no Cr, foram fabricadas heteroestruturas de YIG/Pt(2 nm)/Cr( $t_{Cr}$ ), variando a espessura  $t_{Cr}$  de 2 a 10 nm. Quando a corrente de spin  $J_S$  é injetada do YIG para Pt, o spin e o OAM se acoplam devido ao forte SOC da Pt, formando uma corrente spin-orbital acoplada  $J_{LS}$  [32]. Uma fração dessa corrente é convertida em corrente de carga pelo ISHE na Pt (o IOHE na Pt foi negligenciado uma vez que  $\sigma_{OH}^{Pt} = +144$  [18] é uma ordem de grandeza menor que  $\sigma_{SH}^{Pt}$ ). Parte da corrente  $J_{LS}$  é transferida para a camada de Cr. A figura 4.9 ilustra o LSSE na amostra tricamada.



**Figura 4.9** – Esquema do LSSE na amostra YIG/Pt/Cr.

A espessura de 2 nm da Pt foi escolhida com base no estudo feito na ref. [32], onde foi mostrado que tal valor de espessura para Pt garante a maior eficiência de geração e injeção da corrente spin-orbital acoplada para a camada adjacente.

A figura 4.10 mostra o comportamento da corrente LSSE da amostra YIG/Pt(2 nm)/Cr(2 nm) para diversas diferenças de temperatura. Pode-se notar que o sinal elétrico efetivo possui polarização positiva, assim como da amostra YIG/Pt(6 nm), e uma apresenta intensidade comparável com a mesma.

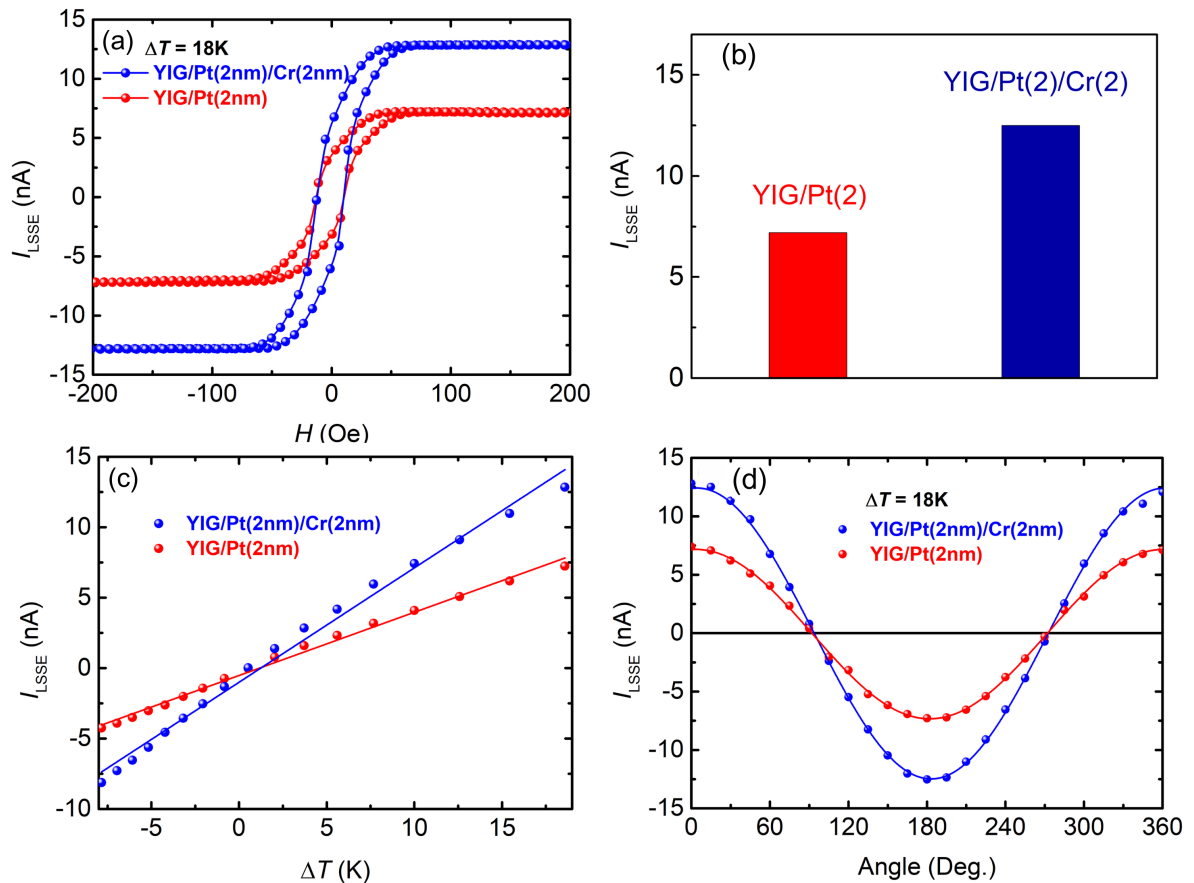


**Figura 4.10** – Sinal  $I_{LSSE}$  por campo magnético  $H$ , para  $\phi = 0^\circ$ , da amostra YIG/Pt(2 nm)/Cr(2 nm). Diferentes valores de  $\Delta T = 0, 4, 8, 12$  e  $18$  K são apresentados em cores diferentes.

Foi utilizada outra amostra comparativa, YIG/Pt(2 nm), para avaliar a contribuição da

camada de 2 nm de Cr para o sinal total. A figura 4.11 mostra a bateria de medidas comparativas entre as amostras YIG/Pt(2 nm) e YIG/Pt(2 nm)/Cr(2 nm).

A varredura de campo para o sinal  $I_{LSSE}$  das amostras é apresentada na figura 4.11 (a), onde é possível observar um aumento no sinal elétrico de cerca de 70%, para  $\Delta T = 18$  K, na amostra contendo a camada de Cr, que é enfatizado pelo gráfico em barras apresentado na figura 4.11 (b). A princípio, este resultado sugere que um processo de conversão orbital-para-carga positivo está ocorrendo no Cr. De fato, esse aumento não pode ser atribuído ao ISHE do Cr devido seu ângulo spin Hall baixo e negativo. Entretanto, este comportamento não persiste a medida que a espessura da camada de Cr aumenta, como será discutido posteriormente.

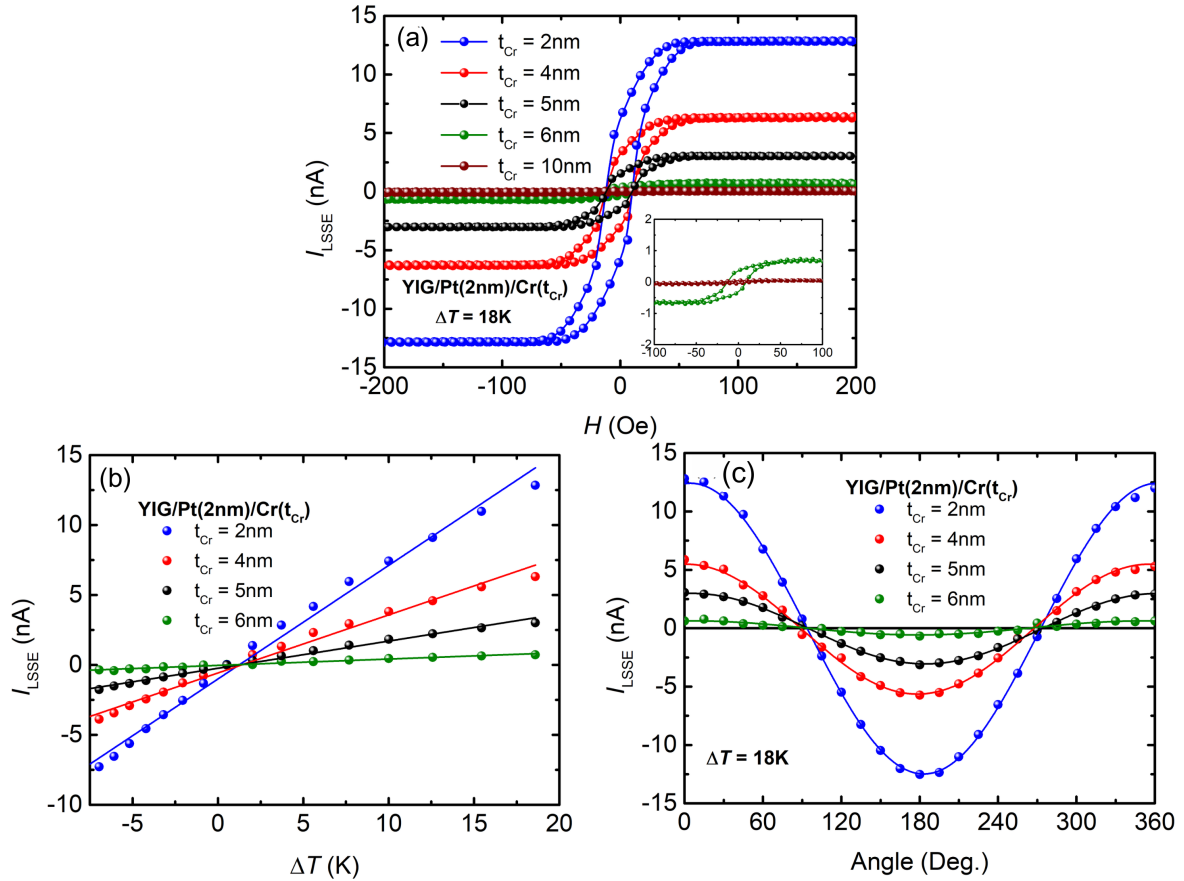


**Figura 4.11** – Comparação entre a corrente de carga  $I_{LSSE}$  das amostras de YIG/Pt(2 nm) (vermelho) e YIG/Pt(2 nm)/Cr(2 nm) (azul). (a) Varredura de campo magnético  $H$  com  $\Delta T = 18$  K fixo. (b) Gráfico em barra dos sinais de YIG/Pt(2 nm) (vermelho) e YIG/Pt(2 nm)/Cr(2 nm) (azul), enfatizando o aumento na intensidade com a adição da camada de Cr. (c) Dependência linear da corrente  $I_{LSSE}$  com a diferença de temperatura  $\Delta T$ , com  $H$  saturado. (d) Varredura angular de  $\phi$ , com  $\Delta T$  fixo e campo saturado.

A dependência da corrente  $I_{LSSE}$  com  $\Delta T$  é mostrada na figura 4.11 (c). Algumas diferenças de temperatura negativas também são mostradas, o que significa que o sentido da

corrente de spins injetada é invertido, resultando em corrente de carga também negativa. A dependência angular do sinal  $I_{LSE}$  foi obtida experimentalmente girando a amostra no plano  $xy$ , mantendo fixo o gradiente térmico e o campo magnético externo  $H > 2000e$ . O ângulo  $\phi$  é definido na figura 4.9, de maneira que  $I_{LSE} \propto \cos\phi$ . A medida angular é apresentada na figura 4.11 (d). Note que de fato para  $\phi = 90^\circ$  e  $\phi = 270^\circ$ , que significa que a polarização  $\hat{\sigma}$  dos spins da corrente injetada pelo YIG aponta na mesma direção dos terminais onde mede-se corrente de carga, o sinal vai a zero. Tal relação angular é característica da relação vetorial das equações de ISHE/IOHE.

Foi investigada a dependência dos mecanismos de conversão orbital-para-carga do Cr com a espessura  $t_{Cr}$  da camada. A figura 4.12 apresenta as curvas com diferentes espessuras. Na figura 4.12 (a), observa-se que a amostra com  $t_{Cr} = 2$  nm possui a maior corrente de carga convertida, e a medida que a espessura aumenta, o sinal decai rapidamente. O *inset* dá detalhe das curvas de  $t_{Cr} = 6$  nm, onde é possível observar que a polarização do sinal ainda é positiva, e  $t_{Cr} = 10$  nm cuja intensidade do sinal é praticamente zero. A dependência linear de  $I_{LSE}$  com  $\Delta T$  persiste para todas as espessuras, como mostra a figura 4.12 (b).

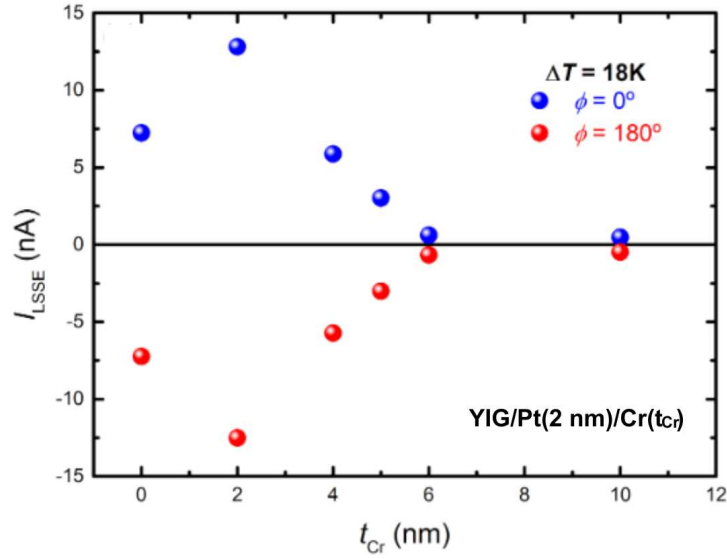


**Figura 4.12** – Comparação entre a corrente de carga  $I_{LSSE}$  das amostras de YIG/Pt(2 nm)/Cr( $t_{Cr}$ ) com diferentes espessuras da camada de Cr, em cores diferentes. **(a)** Varredura de campo magnético  $H$  com  $\Delta T = 18$  K fixo. *Inset* dá detalhe do sinal das amostras com  $t_{Cr} = 6$  nm e  $10$  nm. **(b)** Dependência linear da corrente  $I_{LSSE}$  com a diferença de temperatura  $\Delta T$ , com  $H$  saturado. **(c)** Varredura angular de  $\phi$ , com  $\Delta T$  fixo e campo saturado, para diferentes espessuras.

A medida angular na figura 4.12 (c) indica que a corrente spin-orbital acoplada  $J_{LS}$  mantém a mesma polarização da corrente pura de spins  $J_S$  injetada pelo YIG, e a mesma dependência com  $\cos\phi$  é obtida para todas as amostras. As linhas sólidas são os ajustes cossenoidais.

A figura 4.13 apresenta os valores de  $I_{LSSE}$  das diferentes espessuras  $t_{Cr}$ , incluindo a amostra controle YIG/Pt(2 nm) ( $t_{Cr} = 0$  nm), com  $\Delta T = 18$  K. Apenas a amostra  $t_{Cr} = 2$  nm possui sinal superior à YIG/Pt(2 nm), e a partir de  $t_{Cr} = 6$  nm o sinal tende a saturar próximo de zero. Como o ISHE na camada de Pt(2 nm) produz uma corrente elétrica positiva significativa, e o sinal total decai para zero para camadas mais espessas de Cr, deve haver um processo de conversão orbital-para-carga negativo ocorrendo no Cr, que aumenta de intensidade com a espessura. Tal contribuição deve ser forte o bastante para suprimir o sinal positivo do ISHE na Pt(2 nm), o que não seria razoável atribuir ao ISHE negativo do Cr, que mostrou-se negligenciável. Desta maneira, um IOHE negativo no volume do Cr poderia explicar o decaimento

de  $I_{LSSE}$ . Porém, o aumento do sinal na amostra  $t_{Cr} = 2$  nm sugere um mecanismo adicional de conversão, cuja natureza será discutida a seguir.

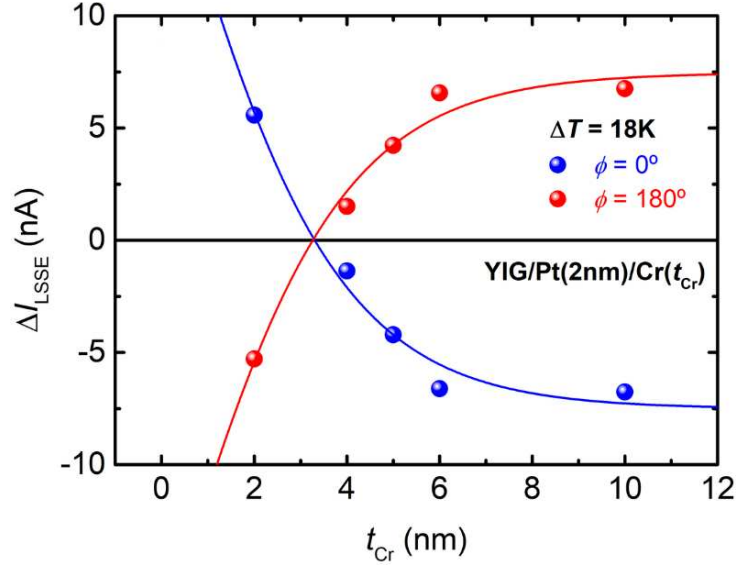


**Figura 4.13** – Dependência da corrente  $I_{LSSE}$  com a espessura  $t_{Cr}$ . Os pontos são obtidos para campo magnético  $H$  saturado, para  $\phi = 0$  (azul) e  $\phi = 180$  (vermelho), mantendo  $\Delta T = 18K$  fixo.

Assumindo que  $\sigma_{SH}^{Cr} \approx 0$  e  $\sigma_{OH}^{Pt} \approx 0$ , é possível isolar a contribuição de spin da Pt(2 nm) do sinal total calculando:

$$\Delta I_{LSSE} = I_{LSSE}^{YIG/Pt(2nm)/Cr(t_{Cr})} - I_{LSSE}^{YIG/Pt(2nm)} \quad (4.1)$$

onde  $I_{LSSE}^{YIG/Pt(2nm)/Cr(t_{Cr})}$  representa cada ponto do gráfico da figura 4.13 e  $I_{LSSE}^{YIG/Pt(2nm)}$  o sinal da amostra controle. Note que aqui foi considerado que a camada de Pt(2 nm) contribui com o mesmo valor de corrente de carga convertido pelo ISHE para todas as amostras, independentemente da espessura da camada de Cr. A figura 4.14 apresenta os valores de  $\Delta I_{LSSE}$  em função da espessura  $t_{Cr}$ , representando apenas as conversões orbital-para-carga do Cr. A mudança de sinal da curva na figura 4.14 evidencia uma competição entre duas contribuições orbital-para-carga distintas: uma positiva que é proeminente na amostra mais fina de Cr; e uma negativa que possui forte dependência com a espessura  $t_{Cr}$ , que é uma assinatura de um efeito tipo-Hall ocorrendo no volume do Cr. Então, é razoável assumir que mecanismos diferentes são responsáveis por essas duas contribuições distintas.



**Figura 4.14** – Dependência de  $\Delta I_{LSSE} = I_{LSSE}^{total} - I_{LSSE}^{YIG/Pt(2nm)}$  com espessura  $t_{Cr}$ . As linhas sólidas são os ajustes fenomenológicos.

Assim, a corrente total medida nas amostras tricamadas foram interpretadas como:

$$I_{LSSE}^{Total} = I_{ISHE}^{Pt} + I_{IOREE}^{Pt/Cr} + I_{IOHE}^{Cr} \quad (4.2)$$

onde  $I_{ISHE}^{Pt} > 0$  é a conversão de corrente spin-para-carga via ISHE na Pt;  $I_{IOREE}^{Pt/Cr} > 0$  é a corrente de carga originária da conversão orbital-para-carga via efeitos tipo Rashba-Edelstein orbital inverso na interface Pt/Cr; e  $I_{IOHE}^{Cr} < 0$  é a corrente elétrica resultante da conversão orbital-para-carga via IOHE no volume do Cr.

Para ajustar as curvas da figura 4.14, foi empregada a equação fenomenológica;

$$\Delta I_{LSSE} = A \tanh(t_{Cr}/2\lambda_{LS}) + C \quad (4.3)$$

introduzida no contexto de medidas do IOHE [33, 41, 46], com a adição de um termo  $C$  independente da espessura para acomodar a mudança de sinal. O primeiro termo da equação 4.3 representa a conversão via IOHE da corrente spin-orbital acoplada no Cr, onde  $A$  é um parâmetro de ajuste que deve depender do ângulo orbital Hall do Cr e  $\lambda_{LS}$  é o comprimento de difusão spin-orbital. O segundo termo foi associado principalmente à conversão na interface Pt/Cr, visto que esta não deve depender da espessura da camada de Cr. Dessa análise, foi encontrado um valor para o comprimento de difusão spin-orbital  $\lambda_{LS} = 1,8 \pm 0,3$  nm. A natureza inerente da estrutura tricamada faz com que as contribuições spin e orbital estejam misturadas, tornando difícil uma separação metódica destas. O valor de  $\lambda_{LS}$  obtido experimentalmente aqui é muito próximo ao valor de comprimento de difusão de spin  $\lambda_S = 1,8$  nm obtido experimentalmente

no efeito direto em [27], e pode refletir a correlação intrínseca entre as correntes spin e orbital. Além disso, se de fato a corrente spin-orbital acoplada for parcialmente convertida na interface Pt/Cr significa que esta não será integralmente transmitida para o volume do Cr. Esse resultado indica que de fato uma corrente spin-orbital acoplada deve passar por um processo de conversão em corrente de carga, o que explicaria a alta contribuição do Cr para o sinal elétrico através de dois mecanismos orbitais distintos, mas com baixíssimo comprimento de difusão.

O IOHE negativo do Cr medido em nossas estruturas tem sinal oposto ao OHE direto obtido experimentalmente nas referências [27], [28] e [29]. Um estudo recente [40] investigou a mesma estrutura YIG/Pt/Cr com espessuras de Pt e Cr fixas de 2 nm e 5 nm para cada camada respectivamente, e encontrou um sinal positivo para o IOHE do Cr através de *spin-pumping* por ressonância ferromagnética (SP-FMR). O mecanismo de SP-FMR é fundamentalmente diferente da injeção de corrente de spin via SSE, uma vez que no SP-FMR a injeção é coerente, ou seja, os mágnons excitados tem frequência bem definida de acordo com a ondulação da magnetização do FMI. Portanto, os diferentes métodos podem resultar em diferentes valores de ângulos Hall obtidos, e diferentes comprimentos de difusão.

Discrepâncias entre as condutividades Hall orbital direta e inversa foram exploradas considerando a violação da relação de reciprocidade de Onsager local para correntes orbitais devido à não conservação de OAM e ao papel central das contribuições de superfícies e interfaces no transporte orbital [37, 38, 82]. Ao considerar o termo de dipolo de torque, fortemente presente em interfaces e superfícies, em adição à corrente orbital convencional, foi mostrado que este termo media a troca de OAM entre os portadores e a rede, destoando localmente a interconversão orbital-carga até mesmo entre o efeito orbital direto e inverso.

# Capítulo 5

## Conclusões

Nesta dissertação de mestrado, realizamos um estudo dos mecanismos envolvendo a conversão da corrente de spin para corrente de carga, bem como a conversão da corrente orbital para corrente de carga do metal de transição cromo (Cr). Produzimos amostras de YIG/Cr(6 nm), YIG/Pt(6 nm), YIG/Pt(2 nm)/Cr( $t_{Cr}$ ), variando  $t_{Cr}$  de 0 a 10 nm. Utilizamos a técnica de *DC Magnetron Sputtering* para depositar filmes finos de Cr. A estrutura cristalina dos filmes de Cr foi investigada por difração de raios-X, onde concluiu-se que os filmes depositados possuíam orientações preferenciais (110) e (200), referentes à estrutura cúbica de corpo centrado. As caracterizações por refletividade de raios-X e microscopia eletrônica de transmissão revelaram que os filmes de Cr crescidos sobre YIG e sobre YIG/Pt apresentavam interfaces bem definidas, sem assinatura de interdifusões, e com baixa rugosidade, além de espessuras muito próximas dos valores esperados.

Realizamos experimentos de efeito Seebeck de Spin Longitudinal nas amostras de YIG/Pt(6 nm), YIG/Cr(6 nm), and YIG/Pt(2 nm)/Cr( $t_{Cr}$ ). Foi demonstrado que a conversão spin-para-carga do Cr é significativamente mais fraca e negativa comparada com a da Pt. Isto é quantificado pela estimativa dos ângulos spin Hall de ambos os materiais. Os valores estimados são  $\theta_{SH}^{Cr} = -0,0016$  e  $\theta_{SH}^{Pt} = 0,027$ , demonstrando que além de ser negativo, o ângulo spin Hall do Cr é uma ordem de magnitude menor que o da Pt.

Os mecanismos de conversão orbital-para-carga do Cr foram investigados nas amostras YIG/Pt(2 nm)/Cr( $t_{Cr}$ ). Nossos resultados mostraram que o Cr apresenta um efeito Hall orbital inverso negativo e intenso, comparável com o ISHE da Pt. Este efeito aumenta negativamente com o aumento da espessura da camada de Cr, e é capaz de suprimir o efeito positivo da Pt. Adicionalmente, observamos uma contribuição positiva consistente surgindo da interface Pt/Cr, mediada por efeitos tipo Rashba-Edelstein orbital inverso. Tais resultados fornecem evidências

das diferentes respostas elétricas entre o IOREE interfacial e o IOHE de volume do Cr. Utilizando uma interpretação fenomenológica dos resultados, obtemos um comprimento de difusão spin-orbital de 1,8 nm para o Cr. Este comprimento de difusão foi associado a um processo de conversão orbital-para-carga ocorrendo no volume do Cr devido ao IOHE.

Este trabalho oferece informações experimentais valiosas para o desenvolvimento de modelos teóricos mais abrangentes do efeito Hall orbital inverso em metais leves e da não reciprocidade entre as condutividades Hall orbital direta e inversa. Nossos resultados podem contribuir para uma compreensão mais profunda dos mecanismos de conversão spin-orbital em materiais com forte acoplamento spin-órbita, bem como dos efeitos tipo Rashba-Edelstein orbital inversos em interfaces metal pesado/metal leve, que podem ser projetados para aplicações Spintrônicas otimizadas.

## Referências

- [1] 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. *Phys. Rev. Lett.*, v. 61, p. 2472–2475, Nov 1988.
- [2] BINASCH, G.; GRÜNBERG, P.; SAURENBACH, F.; ZINN, W. Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange. *Phys. Rev. B*, v. 39, p. 4828–4830, Mar 1989.
- [3] LENSSEN, K.-M.; van Kesteren, H.; RIJKS, T.; KOOLS, J.; de Nooijer, M.; COEHOORN, R.; FOLKERTS, W. Giant magnetoresistance and its application in recording heads. *Sensors and Actuators A: Physical*, v. 60, n. 1, p. 90–97, 1997. Proceedings of Eurosenors X.
- [4] HIRSCH, J. Spin hall effect. *Physical review letters*, v. 83, n. 9, p. 1834, 1999.
- [5] 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.
- [6] 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*, Woodbury, v. 88, n. 18, p. 182509, 05 2006.
- [7] KATO, Y. K.; MYERS, R. C.; GOSSARD, A. C.; AWSCHALOM, D. D. Observation of the spin hall effect in semiconductors. *Science*, Washington, v. 306, n. 5703, p. 1910–1913, 2004.
- [8] VALENZUELA, S.; TINKHAM, M. Direct electronic measurement of the spin hall effect. *Nature*, London, v. 442, p. 176–9, 08 2006.

- [9] KIMURA, T.; OTANI, Y.; SATO, T.; TAKAHASHI, S.; MAEKAWA, S. Room-temperature reversible spin hall effect. *Phys. Rev. Lett.*, v. 98, p. 156601, Apr 2007.
- [10] AZEVEDO, A.; VILELA LEÃO, L. H.; RODRIGUEZ-SUAREZ, R. L.; OLIVEIRA, A. B.; REZENDE, S. M. dc effect in ferromagnetic resonance: Evidence of the spin-pumping effect? *Journal of Applied Physics*, Woodbury, v. 97, n. 10, p. 10C715, 05 2005.
- [11] TAKAHASHI, S.; MAEKAWA, S. Spin current, spin accumulation and spin hall effect\*. *Science and Technology of Advanced Materials*, v. 9, n. 1, p. 014105, mar 2008.
- [12] Charles Kittel. *Introduction to Solid State Physics*. Eighth. ed. John Wiley & Sons, Inc, 2005.
- [13] BERNEVIG, B. A.; HUGHES, T. L.; ZHANG, S.-C. Orbitronics: The intrinsic orbital current in p-doped silicon. *Physical review letters*, v. 95, n. 6, p. 066601, 2005.
- [14] GO, D.; JO, D.; KIM, C.; LEE, H.-W. Intrinsic spin and orbital hall effects from orbital texture. *Physical review letters*, v. 121, n. 8, p. 086602, 2018.
- [15] GO, D.; JO, D.; LEE, H.-W.; KLÄUI, M.; MOKROUSOV, Y. Orbitronics: Orbital currents in solids. *Europhysics Letters*, Les Ulis, v. 135, n. 3, p. 37001, 2021.
- [16] ANDO, K. Orbitronics: Harnessing orbital currents in solid-state devices. *Journal of the Physical Society of Japan*, v. 94, n. 9, p. 092001, 2025.
- [17] JO, D.; GO, D.; LEE, H.-W. Gigantic intrinsic orbital hall effects in weakly spin-orbit coupled metals. *Physical Review B*, v. 98, n. 21, p. 214405, 2018.
- [18] GO, D.; LEE, H.-W.; OPPENEER, P. M.; BLÜGEL, S.; MOKROUSOV, Y. First-principles calculation of orbital hall effect by wannier interpolation: Role of orbital dependence of the anomalous position. *Physical Review B*, v. 109, n. 17, p. 174435, 2024.
- [19] SHULL, C. G.; WILKINSON, M. K. Neutron diffraction studies of various transition elements. *Rev. Mod. Phys.*, v. 25, p. 100–107, Jan 1953.
- [20] FAWCETT, E. Spin-density-wave antiferromagnetism in chromium. *Rev. Mod. Phys.*, v. 60, p. 209–283, Jan 1988.

- [21] YANG, F. Y.; CHIEN, C. L. Exchange coupling between cr and ferromagnetic thin films. *Journal of Applied Physics*, Woodbury, v. 93, n. 10, p. 6829–6831, 05 2003.
- [22] BLESER, S. M.; NATALE, M. R.; GREENING, R. W.; FAN, X.; ZINK, B. L. Examining the role of antiferromagnetism in spin-charge conversion in chromium thin films via temperature-dependent measurements of the local spin seebeck effect. *Phys. Rev. Mater.*, v. 8, p. 124411, Dec 2024.
- [23] CORTAZAR-MARTÍNEZ, O.; TORRES-OCHOA, J.-A.; RABOÑO-BORBOLLA, J.-G.; HERRERA-GOMEZ, A. Oxidation mechanism of metallic chromium at room temperature. *Applied Surface Science*, v. 542, p. 148636, 2021.
- [24] BROCKHOUSE, B. N. Antiferromagnetic structure in  $cr_2o_3$ . *The Journal of Chemical Physics*, v. 21, n. 5, p. 961–962, 05 1953.
- [25] DU, C.; WANG, H.; YANG, F.; HAMMEL, P. C. Systematic variation of spin-orbit coupling with  $d$ -orbital filling: Large inverse spin hall effect in  $3d$  transition metals. *Phys. Rev. B*, v. 90, p. 140407, Oct 2014.
- [26] QU, D.; HUANG, S. Y.; CHIEN, C. L. Inverse spin hall effect in cr: Independence of antiferromagnetic ordering. *Phys. Rev. B*, v. 92, p. 020418, Jul 2015.
- [27] LEE, S.; KANG, M.-G.; GO, D.; KIM, D.; KANG, J.-H.; LEE, T.; LEE, G.-H.; KANG, J.; LEE, N. J.; MOKROUSOV, Y. et al. Efficient conversion of orbital hall current to spin current for spin-orbit torque switching. *Communications Physics*, v. 4, n. 1, p. 234, 2021.
- [28] SALA, G.; GAMBARDELLA, P. Giant orbital hall effect and orbital-to-spin conversion in 3 d, 5 d, and 4 f metallic heterostructures. *Physical Review Research*, v. 4, n. 3, p. 033037, 2022.
- [29] LYALIN, I.; ALIKHAH, S.; BERRITTA, M.; OPPENEER, P. M.; KAWAKAMI, R. K. Magneto-optical detection of the orbital hall effect in chromium. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 131, n. 15, p. 156702, 2023.
- [30] UCHIDA, K.-I.; TAKAHASHI, S.; HARI, K.; IEDA, J.; KOSHIBAE, W.; ANDO, K.; MAEKAWA, S.; SAITOH, E. Observation of the spin seebeck effect. *Nature*, London, v. 455, n. 7214, p. 778–781, 2008.

- [31] 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*, Woodbury, v. 97, n. 17, p. 172505, 10 2010.
- [32] SANTOS, E.; ABRÃO, J.; GO, D.; DE ASSIS, L.; MOKROUSOV, Y.; MENDES, J.; AZEVEDO, A. Inverse orbital torque via spin-orbital intertwined states. *Physical Review Applied*, v. 19, n. 1, p. 014069, 2023.
- [33] SANTOS, E. S.; ABRÃO, J. E.; COSTA, J. L.; SANTOS, J. G. S.; MELLO, K. R.; VIEIRA, A. S.; ROCHA, T. C. R.; MORI, T. J. A.; CUNHA, R. O. R.; MENDES, J. B. S.; AZEVEDO, A. Bulk and interface effects based on rashba-like states in ti and ru nanoscale-thick films: Implications for orbital-charge conversion in spintronic devices. *ACS Applied Nano Materials*, v. 8, n. 9, p. 4300–4310, 2025.
- [34] DYAKONOV, M. I.; PEREL, V. Current-induced spin orientation of electrons in semiconductors. *Physics Letters A*, Amsterdam, v. 35, n. 6, p. 459–460, 1971.
- [35] WANG, P.; FENG, Z.; YANG, Y.; ZHANG, D.; LIU, Q.; XU, Z.; JIA, Z.; WU, Y.; YU, G.; XU, X.; JIANG, Y. Inverse orbital hall effect and orbitronic terahertz emission observed in the materials with weak spin-orbit coupling. *npj Quantum Materials*, v. 8, n. 1, p. 28, 2023.
- [36] DOS SANTOS, E. S. *Investigação de correntes orbitais em heteroestruturas magnéticas*. 2025. Tese (Doutorado em Física) - Universidade Federal de Pernambuco, Recife, Brasil, 2025.
- [37] GO, D.; SEIFERT, T. S.; KAMPFRATH, T.; ANDO, K.; LEE, H.-W.; MOKROUSOV, Y. Local and global reciprocity in orbital-charge-coupled transport. *arXiv preprint arXiv:2407.00517*, 2024.
- [38] KASHIKI, H.; HAYASHI, H.; GO, D.; MOKROUSOV, Y.; ANDO, K. Violation of local reciprocity in charge-orbital interconversion. *arXiv preprint arXiv:2504.05139*, 2025.
- [39] VIJAYAN, N.; KUMAR, D.; DU, A.; GAO, L.; XIAO, Z.; WANG, H. I.; GUPTA, R.; JAKOB, G.; KRISHNIA, S.; MOKROUSOV, Y.; KLÄUI, M. Observation of negative orbital torque from vanadium, 2025.

- [40] COSTA, J. L.; SANTOS, E.; MENDES, J. B. S.; AZEVEDO, A. Dominance of the orbital hall effect over spin in transition metal heterostructures. *Phys. Rev. B*, v. 112, p. 054443, Aug 2025.
- [41] SANTOS, E.; ABRÃO, J.; COSTA, J.; SANTOS, J.; RODRIGUES-JUNIOR, G.; MENDES, J.; AZEVEDO, A. Negative orbital hall effect in germanium. *Physical Review Applied*, v. 22, n. 6, p. 064071, 2024.
- [42] OH, S.; CHOI, H. J. Orbital angular momentum analysis for giant spin splitting in solids and nanostructures. *Scientific Reports*, v. 7, n. 1, p. 2024, 2017.
- [43] PARK, S. R.; KIM, C. H.; YU, J.; HAN, J. H.; KIM, C. Orbital-angular-momentum based origin of rashba-type surface band splitting. *Physical review letters*, v. 107, n. 15, p. 156803, 2011.
- [44] PARK, J.-H.; KIM, C. H.; LEE, H.-W.; HAN, J. H. Orbital chirality and rashba interaction in magnetic bands. *Physical Review B—Condensed Matter and Materials Physics*, v. 87, n. 4, p. 041301, 2013.
- [45] GO, D.; JO, D.; GAO, T.; ANDO, K.; BLÜGEL, S.; LEE, H.-W.; MOKROUSOV, Y. Orbital rashba effect in a surface-oxidized cu film. *Phys. Rev. B*, v. 103, p. L121113, Mar 2021.
- [46] SANTOS, E.; ABRÃO, J.; VIEIRA, A.; MENDES, J.; RODRÍGUEZ-SUÁREZ, R.; AZEVEDO, A. Exploring orbital-charge conversion mediated by interfaces with cu o x through spin-orbital pumping. *Physical Review B*, v. 109, n. 1, p. 014420, 2024.
- [47] DING, S.; LIANG, Z.; GO, D.; YUN, C.; XUE, M.; LIU, Z.; BECKER, S.; YANG, W.; DU, H.; WANG, C.; YANG, Y.; JAKOB, G.; KLÄUI, M.; MOKROUSOV, Y.; YANG, J. Observation of the orbital rashba-edelstein magnetoresistance. *Phys. Rev. Lett.*, v. 128, p. 067201, Feb 2022.
- [48] GAO, W.; LIAO, L.; ISSHIKI, H.; BUDAI, N.; KIM, J.; LEE, H.-W.; LEE, K.-J.; GO, D.; MOKROUSOV, Y.; MIWA, S.; OTANI, Y. Nonlocal electrical detection of reciprocal orbital edelstein effect. *Nature Communications*, v. 16, n. 1, p. 6380, 2025.
- [49] KRISHNIA, S.; SASSI, Y.; AJEJAS, F.; SEBE, N.; REYREN, N.; COLLIN, S.; DENNEULIN, T.; KOVÁCS, A.; DUNIN-BORKOWSKI, R. E.; FERT, A.; GEORGE, J.-M.;

- CROS, V.; JAFFRÈS, H. Large interfacial rashba interaction generating strong spin–orbit torques in atomically thin metallic heterostructures. *Nano Letters*, v. 23, n. 15, p. 6785–6791, 2023.
- [50] XU, R.; NING, X.; CHENG, H.; YAO, Y.; REN, Z.; LIU, S.; DAI, M.; XU, Y.; LI, S.; DU, A.; WU, X.; HU, F.; SHEN, B.; SUN, J.; ZHANG, H.; ZHAO, W. Terahertz generation via the inverse orbital rashba-edelstein effect at the Ni/CuO<sub>x</sub> interface. *Phys. Rev. Res.*, v. 7, p. L012042, Feb 2025.
- [51] HAMDI, A. E.; CHAULEAU, J.-Y.; BOSELLI, M.; THIBAUT, C.; GORINI, C.; SMOGUNOV, A.; BARRETEAU, C.; GARIGLIO, S.; TRISCONI, J.-M.; VIRET, M. Observation of the orbital inverse rashba–edelstein effect. *Nature Physics*, v. 19, n. 12, p. 1855–1860, 2023.
- [52] GRIFFITHS, D. J.; SCHROETER, D. F. *Introduction to quantum mechanics*. Third edition. ed. Cambridge ; New York, NY: Cambridge University Press, 2018.
- [53] UCHIDA, K.; XIAO, J.; ADACHI, H.; OHE, J.; TAKAHASHI, S.; IEDA, J.; OTA, T.; KAJIWARA, Y.; UMEZAWA, H.; KAWAI, H.; BAUER, G. E. W.; MAEKAWA, S.; SAITOH, E. Spin seebeck insulator. *Nature Materials*, v. 9, n. 11, p. 894–897, Sept. 2010.
- [54] CHANG, P.-H.; MAHFOUZI, F.; NAGAOSA, N.; NIKOLIĆ, B. K. Spin-seebeck effect on the surface of a topological insulator due to nonequilibrium spin-polarization parallel to the direction of thermally driven electronic transport. *Phys. Rev. B*, v. 89, p. 195418, May 2014.
- [55] JAWORSKI, C. M.; YANG, J.; MACK, S.; AWSCHALOM, D. D.; HEREMANS, J. P.; MYERS, R. C. Observation of the spin-seebeck effect in a ferromagnetic semiconductor. *Nature Materials*, v. 9, n. 11, p. 898–903, Sept. 2010.
- [56] UCHIDA, K.; OTA, T.; ADACHI, H.; XIAO, J.; NONAKA, T.; KAJIWARA, Y.; BAUER, G. E. W.; MAEKAWA, S.; SAITOH, E. Thermal spin pumping and magnon-phonon-mediated spin-seebeck effect. *Journal of Applied Physics*, Woodbury, v. 111, n. 10, p. 103903, 05 2012.
- [57] KIKKAWA, T.; UCHIDA, K.; SHIOMI, Y.; QIU, Z.; HOU, D.; TIAN, D.; NAKAYAMA, H.; JIN, X.-F.; SAITOH, E. Longitudinal spin seebeck effect free from the proximity nernst effect. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 110, n. 6, Feb. 2013.

- [58] REZENDE, S.; RODRÍGUEZ-SUÁREZ, R.; CUNHA, R.; RODRIGUES, A.; MACHADO, F.; FONSECA GUERRA, G.; LOPEZ ORTIZ, J.; AZEVEDO, A. Magnon spin-current theory for the longitudinal spin-seebeck effect. *Physical Review B*, v. 89, n. 1, p. 014416, 2014.
- [59] GREENE, J. E. Review article: Tracing the recorded history of thin-film sputter deposition: From the 1800s to 2017. *Journal of Vacuum Science Technology A*, v. 35, n. 5, p. 05C204, 09 2017.
- [60] DEPLA, D.; MAHIEU, S.; GREENE, J. Chapter 5 - sputter deposition processes. In: MARTIN, P. M. (Ed.) *Handbook of Deposition Technologies for Films and Coatings (Third Edition)*. Boston: William Andrew Publishing, third edition. ed., 2010. p. 253–296.
- [61] HARRINGTON, G. F.; SANTISO, J. Back-to-basics tutorial: X-ray diffraction of thin films. *Journal of Electroceramics*, v. 47, p. 141–163, 2021.
- [62] BUNACIU, A. A.; UDRIȘTIOIU, E.; ABOUL-ENEIN, H. X-ray diffraction: Instrumentation and applications. *Critical reviews in analytical chemistry / CRC*, v. 45, 04 2015.
- [63] SARDELA, M. R. *X-ray diffraction and reflectivity*. New York, NY: Springer New York, 2014. p. 1–41.
- [64] DAILLANT, J.; GIBAUD, A. (Eds.). *X-ray and neutron reflectivity: Principles and applications*. 2nd. ed. Berlin, Heidelberg: Springer, 2009. v. 770 of *Springer Tracts in Modern Physics*.
- [65] BINNIG, G.; QUATE, C. F.; GERBER, C. Atomic force microscope. *Phys. Rev. Lett.*, v. 56, p. 930–933, Mar 1986.
- [66] VOIGTLÄNDER, B. *Atomic force microscopy*. NanoScience and Technology. Springer International Publishing, 2019.
- [67] NT-MDT. Ntegra prima. <https://ntmdt.nl/home/products/ntegra-prima/>, n.d. Acessado em 16/11/2025.
- [68] FONER, S. Vibrating sample magnetometer. *Review of Scientific Instruments*, New York, v. 27, n. 7, p. 548–548, 07 1956.
- [69] FONER, S. The vibrating sample magnetometer: Experiences of a volunteer (invited). *Journal of Applied Physics*, Woodbury, v. 79, n. 8, p. 4740–4745, 04 1996.

- [70] NIAZI, A.; PODDAR, P.; RASTOGI, A. A precision, low-cost vibrating sample magnetometer. *Current Science*, v. 79, p. 99–109, 07 2000.
- [71] SPINU, L.; DODRILL, B. C.; RADU, C. Magnetometry measurements. *Materials Characterization – Magnetism Technology International*, 2013.
- [72] GELLER, S.; GILLES, M. The crystal structure and ferrimagnetism of yttrium-iron garnet,  $\text{Y}_3\text{Fe}_2(\text{FeO}_4)_3$ . *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, v. 3, n. 1, p. 30–36, 1957.
- [73] FRUKACZ, Z.; PAWLAK, D. Garnets, growth of. In: BUSCHOW, K. J.; CAHN, R. W.; FLEMINGS, M. C.; ILSCHNER, B.; KRAMER, E. J.; MAHAJAN, S.; VEYSSIERE, P. (Eds.) *Encyclopedia of Materials: Science and Technology*. Oxford: Elsevier, 2001. p. 3455–3463.
- [74] UCHIDA, K.-I.; OHE, J.-I.; KIKKAWA, T.; DAIMON, S.; HOU, D.; QIU, Z.; SAITOH, E. Intrinsic surface magnetic anisotropy in  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  as the origin of low-magnetic-field behavior of the spin seebeck effect. *Phys. Rev. B*, v. 92, p. 014415, Jul 2015.
- [75] MEIKLEJOHN, W. H.; BEAN, C. P. New magnetic anisotropy. *Phys. Rev.*, v. 102, p. 1413–1414, Jun 1956.
- [76] YUAN, W.; WANG, T.; SU, T.; SONG, Q.; XING, W.; CHEN, Y.; HAN, W. Positive exchange bias between permalloy and twined (101 $\bar{0}$ )- $\text{Cr}_2\text{O}_3$  films. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Amsterdam, v. 422, p. 397–401, 2017.
- [77] ANGHINOLFI, L.; BISIO, F.; CANEPA, M.; MATTERA, L. Exchange bias anisotropy versus antiferromagnet thickness in uniaxial  $\text{Cr}/\text{Fe}$  bilayers. *Phys. Rev. B*, v. 81, p. 224427, Jun 2010.
- [78] ARROTT, A.; WERNER, S. A.; KENDRICK, H. First-order magnetic phase change in chromium at 38.5°C. *Phys. Rev. Lett.*, v. 14, p. 1022–1024, Jun 1965.
- [79] ZABEL, H. Magnetism of chromium at surfaces, at interfaces and in thin films. *Journal of Physics: Condensed Matter*, Bristol, v. 11, n. 48, p. 9303, dec 1999.
- [80] REZENDE, S.; RODRÍGUEZ-SUÁREZ, R.; CUNHA, R.; LÓPEZ ORTIZ, J.; AZEVEDO, A. Bulk magnon spin current theory for the longitudinal spin seebeck effect. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Amsterdam, v. 400, p. 171–177, 2016. Proceedings of the 20th International Conference on Magnetism (Barcelona) 5-10 July 2015.

- 
- [81] HOLANDA, J.; ALVES SANTOS, O.; RODRÍGUEZ-SUÁREZ, R. L.; AZEVEDO, A.; REZENDE, S. M. Simultaneous spin pumping and spin seebeck experiments with thermal control of the magnetic damping in bilayers of yttrium iron garnet and heavy metals: Yig/pt and yig/irnm. *Phys. Rev. B*, v. 95, p. 134432, Apr 2017.
- [82] LEDESMA-MARTIN, J. O.; GALINDEZ-RUALES, E.; KRISHNIA, S.; FUHRMANN, F.; TRAN, M. D.; GUPTA, R.; GASSER, M.; GO, D.; KAMRA, A.; JAKOB, G. et al. Nonreciprocity in magnon mediated charge-spin-orbital current interconversion. *Nano Letters*, v. 25, n. 8, p. 3247–3252, 2025.