UNIVERSIDAD DE BUENOS AIRES

Facultad de Ciencias Exactas y Naturales

Departamento de Física

Magnetotransporte en nanoestructuras de metales de transición

por Julián Milano

Directora de tesis:	Dra. Ana María Llois.
Codirectora de tesis:	Dra. Laura B. Steren.
Lugar de trabajo:	Grupo Materia Condensada, Unidad de Actividad Física, Centro Atómico Constituyentes, Comisión Nacional de Energía Atómica.

Trabajo de Tesis para optar por el título de Doctor de la Universidad de Buenos Aires

Diciembre de 2003

Resumen

El campo de investigación de los sistemas nanoscópicos magnéticos ha despertado interés creciente en las últimas dos décadas. No son ajenas a este fenómeno las aplicaciones tecnológicas de los mismos en distintas áreas.

En esta tesis hemos estudiado las propiedades magnéticas y, esencialmente, de magnetotransporte de dos tipos de sistemas bien diferenciados: multicapas de Fe/Cu con Cr y aleaciones granulares de Co en Ag. Aún cuando ambos tipos de sistemas están compuestos por metales nobles y metales de transición magnéticos, en el primer caso los metales están depositados en capas continuas y presentan magnetorresistencia inversa, mientras que en el otro forman aleaciones granulares cuyas características de transporte dependen de la presencia y valor del campo magnético aplicado durante el crecimiento.

Para ambos tipos de sistemas hemos obtenido teóricamente la conductividad dentro del marco de la ecuación semiclásica de Boltzmann logrando una modelización adecuada que da cuenta de los resultados experimentales. Hemos puesto de manifiesto la importancia de las bandas electrónicas para explicar las particularidades experimentales de cada uno de los sistemas, tales como la evolución en función del campo magnético de la GMR en las multicapas de Fe/Cu con Cr y la coalescencia de los gránulos de Co, puesta de manifiesto a través de las propiedades de magnetotransporte, en el segundo sistema. Para las aleaciones granulares de Co en Ag hemos mostrado experimentalmente, haciendo mediciones de magnetización, de resonancia ferromagnética y de transporte eléctrico, que el comportamiento de aleaciones homogéneas es distinto al de las aleaciones granulares crecidas en multicapas.

Palabras claves: multicapas magnéticas, aleaciones granulares, transporte electrónico, magnetorresistencia gigante, cálculo de estructura de bandas.

Abstract

Research on nanoscopic systems has arisen an increasing interest in the last two decades. The evolution of research in this area is certainly closely related to the potential technological applications.

In this thesis we have undertaken the study of magnetic and, specially, of magnetotransport properties of two well differentiated types of systems: Fe/Cu multilayers with Cr and Co granular alloys embedded in Ag. Even if both types of systems are built up with noble metals and magnetic transition metals, in the first case the atoms form continuous layers and show inverse magnetoresistance, while the second kind of systems form granular alloys whose transport characteristics depend on the presence and value of an applied magnetic field at deposition.

For both kinds of materials we have calculated the conductivities within the framework of the Boltzmann semiclassical approach, succeeding in formulating a proper system modelisation, which accounts for the observed experimental results. We have shown the importance of the electronic bands in order to be able to explain the particularities of each kind of system, such as the GMR evolution under a growing applied magnetic field for Cu/Fe with Cr and the percolation of Co clusters, which has its manifestation on the magnetotransport properties for the second kind of systems in the second case. We have also experimentally shown, performing magnetisation, ferromagnetic resonance and electric transport measurements, that the behavior of homogeneous granular alloys of Co in Ag can be clearly differentiated from the one of granular alloys grown in multilayers.

Keywords: magnetic multilayers, granular alloys, electronic transport, giant magnetoresistance, band structure calculations.

A mi viejo y a mi tío Luis.

Índice

Introducción **1**
Antecedentes 1
Esta tesis 3

1. Transporte eléctrico y magnetismo en aleaciones metálicas **5**
1.1. Teoría semiclásica del transporte eléctrico 5
1.1.1. Modelo de Drude 5
1.1.2. Ecuación de Boltzmann 7
1.2. Transporte eléctrico en metales de transición 12
1.2.1. Fuentes de dispersión 12
1.2.2. Conductividad a partir de la estructura de bandas real 14
1.3. Magnetorresistencia gigante 17
1.3.1. Origen de la GMR 18
1.4. Multicapas magnéticas. 20
1.4.1. GMR en multicapas magnéticas 20
1.5. Aleaciones granulares 27
1.5.1. Comportamiento magnético en nanopartículas 27
1.5.2. GMR en aleaciones granulares 31

2. Técnicas de cálculo y experimentales **35**
2.1. Cálculo de la estructura electrónica 35
2.1.1. Métodos de primeros principios 35
2.1.2. Método de Enlaces Fuertes 39
2.2. Cálculo de la contribución de la estructura de bandas a la conductividad . 41
2.2.1. Método de las áreas orientadas 42
2.2.2. Método de los tetraedros 42
2.2.3. Convergencia de los métodos 43
2.3. Medición del transporte eléctrico 44
2.4. Medición de la magnetización 44
2.4.1. Medición directa 44

2.4.2. Medición a través de resonancia ferromagnética 45

3. Magnetorresistencia gigante en superredes Cu/Fe. 47
3.1. Introducción 47
3.2. Método de cálculo 50
3.3. Resultados 53
3.3.1. Efectos de las bandas electrónicas del Cr sobre la GMR. 54
3.3.2. Contribución de las impurezas de Cr y Cu sobre la GMR de superredes Fe/Cu 55
3.3.3. Efecto combinado de impurezas de Cr y Cu y de bandas de Cr . . 57
3.3.4. Evolución de la GMR con alineamiento magnético creciente . . . 59
3.4. Conclusiones 59

4. Propiedades magnetoeléctricas de películas delgadas de aleaciones granulares 61
4.1. Introducción 61
4.2. Descripción de las muestras y detalles experimentales 62
4.3. Resultados y discusión 63
4.3.1. Mediciones de magnetización 63
4.3.2. Mediciones de resonancia ferromagnética 66
4.3.3. Transporte eléctrico 69
4.4. Conclusiones 78

5. Conductividad eléctrica en multicapas CoAg/Ag 79
5.1. Introducción 79
5.2. Método de Cálculo 82
5.2.1. Estructura electrónica 82
5.2.2. Conductividad eléctrica 82
5.3. Resultados 85
5.3.1. Contribución de la estructura de bandas. 85
5.3.2. Contribución del tiempo de relajación 87
5.4. Conclusiones 89

Conclusiones finales 91

Apéndices

A. Regla de Matthiessen 93

B. Autoconsistencia en el código WIEN97 95

C. Método de enlaces fuertes **97**
C.1. Determinación de los parámetros 97
C.2. Proceso autoconsistente 97
C.3. Parámetros utilizados en esta tesis 98

D. Métodos de cálculo de la conductividad **99**
D.1. Método de las áreas orientadas 99
D.2. Método de los tetraedros 100

E. Resonancia ferromagnética **103**
E.1. Anisotropía magnetocristalina 103
E.2. Campo demagnetizante 104

Referencias **106**

Publicaciones **112**

Agradecimientos **117**

Introducción

Antecedentes

Desde fines de los años 60 las nanoestructuras empezaron a jugar un rol muy importante como sistemas que presentan una gran variedad de fenómenos nuevos e interesantes. De esos años podemos citar el trabajo de B. Abeles [1] en los que se muestra que la estructuras superconductoras compuestas por agregados nanométricos presentan una temperatura crítica que aumenta a medida que el tamaño de los granos disminuye.

A mediados de los años 70 los sistemas granulares siguieron aportando nueva física. En este caso las investigaciones se focalizaron en agregados metálicos embebidos en una matriz aislante. En particular, el estudio de estos compuestos se centraba en sus propiedades eléctricas y magnéticas. J.I. Gittleman *et al.* [2] y J.S. Helman *et al.* [3] estudiaron agregados de Ni en una matriz aislante de SiO_2. Estos autores encontraron muchos de los fenómenos físicos que serían intensamente estudiados en la década del 90. Desde el punto de vista del magnetismo observaron que los agregados tenían dos comportamientos distintos dependiendo de la temperatura. A temperaturas suficientemente altas cada grano de Ni se comportaba como un paramagneto clásico, mientras que a temperaturas más bajas los momentos magnéticos dentro de cada agregado se alineaban formando un gran momento magnético por grano. Desde el punto de vista del transporte, se analizó cómo cambiaba la conductividad del sistema cuando los agregados comenzaban a conectarse entre ellos, lo que usualmente se llama coalescencia o *percolación*. Antes de alcanzar la *percolación* el transporte es de tipo túnel, en otras palabras los portadores van moviéndose por los agregados de Ni *tuneleando* las barreras de potencial generadas por la matriz aislante. En especial, se estudió cómo influía la dirección de los momentos magnéticos de los agregados respecto de la dirección de cuantificación de los portadores. Este transporte polarizado en espín es esencial para comprender el efecto de magnetorresistencia que es uno de los objetos de estudio en esta tesis.

Simultáneamente con estos sistemas se empezaron a fabricar e investigar unos sistemas que fueron denominados superredes o multicapas, que consisten de sucesivas capas de dos o más materiales crecidas en forma alternada. Durante bastante tiempo fue difícil construir este tipo de sistemas de tal forma de conseguir capas con interfaces bien defini-

das. En 1973, L.L. Chang *et al.* [4] presentaron estructuras artificiales fabricadas a través de la técnica llamada *Molecular beam Epitaxy*, la cual permite controlar el crecimiento de capas con una precisión de hasta una capa atómica. Las primeras superredes que se estudiaron fueron hechas con materiales semiconductores, principalmente de GaAs/AlAs [5]. A partir de ese momento y hasta nuestros días, se han abierto innumerables campos de investigación en estructura electrónica, propiedades de transporte, magnéticas y ópticas en estos tipos de sistemas.

En los años 80 se extendió la fabricación de multicapas al uso de elementos metálicos y materiales superconductores. En particular, el crecimiento de superredes metal/metal magnético fue muy difundido ya que presentan interesantes propiedades magnéticas. Una de estas propiedades es el acoplamiento entre capas magnéticas adyacentes mediado por la capa de metal normal, llamado interacción de Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) [6]. Este intercambio indirecto es mediado por los electrones de conducción del metal normal y dependiendo del espesor de la capa de este metal las capas magnéticas se acoplan en forma ferromagnética o antiferromagnética.

En 1988 se encontró uno de los efectos más importantes de la década del 90, la magnetorresistencia gigante (GMR). La GMR [7] fue descubierta en una multicapa metálica y magnética de Fe/Cr. Este efecto consiste en una variación muy importante en la resistividad de las multicapas cuando se aplica un campo magnético externo. En 1992 dos grupos observaron que la GMR también se presenta en aleaciones granulares de agregados magnéticos embebidos en una matriz de metal conductor [8, 9]. El origen de la GMR se encuentra en la dispersión de los electrones de conducción en el material magnético del sistema. La magnitud de la interacción electrón-fuente de dispersión magnética depende de la orientación relativa del *espín* de cada uno de los electrones con el momento magnético del ente dispersor, por lo tanto la magnitud de esta dispersión está fundamentalmente relacionada con la configuración magnética del sistema. Las aplicaciones tecnológicas de estos materiales magnetorresistentes como sensores de campo magnético y en cabezas lectoras de discos rígidos incentivaron el estudio sistemático de una inmensa variedad de combinaciones de materiales conductores y magnéticos con el objetivo de buscar el mayor cambio de resistividad con el menor campo aplicado.

Desde el punto de vista teórico se atacó el estudio de las propiedades de transporte desde diferentes ángulos. Los primeros modelos fueron fenomenológicos lo que permitió adquirir una idea intuitiva de cómo son los fenómenos [10, 11, 12]. Pero, estos modelos dejaban de lado la estructura electrónica, la cual fue tenida en cuenta en trabajos posteriores mostrando que dentro de la aproximación semiclásica se puede dar cuenta de muchos de los fenómenos observados [13]. La utilización de métodos semiclásicos, mayormente utilizando la ecuación de Boltzmann, tiene la ventaja de ser computacionalmente veloz y permite analizar sistemas reales. Su limitación son los efectos cuánticos de tamaño que aparecen en el transporte y que no son tenidos en cuenta con una estructura de bandas calculada en el equilibrio. La fórmula de Kubo [14] y el modelo de Landauer-

Buttiker [15] son más adecuados para ser utilizados en sistemas en donde la interferencia cuántica no puede ser descartada en el estudio de la dinámica. Su desventaja es el alto tiempo de cálculo lo que permite sólo modelar sistemas muy simples y alejados de los materiales reales.

Esta tesis

En esta tesis, teórica y experimental, estudiamos las propiedades de transporte de dos tipos de sistemas que pueden presentar magnetorresistencia, en un caso se trata de sistemas crecidos en multicapas y en el otro de aleaciones granulares. Ambos están compuestos por metales nobles y metales magnéticos. La particularidad de los sistemas que estudiamos en esta tesis es que en el primer caso las multicapas presentan la llamada GMR inversa y en el segundo, la aleación granular está dispuesta de tal forma que los sistemas presentan una estructura en multicapas. El transporte eléctrico lo estudiamos focalizando en la estructura de bandas real de los materiales estudiados a través de la ecuación semiclásica de Boltzmann. Los efectos de la estructura de bandas son tomados en cuenta al calcular la velocidad semiclásica. También incluimos los efectos del tiempo de relajación.

Esta tesis fue diagramada de la siguiente forma: en el capítulo 1 describimos en forma resumida la teoría semiclásica del transporte eléctrico, reseñamos modelos propuestos en la literatura más intuitivos para los sistemas a estudiar. En el capítulo 2 repasamos los técnicas teóricas y experimentales utilizadas específicamente en esta tesis.

En el capítulo 3 estudiamos el comportamiento de la GMR en una multicapa Fe/Cu con una capa muy delgada de Cr crecida cada dos capas de Fe. Mostramos que la GMR inversa que se observa experimentalmente sólo es reproducible si se tiene en cuenta la estructura de bandas del sistema. El capítulo 4 está dedicado al estudio experimental de una aleación granular de agregados de Co embebidos en Ag dispuestos dentro de la matriz conductora de dos formas distintas: al azar y puestos en capas separadas por otras de Ag. Aquí observamos principalmente cómo es el régimen de transporte eléctrico dependiendo del tamaño y forma de los agregados y espesor de las capas. El quinto capítulo está dedicado al cálculo de las propiedades de transporte de multicapas formadas por capas de Ag alternadas con capas magnéticas de una aleación granular Co/Ag como las medidas en el capítulo 4. Encontramos que proponiendo un modelo semiclásico podemos reproducir lo que se observa experimentalmente cuando la densidad de agregados de Co en las capas magnéticas es suficientemente grande como para que estos agregados comiencen a coalescer entre ellos.

Por último en el capítulo 6 remarcamos las conclusiones finales del trabajo poniendo en evidencia la importancia y utilidad de que las técnicas de cálculo tengan en cuenta una estructura de bandas realista.

Capítulo 1

Transporte eléctrico y magnetismo en aleaciones metálicas

1.1. Teoría semiclásica del transporte eléctrico

1.1.1. Modelo de Drude

En 1900 P. Drude [16] propuso el primer modelo para dar cuenta del transporte electrónico, el cual, a pesar de su sencillez teórica, sentó los conceptos utilizados en la actualidad. En este modelo clásico Drude propuso simplemente los siguientes dos postulados:

i) Existencia de un gas de electrones libres con un fondo uniforme cargado positivamente tal que la carga eléctrica neta del sistema sea nula.

ii) Los electrones se mueven de forma independiente y colisionan entre ellos sólo en forma instantánea.

Con estos dos ingredientes se puede encontrar una expresión para la conductividad eléctrica. Al aplicar un campo eléctrico los electrones se ven acelerados por una fuerza

$$\mathbf{F} = -e\,\mathbf{E} \tag{1.1}$$

donde e es la carga eléctrica del electrón y $\mathbf{E}$ es el campo eléctrico aplicado. La variación del momento lineal está dada por

$$\delta\mathbf{p} = \mathbf{F}t, \tag{1.2}$$

con $\mathbf{p}$ denotamos al momento lineal de cada electrón y t es el lapso durante el cual se encuentra acelerado. Por otro lado, experimentalmente la corriente eléctrica alcanza un estado estacionario, indicando que el tiempo en el cual son acelerados los electrones es

finito y lo llamaremos tiempo de relajación, τ. La interacción instantánea entre los electrones propuesta por Drude provoca una relajación en el $\mathbf{p}$ de los mismos, llegando entonces a una situación estacionaria donde los electrones tienen un momento lineal promedio, $\bar{\mathbf{p}}$, en la dirección de $\mathbf{E}$. Entonces podemos escribir

$$\bar{\mathbf{v}} = -\frac{e\mathbf{E}\tau}{m}, \tag{1.3}$$

donde $\bar{\mathbf{v}}$ es la velocidad media asociada a $\bar{\mathbf{p}}$ y m es la masa del electrón. Por otro lado, sabemos que la relación constitutiva para el transporte eléctrico es

$$\mathbf{J} = \bar{\bar{\sigma}}\mathbf{E}, \tag{1.4}$$

donde $\mathbf{J}$ es la densidad de corriente y $\bar{\bar{\sigma}}$ es el tensor conductividad eléctrica, y también que

$$\mathbf{J} = -en\bar{\mathbf{v}}, \tag{1.5}$$

donde n es la densidad electrónica. Considerando que el sistema es isotrópico y despejando σ de las ecuaciones (1.3), (1.4) y (1.5) obtenemos

$$\sigma = \frac{ne^2\tau}{m}. \tag{1.6}$$

Esta ecuación es la fórmula de Drude para la conductividad eléctrica. En la misma podemos ver que el único parámetro a determinar es τ. También, se suele definir otro parámetro, el camino libre medio λ que se relaciona con τ de la siguiente forma

$$\lambda = \tau\bar{v}. \tag{1.7}$$

λ da noción del camino que recorre un electrón entre colisión y colisión. De esta forma σ también se puede escribir

$$\sigma = \frac{ne^2\lambda}{m\bar{v}}. \tag{1.8}$$

A pesar de su simplicidad y de que sus fundamentos son totalmente clásicos, la fórmula de Drude da una idea cualitativa de la conductividad eléctrica y de otros fenómenos de transporte. Debido a ésto los conceptos de tiempo de relajación y camino libre medio han sobrevivido a los años y hoy en día son utilizados cuando se implementan modelos semiclásicos de transporte.

1.1.2. Ecuación de Boltzmann

La utilización de la ecuación de transporte de Boltzmann ha tenido mucho éxito en la determinación de la conductividad de metales de transición y de sus aleaciones [17, 18]. Esta ecuación, dentro del marco semiclásico, trata a los electrones del mar de conducción como partículas clásicas pero que obedecen a la estadística de Fermi-Dirac. Con partículas clásicas queremos decir que su longitud de onda asociada es mucho menor que los tamaños característicos de las estructuras cristalinas bajo estudio y que las distancias típicas de variación de los campos aplicados. Por lo tanto, en nuestro caso, la ecuación de Boltzmann da cuenta de los mecanismos que pueden afectar a la función de distribución de Fermi-Dirac, $f(\mathbf{k})$, en equilibrio. Entonces, estos mecanismos pueden ser:

i) Difusión. Si la función de distribución $f(\mathbf{k})$ varía con respecto a $\mathbf{r}$, hay una tendencia a que ésta lo haga con el tiempo siguiendo la siguiente ecuación

$$\frac{df(\mathbf{k})}{dt}\Big|_{dif} = -\mathbf{v}(\mathbf{k}).\frac{\partial f(\mathbf{k})}{\partial \mathbf{r}}, \tag{1.9}$$

donde $v(\mathbf{k})$ es la velocidad semiclásica. Esta expresión da cuenta de la variación temporal de la función distribución inducida por la difusión desde zonas con más densidad electrónica a zonas con menor densidad. La rapidez con la que los electrones difunden en el sistema, está relacionada con la velocidad de los mismos, $\mathbf{v}(\mathbf{k})$.

ii) Campo externo. En la dinámica semiclásica la ecuación de Lorentz se expresa de la siguiente forma [19],

$$\frac{d\mathbf{k}}{dt} = -\frac{e}{\hbar}\left(\mathbf{E} + \frac{1}{c}\mathbf{v}(\mathbf{k}) \times \mathbf{H}\right). \tag{1.10}$$

Entonces, la $f(\mathbf{k})$ a un dado tiempo pasa a ser $f(\mathbf{k} + \delta t \frac{d\mathbf{k}}{dt})$ en un lapso dt. El número de ocupación cambia según

$$\begin{aligned} \frac{df(\mathbf{k})}{dt}\Big|_{ext} &= -\frac{e}{\hbar}\left(\mathbf{E} + \frac{1}{c}\mathbf{v}(\mathbf{k}) \times \mathbf{H}\right)\frac{\partial f(\mathbf{k})}{\partial \mathbf{k}} \\ &= -\frac{e}{\hbar}\left(\mathbf{E} + \frac{1}{c}\mathbf{v}(\mathbf{k}) \times \mathbf{H}\right)\frac{\partial f(\mathbf{k})}{\partial \varepsilon}\mathbf{v}(\mathbf{k}). \end{aligned} \tag{1.11}$$

iii) Dispersión. Los procesos de dispersión, cualquiera sea su origen, alteran la función distribución $f(\mathbf{k})$. Este cambio en función del tiempo lo denominaremos

$$\frac{df(\mathbf{k})}{dt}\Big|_{dis}, \tag{1.12}$$

donde esta cantidad da cuenta de la diferencia entre los electrones que entran y los que salen del estado $\mathbf{k}$ en dt.

Entonces la derivada total de $f(\mathbf{k})$ respecto del tiempo es

$$\frac{df(\mathbf{k})}{dt} = \frac{df(\mathbf{k})}{dt}\Big|_{dif} + \frac{df(\mathbf{k})}{dt}\Big|_{ext} + \frac{df(\mathbf{k})}{dt}\Big|_{dis}. \tag{1.13}$$

En particular, si el transporte se da en el estado estacionario, o sea $\frac{df(\mathbf{k})}{dt} = 0$, y si reemplazamos la ecuación (1.13) en (1.12), (1.11) y (1.9) encontramos que

$$-\mathbf{v}(\mathbf{k}) \cdot \left\{ \frac{\partial f(\mathbf{k})}{\partial \mathbf{r}} + \frac{e}{\hbar}\left[\mathbf{E} + \frac{1}{c}\mathbf{v}(\mathbf{k}) \times \mathbf{H}\right] \frac{\partial f(\mathbf{k})}{\partial \varepsilon} \right\} = -\frac{df(\mathbf{k})}{dt}\Big|_{dis}, \tag{1.14}$$

que es la ecuación de Boltzmann en su forma más general.

Una vez obtenida $f(\mathbf{k})$ estamos en condiciones de calcular la densidad de corriente a través de

$$\mathbf{J} = e \int d\mathbf{k}\, \mathbf{v}(\mathbf{k}) f(\mathbf{k}), \tag{1.15}$$

que se relaciona con la conductividad a través de la relación constitutiva (1.4).

1.1.2.1. El término de dispersión

El término más difícil de determinar en la ecuación de Boltzmann es el de dispersión, ya que éste involucra resolver una ecuación íntegro-diferencial como veremos a continuación. Los centros dispersores dan lugar a que la función distribución se modifique cuando los electrones cambian su estado debido a la interacción con dichos centros. Por lo tanto la variación temporal de $f(\mathbf{k})$ gracias a esta dispersión está dada por el balance entre los electrones salientes y entrantes a cada uno de los estados $\mathbf{k}$ del sistema, matemáticamente podemos escribir ésto de la siguiente manera

$$\frac{df(\mathbf{k})}{dt}\Big|_{dis} = \frac{df(\mathbf{k})}{dt}\Big|_{dis}^{entra} + \frac{df(\mathbf{k})}{dt}\Big|_{dis}^{sale}. \tag{1.16}$$

Ambos términos de la derecha de la ecuación anterior dependen de la capacidad de los electrones de tener una transición de un estado a otro. La variación de la función distribución debida a los electrones salientes depende de dos factores. Uno de ellos es la probabilidad por unidad de tiempo de que un electrón pase de un estado $\mathbf{k}$ a otro $\mathbf{k}$', $W(\mathbf{k},\mathbf{k}')$. Y el otro es que el estado inicial, $\mathbf{k}$, esté ocupado y que el estado final, $\mathbf{k}$', no. De no ser así el principio de exclusión evita la transición. Podemos expresar matemáticamente el cambio de la distribución debido a los electrones salientes de la siguiente manera

$$\frac{df(\mathbf{k})}{dt}\Big|_{dis}^{sale} = f(\mathbf{k}) \int \frac{d\mathbf{k}'}{(2\pi)^3} W(\mathbf{k},\mathbf{k}') \left[1 - f(\mathbf{k}')\right]. \tag{1.17}$$

Según el principio de reversibilidad microscópica $W(\mathbf{k},\mathbf{k}') = W(\mathbf{k}',\mathbf{k})$ y haciendo un razonamiento análogo al anterior, arribamos a la siguiente expresión para los electrones entrantes

$$\frac{df(\mathbf{k})}{dt}\Big|_{dis}^{entra} = [1-f(\mathbf{k})]\int \frac{d\mathbf{k}'}{(2\pi)^2} W(\mathbf{k},\mathbf{k}')f(\mathbf{k}'). \tag{1.18}$$

Por lo tanto, en su expresión más general el término de dispersión está dado por [20]

$$\frac{df(\mathbf{k})}{dt}\Big|_{dis} = -\int \frac{d\mathbf{k}'}{(2\pi)^3} W(\mathbf{k},\mathbf{k}')\Big\{f(\mathbf{k})\left[1-f(\mathbf{k}')\right] - f(\mathbf{k}')\left[1-f(\mathbf{k})\right]\Big\}. \tag{1.19}$$

Con el objetivo de simplificar este término, se trabaja generalmente con una expresión linealizada del mismo. Para poder hacer esta simplificación suponemos que nuestra distribución se puede escribir de la siguiente forma

$$f(\mathbf{k}) = f^0(\mathbf{k}) + g(\mathbf{k}), \tag{1.20}$$

donde $g(\mathbf{k})$ es una corrección pequeña respecto de la distribución de equilibrio, $f^0(\mathbf{k})$. Reemplazando $f(\mathbf{k})$ en la ecuación (1.19) por (1.20) y quedándonos con los términos a primer orden llegamos a la siguiente expresión linealizada para el término de dispersión,

$$\frac{df(\mathbf{k})}{dt}\Big|_{dis} = -\int \frac{d\mathbf{k}'}{(2\pi)^3} W(\mathbf{k},\mathbf{k}')\left[g(\mathbf{k}') - g(\mathbf{k})\right]. \tag{1.21}$$

1.1.2.2. Soluciones elementales de la ecuación de Boltzmann

Aproximación de tiempo de relajación

La simplificación más cruda que se puede hacer sobre (1.21) es suponer que la probabilidad de dispersión es independiente de **k** y de **k**'. Entonces el término de dispersión se escribe

$$\frac{df(\mathbf{k})}{dt}\Big|_{dis} = -\frac{g(\mathbf{k})}{\tau(\mathbf{k})}, \tag{1.22}$$

y ésta es la aproximación de tiempo de relajación. Se puede mostrar que esta aproximación es la solución exacta para un sistema isotrópico (superficie de Fermi esférica) con dispersiones elásticas [21].

Reemplazando (1.22) en (1.14) y reescribiendo esta última ecuación llegamos a la siguiente expresión

$$g(\mathbf{k}) = \frac{e}{\hbar}\mathbf{v}(\mathbf{k})\cdot\mathbf{E}\frac{\partial f^0(\mathbf{k})}{\partial \varepsilon}\tau(\mathbf{k}), \tag{1.23}$$

donde estamos suponiendo que no tenemos difusión por gradientes de temperatura y que no tenemos campo magnético aplicado. Por otro lado si tenemos en cuenta que la función

distribución se aparta muy poco de la de equilibrio para las temperaturas consideradas tenemos que $\partial f/\partial\varepsilon \approx \partial f^0/\partial\varepsilon$.

Si reemplazamos esta solución para la función distribución en la ecuación (1.4), podemos escribir a $\mathbf{J}$ como

$$\begin{aligned}\mathbf{J} &= -\int d\mathbf{k}\, \mathbf{v}(\mathbf{k}) \left[\mathbf{v}(\mathbf{k})\cdot\mathbf{E}\, e^2 \frac{\partial f^0(\mathbf{k})}{\partial\varepsilon}\tau(\mathbf{k})\right] \\ &= \frac{-e^2}{4\pi^3} \iint\limits_{S(\varepsilon=cte)} dS\, \tau(\mathbf{k})\mathbf{v}(\mathbf{k}) \left[\frac{\partial f^0(\mathbf{k})}{\partial\varepsilon}\frac{d\varepsilon}{|\nabla_{\mathbf{k}}\varepsilon|}\mathbf{v}(\mathbf{k})\cdot\mathbf{E}\right].\end{aligned} \tag{1.24}$$

De esta última y teniendo en cuenta que la función de distribución de los electrones a T = 0 K es un escalón en el nivel de Fermi, la derivada de ésta respecto de la energía es la función delta de Dirac, entonces deducimos que el tensor de conductividad σ es

$$\sigma_{ij} = \frac{-e^2}{4\pi^3}\iint dS_F\, \tau(\mathbf{k})\, v_i(\mathbf{k})\, v_j(\mathbf{k})\frac{1}{|\nabla_{\mathbf{k}}\varepsilon|}. \tag{1.25}$$

σ_{ij} es un tensor simétrico y por lo tanto existe un sistema de referencia en el cual es diagonal. Sin perder generalidad podemos definir solamente las componentes diagonales del tensor de la siguiente forma:

$$\sigma_{ii} = \frac{-e^2}{4\pi^3}\iint dS_F\, \tau(\mathbf{k})\, [v_i(\mathbf{k})]^2\frac{1}{|\nabla_{\mathbf{k}}\varepsilon|}. \tag{1.26}$$

También podemos expresar la conductividad usando el concepto de camino libre medio. Como ya dijimos en al apartado 1.1.1 esta cantidad representa la distancia recorrida por los electrones entre colisiones o, desde el punto de vista de la estructura de bandas, podemos pensar que es la distancia media recorrida hasta relajar a otro estado. Intuitivamente lo podemos definir de la siguiente forma [22]:

$$\boldsymbol{\lambda}(\mathbf{k}) = \tau(\mathbf{k})\mathbf{v}(\mathbf{k}). \tag{1.27}$$

Por lo tanto la ecuación (1.25) la podemos reescribir como sigue

$$\sigma_{ij} = \frac{-e^2}{4\pi^3}\iint dS_F\, v_i(\mathbf{k})\, \lambda_j(\mathbf{k})\frac{1}{|\nabla_{\mathbf{k}}\varepsilon|}. \tag{1.28}$$

Aproximación de tiempo de relajación anisotrópico

En ciertos metales o aleaciones la aproximación de tiempo de relajación deja de ser válida. Esto ocurre cuando no es posible obtener un valor de τ aceptable que sea independiente de la distribución de no equilibrio. Ahora, si suponemos que τ depende de $\mathbf{k}$, entonces el tiempo de relajación está asociado al tiempo medio que un electrón en $\mathbf{k}$ tarda en relajar a cualquier otro estado $\mathbf{k}$' y lo podemos expresar de la siguiente manera

$$\frac{1}{\tau(\mathbf{k})} = \int \frac{d\mathbf{k}'}{(2\pi)^3} W(\mathbf{k},\mathbf{k}') \left[1 - f(\mathbf{k}')\right]. \tag{1.29}$$

Algunos autores [22, 23] sostienen que en sistemas fuertemente anisotrópicos el camino libre medio no es colineal con la velocidad semiclásica, por lo tanto al tiempo de relajación lo definen de la siguiente manera

$$\tau(\mathbf{k}) = \frac{\mathbf{v}(\mathbf{k}).\boldsymbol{\lambda}(\mathbf{k})}{\mathbf{v}(\mathbf{k}).\mathbf{v}(\mathbf{k})}. \tag{1.30}$$

Partiendo de ésta, a $\boldsymbol{\lambda}(\mathbf{k})$ lo podemos obtener de forma iterativa a partir de la siguiente ecuación

$$\boldsymbol{\lambda}(\mathbf{k}) = \tau_0(\mathbf{k}) \left[\mathbf{v}(\mathbf{k}) + \int d\mathbf{k}\, W(\mathbf{k},\mathbf{k}')\boldsymbol{\lambda}(\mathbf{k}')\right], \tag{1.31}$$

donde

$$\frac{1}{\tau_0(\mathbf{k})} = \int \frac{d\mathbf{k}'}{(2\pi)^3} W(\mathbf{k},\mathbf{k}'). \tag{1.32}$$

y como valor inicial se toma $\boldsymbol{\lambda}(\mathbf{k}) = \tau_0(\mathbf{k})\mathbf{v}(\mathbf{k})$.

De la ecuación (1.31) vemos que el camino libre medio es el dado en la aproximación de tiempo de relajación (ecuación (1.27)) más un término que tiene en cuenta la probabilidad de dispersión a los diferentes estados. De esta forma se incluye la anisotropía de la superficie de Fermi en el cálculo del camino libre medio.

El cálculo de la conductividad en este trabajo de tesis está basado en la ecuación semiclásica de Boltzmann en la aproximación de tiempo de relajación. En particular, en el capítulo 3 usamos un tiempo de relajación isotrópico mientras que en el 5 calculamos un tiempo anisotrópico que depende de la configuración de medición.

1.2. Transporte eléctrico en metales de transición

1.2.1. Fuentes de dispersión

A pesar de que las propiedades de transporte de los metales de transición no son muy distintas a la de los otros metales, éstas presentan características que es importante mencionar.

1.2.1.1. Modelo de las dos corrientes

Debido al ferromagnetismo de alguno de estos metales (por ejemplo Ni o Fe) la resistencia que se observa para cada uno de los dos canales de *espín* es diferente. Esto lleva a postular el llamado modelo de las dos corrientes [24] el cual sostiene que la resistencia total está dada por las resistencias de cada una de las polarizaciones de los electrones sumadas como resistencias en paralelo. Para estudiar este fenómeno A. Fert y I.A. Campbell [25] lo hacen a partir de plantear la ecuación de Boltzmann en la aproximación de tiempo de relajación. Para adecuarla a este problema reformularon el término de dispersión (dado en (1.22)) de la siguiente forma

$$\begin{aligned} \left.\frac{df^{\uparrow}}{dt}\right|_{dis} &= -\frac{g^{\uparrow}}{\tau^{\uparrow}} - \frac{g^{\uparrow}-g^{\downarrow}}{\tau^{\uparrow\downarrow}}, \\ \left.\frac{df^{\downarrow}}{dt}\right|_{dis} &= -\frac{g^{\downarrow}}{\tau^{\downarrow}} - \frac{g^{\downarrow}-g^{\uparrow}}{\tau^{\uparrow\downarrow}}, \end{aligned} \tag{1.33}$$

de estas dos últimas expresiones podemos ver que tenemos una función distribución para cada una de las orientaciones del *espín* y dos tiempos de relajación característicos. Al término de dispersión visto con anterioridad se le suma otro relacionado con las dispersiones que provocan un cambio en la dirección del *espín*[1]. Esta relajación va a definir una nueva distancia característica para los metales magnéticos llamada longitud de difusión de *espín*. Por simplicidad estamos suponiendo la independencia en $\mathbf{k}$ del problema. La resistividad del sistema, entonces, está dada por [26]

$$\rho = \frac{\rho^{\uparrow}\rho^{\downarrow} + \rho^{\uparrow\downarrow}(\rho^{\uparrow}+\rho^{\downarrow})}{\rho^{\uparrow}+\rho^{\downarrow}+4\rho^{\uparrow\downarrow}}, \tag{1.34}$$

donde $\rho^{\uparrow} = m/ne^2\tau^{\uparrow}$, $\rho^{\downarrow} = m/ne^2\tau^{\downarrow}$, $\rho^{\uparrow\downarrow} = m/ne^2\tau^{\uparrow\downarrow}$. A $T = 0$ K las ondas de *espín*, que son el origen de la principal interacción que no conserva el *espín*, se desvanecen y por lo tanto podemos no considerar, en una buena aproximación, el término $\rho^{\uparrow\downarrow}$. Entonces la

[1] Las dispersiones que cambian la dirección de *espín* de los electrones son las debidas a interacciones con magnones y acoplamientos *espín*-órbita.

ecuación (1.34) se puede escribir

$$\rho_0 = \frac{\rho_0^{\uparrow}\rho_0^{\downarrow}}{\rho_0^{\uparrow}+\rho_0^{\downarrow}}, \tag{1.35}$$

donde el subíndice 0 denota la resistividad a $T = 0$ K, que es la llamada resistividad residual. Una de las consecuencias del modelo de las dos corrientes es la explicación de por qué en materiales magnéticos con impurezas de dos tipos diferentes la ley de Matthiessen[2] falla. Para ver ésto, supongamos que tenemos un metal magnético en el cual hay dos tipos de impurezas con concentración diluida. Según el modelo de las dos corrientes y suponiendo que la ley de Matthiessen se cumple para cada uno de los canales, la resistividad total está dada por

$$\frac{1}{\rho_0} = \frac{1}{\rho_A^{\uparrow}+\rho_B^{\uparrow}} + \frac{1}{\rho_A^{\downarrow}+\rho_B^{\downarrow}}, \tag{1.36}$$

donde $\rho_{A(B)}$ es la resistividad que proviene de considerar la aleación solamente compuesta por la impureza de tipo $A(B)$. De esta última ecuación podemos ver que la resistividad total no es la suma de las resistividades parciales, por lo tanto la ley de Matthiessen no es más válida. Experimentalmente se pudo comprobar esto en aleaciones ternarias de Fe y Ni [26, 27].

También esta desviación de la regla de Matthiessen se puede observar en metales no magnéticos pero con impurezas magnéticas. I. Mertig *et al.* [28] vio, en forma teórica, que efectivamente esto también ocurría en aleaciones de Cu con impurezas magnéticas. En ese tipo de sistemas, el modelo de las dos corrientes no es aplicable ya que el Cu no tiene una polarización neta. Pero lo que si va a ser dependiente del *espín* es la interacción de los electrones con las impurezas magnéticas. Esta dispersión dependiente del *espín* [27] depende de las orientaciones relativas entre el *espín* de los electrones conductores y el momento magnético de las impurezas. Por lo tanto las resistividades efectivas que provienen de las impurezas son distintas para ambos canales de *espín*.

Este modelo es usado sistemáticamente a lo largo de esta tesis ya que, como explicamos más adelante, es fundamental para entender microscópicamente el efecto de magnetorresistencia gigante en los sistemas magnéticos estudiados.

[2]La ley de Matthiessen dice que si tenemos una aleación compuesta por dos tipos de impurezas, la resistividad total estará dada por la suma de las resistividades de cada una de las impurezas (ver apéndice A).

1.2.1.2. Modelo de Mott

Otra característica importante de los metales de transición fue explicada por N.F. Mott y H. Jones [29]. Con el objetivo de analizar como la anisotropía de la superficie de Fermi influye sobre la resistividad de estos metales, propusieron lo siguiente: la anisotropía de la superficie de Fermi es debida a que ésta está formada por estados conductores s y por estados localizados d responsables del magnetismo en estos metales. La corriente eléctrica es transportada principalmente por los electrones s, que son los de masa efectiva más pequeña. La resistividad, por otro lado, está dada por la dispersión de los electrones conductores a los estados localizados d. Obviamente al ser más localizados, éstos tienen una masa efectiva más grande, lo que hace que los electrones que sean dispersados a estos estados contribuyan mucho menos a la conducción. También, hay que tener en cuenta que la transición $s-d$ será mucho más probable que la $s-s$ ya que la densidad de estados d es más grande, por lo tanto la probabilidad de que un electrón sea dispersado a un estado d es mayor que a uno s. Es importante notar que ésta no es una fuente adicional de dispersión, sino que es consecuencia de la topología de la superficie de Fermi. Este modelo sirve por ejemplo para estudiar las aleaciones de metales de transición con metales monovalentes. En particular podemos citar el caso de la aleación Ag-Pd [30]. En ésta, cuando se dopa la Ag con poco Pd se puede tratar como una aleación desordenada, pero cuando la concentración de Pd es lo suficientemente alta, los electrones conductores de Ag ya no son suficientes como para llenar los estados vacantes d del Pd. En este punto los electrones responsables del transporte comienzan a sufrir transiciones $s-d$ y la resistividad sube de forma anormal como vemos en la figura (ver figura 1.1).

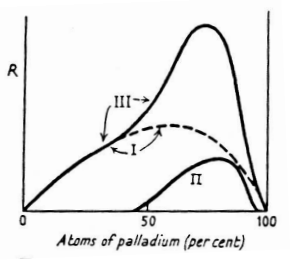

Figura 1.1: Curva teórica de resistencia en función de la concentración de Pd de la aleación Ag-Pd a 0K, (I) debido a transiciones $s-s$, (II) debido a transiciones $s-d$ y (III) el total de las dos contribuciones.

En el capítulo 5 calculamos el tiempo de relajación para multicapas compuestas de una aleación granular magnética utilizando este modelo. Vemos que es especialmente útil para diferenciar el transporte eléctrico en configuraciones de medición.

1.2.2. Conductividad a partir de la estructura de bandas real

Con la aparición de los métodos *ab initio* (sección 2.1.1) fue posible obtener con precisión la estructura de bandas de los elementos. En particular, es posible determinar la topología de la superficie de Fermi y cuáles son las simetrías de los estados electrónicos que la componen. Poseer una buena descripción de la superficie de Fermi es fundamental para el cálculo de la conductividad, ya que, como vemos de la ecuación (1.26), ésta es proporcional a la cantidad de superficie tanto como a la simetría de las bandas cuantificada a través de la velocidad semiclásica.

En particular, los metales de transición son descriptos de forma adecuada dentro de la aproximación de densidad local de *espín* [31]. Para alguno de estos metales tenemos que tener en cuenta la polarización de *espín* que da lugar al ferromagnetismo como también la posibilidad de que más de una banda electrónica cruce el nivel de Fermi. Por lo tanto, tenemos que considerar una versión de la ecuación (1.26) que distinga entre ambas polarizaciones y tenga en cuenta las diferentes bandas de la siguiente forma:

$$\sigma_{ii}^{s} = \frac{-e^2}{4\pi^3} \sum_{\nu} \iint dS_F \, \tau^{s\nu}(k) \left[v_i^{s\nu}(k) \right]^2 \frac{1}{|\nabla_{\mathbf{k}} \varepsilon|}, \tag{1.37}$$

donde s es el índice de *espín* y ν el de banda.

Gran parte de está tesis está basada en la ecuación (1.37) ya que ésta cuantifica la contribución a la conductividad de la superficie de Fermi y de las velocidades semiclásicas. En los diferentes capítulos, la utilizamos para describir los sistemas estudiados cuyas estructuras de bandas son calculadas por diferentes métodos.

Para entender los aspectos básicos del cálculo de conductividad a partir de la estructura de bandas mostraremos dos ejemplos sencillos. En la figura 1.2 mostramos la estructura de bandas para el Cu FCC en volumen a lo largo de un camino de alta simetría dentro de la primera zona de Brillouin[3] [32]. En ella podemos ver que el nivel de Fermi es cruzado por estados muy dispersivos de forma parabólica de tipo s y también, que los estados más localizados, $3d$, están mayormente ocupados. En la figura 1.3 mostramos la superficie de Fermi del Cu, la cual consta de una sola hoja ya que la energía de Fermi es intersectada por una sola banda electrónica. También podemos ver que existen dos zonas bien diferenciadas: una parte esférica en el centro y otras con formas de cuello sobre los bordes de la primera zona de Brillouin. Por un lado la zona con simetría esférica tiene mayormente carácter sp y nos hace recordar a una superficie de Fermi de electrón libre. Mientras que en los cuellos, los estados electrónicos son menos dispersivos ya que su carácter es principalmente d.

En la figura 1.4 mostramos las bandas electrónicas de ambas polarizaciones de *espín* del Co FCC a lo largo de un camino de alta simetría [32]. Podemos apreciar que para la polarización *up* el nivel de Fermi es cruzado por una banda muy dispersiva perteneciente al estado $4s$, mientras que los estados $3d$ están por debajo del nivel de Fermi. En cambio para la polarización *down*, prácticamente, todas las bandas $3d$ tienen una energía mayor que la de Fermi. Las superficie de Fermi *up* del Co está compuesta por una sola banda electrónica como se puede ver en la figura 1.5. También podemos observar que es muy parecida a la superficie de Fermi del Cu, ya que está compuesta por una zona esférica en el centro y cuellos cerca de los bordes de la primera zona. Por otro lado la superficie

[3] Los caminos de alta simetría dentro de la primera zona de Brillouin se caracterizan por estar formados por puntos $\mathbf{k}$ de alta degeneración y por lo tanto las diferencias entre los estados degenerados se debe principalmente a que tipo de simetría orbital pertenecen.

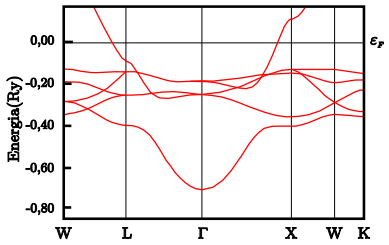

Figura 1.2: Energía de las diferentes bandas del Cu FCC para un camino de alta simetría dentro de la primera zona de Brillouin.

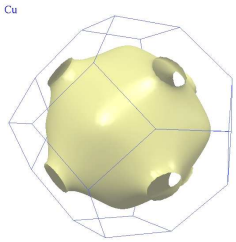

Figura 1.3: Superficie de Fermi del Cu FCC en volumen. Extraída de la referencia [33].

de Fermi *down* está compuesta por tres capas de fuerte carácter *d*, ya que las bandas que cruzan el nivel de Fermi tienen esta simetría.

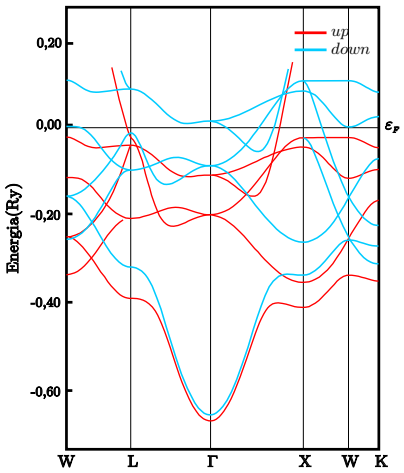

Figura 1.4: Energía de las diferentes bandas electrónicas del Co FCC para un camino de alta simetría en la primera zona de Brillouin.

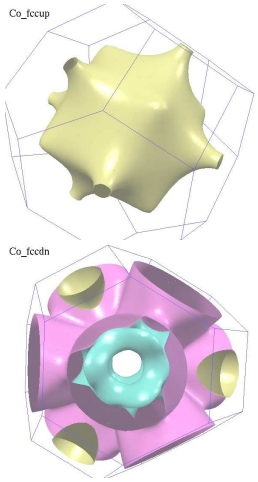

Figura 1.5: Superficies de Fermi del Co FCC en volumen para ambas polarizaciones. Extraídas de la referencia [33].

A partir de 1995 se comenzó a estudiar la contribución a la conductividad de la estructura de bandas, utilizando diferentes métodos de primeros principios y parametrizados para la obtención de la estructura electrónica. El primer trabajo sobre esto lo llevaron a cabo K.M. Schep *et al.* [34] en el cual calcularon la conductancia balística[4] en una multicapa Co/Cu. I. Mertig y colaboradores [13] calcularon la magnetorresistencia del mismo sistema que nosotros estudiamos en el capítulo 3. En dicho capítulo discutimos

[4]La conductancia balística ocurre cuando los electrones fluyen sin ser dispersados en forma difusiva. Esto último sucede cuando los electrones fluyen sin dispersarse o sus interacciones con los centros dispersores no son al azar y por lo tanto no se pierde la coherencia.

sobre este trabajo. R. Gómez Abal *et al.* [35], utilizando un *Hamiltoniano* de enlaces fuertes para obtener la estructura electrónica, calculó la GMR de una superred natural de Fe/Rh logrando un muy buen acuerdo cuantitativo con los resultados experimentales. Los sistemas que crecen naturalmente en multicapas tienen la ventaja de que sus interfaces no son rugosas, por lo tanto es esperable obtener resultados con buena concordancia experimental utilizando celdas unidad con pocos átomos.

1.3. Magnetorresistencia gigante

El efecto de magnetorresistencia (MR) tiene lugar cuando la resistencia de un material varía en presencia de un campo magnético. Todos los metales tienen una MR intrínseca y pequeña debida a la fuerza de Lorentz actuando sobre los electrones de conducción. Sin embargo, ciertas aleaciones magnéticas presentan un aumento notable en la MR. A la contribución intrínseca, en estas aleaciones, se le suma un efecto extrínseco dado por la dispersión de los electrones debida a los átomos magnéticos.

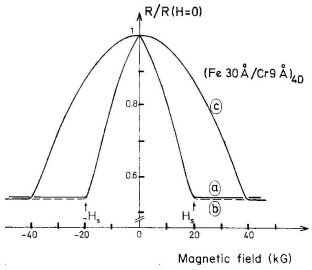

Figura 1.6: Curva de MR de una multicapa Fe/Cr a 4.2 K.

En 1988 [7] se descubre un nuevo tipo de magnetorresistencia en multicapas magnéticas Fe/Cr. Ésta tenía la particularidad que la resistencia disminuía a la mitad de su valor a campo cero cuando se le aplicaba campos mucho más pequeños que los necesarios para las magnetorresistencias conocidas hasta el momento; también se diferenciaba ya que presentaba saturación a un campo dado (ver figura 1.6). Debido a estas propiedades se la llamó magnetorresistencia gigante (GMR) directa. En esta primera experiencia la geometría de medición fue con la corriente eléctrica fluyendo paralela a las capas de la multicapa (CIP). En 1991 W.P. Pratt *et al.* [36] realizaron la primera medición de GMR con la corriente circulando perpendicularmente a las capas. Esta geometría es la llamada CPP. En la figura 1.7 podemos ver el esquema marcando la dirección de la corriente eléctrica.

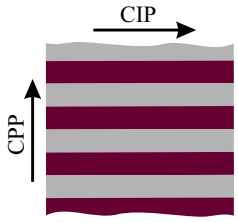

Figura 1.7: Esquema indicando ambas geometrías de medición.

El comportamiento de la GMR en ambas geometrías presentan dos marcadas diferencias (ver figura 1.8): la magnitud de la GMR y la longitud característica que domina a este efecto. En la configuración CIP se encontró que cuando las capas no magnéticas tenían un espesor mayor que el camino libre medio de los electrones, λ, el efecto de GMR desaparecía; en cambio en CPP, seguía observándose. Por lo tanto para esta última configuración, la longitud característica no es λ, ya que recién para espesores mayores que la longitud de difusión de *espín* desaparece la GMR. Por otro lado en las mediciones en CIP se han encontrado sistemáticamente valores menores de GMR que los medidos en CPP para un mismo sistema.

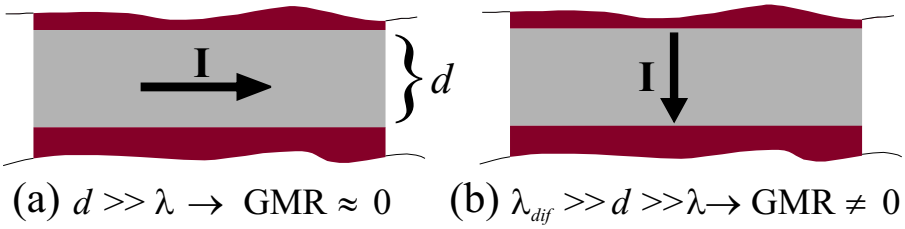

Figura 1.8: Comportamiento de la GMR en ambas geometrías de medición para espesores mayores al camino libre medio. λ_{dif} denota la longitud de difusión de *espín*.

El efecto de GMR también fue encontrado posteriormente en otros sistemas, en aleaciones granulares y en válvulas de *espín* [37]. En particular, en 1992 dos grupos [8, 9] descubrieron la GMR en aleaciones granulares. Estas consisten en agregados nanométricos de algunos elementos, o aleación magnética, embebidos en una matriz de metal noble.

1.3.1. Origen de la GMR

En las multicapas Fe/Cr se observó, al variar el espesor de Cr, que los valores de GMR tenían un comportamiento oscilatorio amortiguado [38], como muestra la figura 1.9. Esto se relacionó con el acoplamiento magnético entre capas de Fe mediado a través de Cr y debido a la interacción RKKY de los electrones de conducción, ya que los valores máximos alcanzados por la GMR corresponden a espesores para los cuales el acoplamiento antiferromagnético entre capas es máximo. En cambio para espesores en los cuales corresponde un acople ferromagnético la GMR alcanza los valores mínimos. De estas mediciones quedó en evidencia que el responsable de la GMR es el reacomodamiento de los momentos magnéticos con el campo magnético aplicado (como esquematizamos en la figura 1.10(a)), ya que cuando éstos no son reacomodados por el campo magnético, en la situación de acoplamiento ferromagnético, la GMR es prácticamente nula.

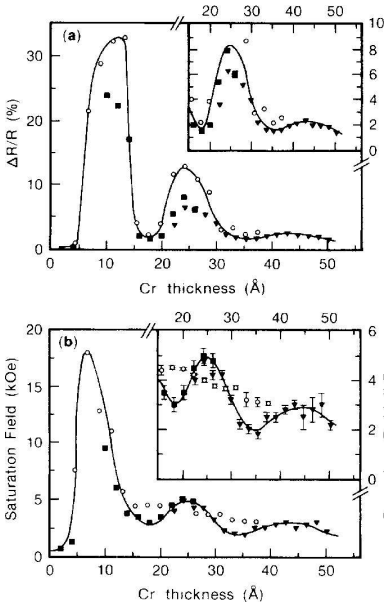

Figura 1.9: (a) GMR de Fe/Cr en función del espesor de Cr. (b) Campo de saturación de Fe/Cr en función del espesor de Cr.

En las aleaciones granulares el efecto ocurre de manera diferente (ver figura 1.10(b)). Sin campo aplicado los momentos magnéticos de los agregados están orientados al azar, dando una magnetización nula al sistema. Al aplicar un campo, las partículas magnéticas se alinean

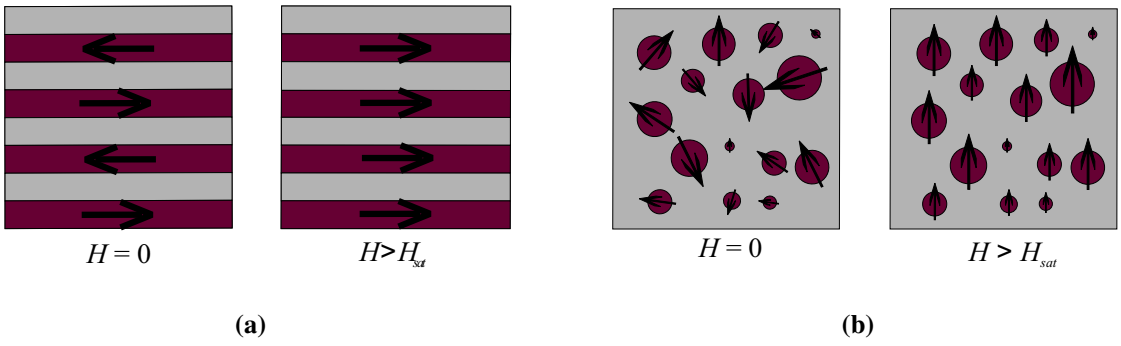

Figura 1.10: Cambio de configuración magnética, (a), de las multicapas y, (b), de las aleaciones granulares con campo aplicado.

produciéndose el reacomodamiento magnético. Por otro lado, en las válvulas de *espín* las capas magnéticas suelen tener diferente campo coercitivo, de tal manera que hay un rango de campo aplicado en el cual solamente una de las capas reacomoda su momento magnético. De esta forma dependiendo del campo aplicado, podemos obtener tanto configuraciones ferromagnéticas como antiferromagnéticas.

Desde el punto de vista microscópico, A. Fert propuso a la dispersión electrónica dependiente del *espín* como la responsable de la variación de la resistencia eléctrica que se observa tanto en las multicapas como en los otros sistemas mencionados [7]. La dispersión dependiente del *espín* de los electrones es debida a que el potencial eléctrico de contacto entre el metal conductor y el magnético que "sensa" los electrones de conducción depende de la polarización de los mismos como se muestra esquemáticamente en la figura 1.11. Esta dispersión es elástica, conserva la proyección de *espín* y ocurre principalmente en las interfaces entre las regiones no magnéticas y magnéticas y, en menor medida, también dentro del volumen de esta última región.

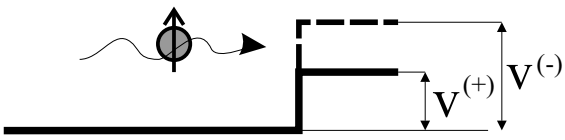

Figura 1.11: Esquema ilustrativo del potencial de dispersión interfacial dependiente del *espín*.

1.4. Multicapas magnéticas.

1.4.1. GMR en multicapas magnéticas

1.4.1.1. GMR en la geometría CIP

Aquí desarrollaremos los aspectos más intuitivos del transporte en la geometría CIP. Primero detallaremos una de las teorías semiclásicas más utilizadas para el transporte en esta geometría.

Sondheimer [39], basándose en la ecuación semiclásica de Boltzmann propuso el siguiente modelo para el transporte eléctrico en películas delgadas. Consideremos una película delgada de espesor a y supongamos que el eje z es perpendicular al plano de la película. Las superficies de la misma están en $z = 0$ y $z = a$. Gracias a la simetría continua de traslación en x e y, el problema se reduce a uno en una dimensión, pudiéndose escribir a la función distribución de los electrones de la siguiente forma

$$f(z,\mathbf{v}) = f_0 + g(z,\mathbf{v}), \tag{1.38}$$

donde f_0 es la función no perturbada y g es la corrección a primer orden y sólo depende de z. Estamos suponiendo que el campo eléctrico $\mathbf{E}$ se aplica según x. Por lo tanto podemos escribir la ecuación de Boltzmann de la siguiente forma

$$\frac{\partial g(z,\mathbf{v})}{\partial z} + \frac{g(z,\mathbf{v})}{\tau v_x} = \frac{eE}{mv_x}\frac{\partial f_0}{\partial v_x}, \tag{1.39}$$

cuya solución general es

$$g(z,\mathbf{v}) = \frac{\tau E}{m}\frac{\partial f_0}{\partial v_x}\left[1 + F(\mathbf{v})e^{-\frac{z}{\tau v_z}}\right], \tag{1.40}$$

donde $F(\mathbf{v})$ es una función arbitraria de $\mathbf{v}$.

Para determinar $F(\mathbf{v})$ tenemos que introducir las condiciones de contorno de las superficies de la película. Para esto tenemos que hacer suposiciones sobre cómo es la dispersión de los electrones cuando alcanzan las superficies. La suposición más simple es considerar que los portadores colisionan de forma difusiva, esto significa que las superficies son lo suficientemente rugosas como para que la coherencia de fase se pierda totalmente (figura 1.12(b)) y la distribución de velocidades de los electrones dispersados sea independiente de la dirección. Para satisfacer esta condición necesitamos que $g(\mathbf{v},0) = 0$ y que $g(\mathbf{v},a) = 0$ para todo $\mathbf{v}$ ya que en estos puntos sólo tiene que quedar f_0 como solución debido a que es la distribución con

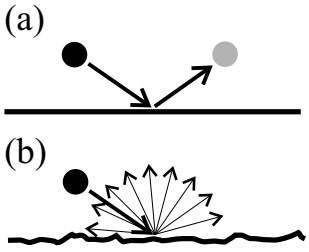

Figura 1.12: (a) Dispersión totalmente especular y, (b), totalmente difusiva.

simetría esférica la que es necesaria para dar cuenta de la independencia en la dirección. Por lo tanto, tenemos dos soluciones que corresponden a los electrones saliendo de la interfaz $z = 0$, o sea $v_z > 0$ y a los mismos emergiendo de $z = a$ con $v_z < 0$, a saber

$$g^+ = \frac{e\tau E}{m}\frac{\partial f_0}{\partial v_x}\left[1 - e^{-\frac{z}{\tau v_z}}\right](v_z > 0), \tag{1.41}$$

$$g^- = \frac{e\tau E}{m}\frac{\partial f_0}{\partial v_x}\left[1 - e^{\frac{a-z}{\tau v_z}}\right]\ (v_z < 0). \tag{1.42}$$

Con la función distribución podemos obtener la densidad de corriente **J** utilizando la ecuación (1.15) y, sobre todo, podemos calcular la conductividad, que queda de la siguiente forma

$$\sigma = \frac{1}{Ea}\int_0^a J(z)dz = \sigma_0\left\{1 - \frac{3\lambda}{2a}\int_0^{\frac{1}{2}\pi} \mathrm{sen}^3\theta\left[1 - e^{-\frac{a}{\lambda\cos\theta}}\right]\right\}, \tag{1.43}$$

donde σ_0 es la conductividad del metal en volumen y λ es el camino libre medio definido como $\lambda = \tau\bar{v}$. Es interesante estudiar el comportamiento de la ecuación (1.43) para capas muy delgadas, $a/\lambda << 1$, y para capas gruesas, $a/\lambda >> 1$. En estos límites, podemos expresar la conductividad de la siguiente forma:

$$\sigma = \sigma_0\,\frac{1}{1 + \frac{3}{8}\frac{1}{a/\lambda}} \qquad a/\lambda \gg 1, \tag{1.44}$$

$$\sigma = \sigma_0\,\frac{3}{4}\,a/\lambda\,\ln\left(\frac{1}{a/\lambda}\right) \qquad a/\lambda \ll 1. \tag{1.45}$$

En el límite de capas gruesas vemos que σ tiende a σ_0, lo que implica que la conductividad se hace independiente de la forma del conductor recuperando la ley de Ohm. Para capas muy delgadas conviene definir un camino libre efectivo, $\tilde{\lambda}$, a través de $\sigma = ne^2\tilde{\lambda}/m\bar{v}$. Siguiendo esta definición encontramos que $\tilde{\lambda} \approx (-)a\ln(a/\lambda)$. Sin embargo, intuitivamente, uno puede suponer que $\tilde{\lambda}$ es simplemente igual al espesor de la capa. Pero una fracción de los electrones emergentes de las colisiones en las superficies tienen dirección paralela al plano de las mismas y, por lo tanto, recorrerán distancias del orden del camino libre medio del material en volumen sin colisionar. La contribución de estos electrones hace que el camino libre medio sea un poco mayor que el espesor de la capa.

También es interesante considerar el caso en que una fracción p de los electrones no es dispersado en forma difusa, es decir que lo hacen en forma especular. Esto significa que los electrones dispersados especularmente mantendrán la información de su velocidad antes del choque. Entonces la función de distribución antes y después del choque en las superficies se relacionará de la siguiente manera

$$\begin{aligned} f_0 + g^+(z = 0, v_z) &= p\{f_0, g^-(-v_z, z = 0)\} + (1 - p)f_0, \\ f_0 + g^-(z = a, v_z) &= p\{f_0, g^+(-v_z, z = 0)\} + (1 - p)f_0. \end{aligned} \tag{1.46}$$

Introduciendo estas condiciones de contorno en la solución general dada en (1.40) podemos encontrar la función $F(\mathbf{v})$. A continuación mostramos directamente la conductividad en los límites de capas ultra finas y gruesas

$$\sigma = \sigma_0 \frac{1}{1+\frac{3}{8}\frac{1}{a/\lambda}(1-p)} \qquad a/\lambda \gg 1, \tag{1.47}$$

$$\sigma = \sigma_0 \frac{3}{4} a/\lambda \ln\left(\frac{1}{a/\lambda}\right)\frac{1+p}{1-p} \qquad a/\lambda \ll 1. \tag{1.48}$$

Podemos ver que para capas gruesas, cuando $p = 1$ la conductividad es la del material en volumen. En el capítulo 4 vemos que el modelo de Sondheimer, levemente modificado, es particularmente útil para modelar la conductividad eléctrica de multicapas cuyas capas magnéticas están compuestas de una aleación granular.

Como explicamos anteriormente la geometría CIP es en la cual se observó por primera vez la magnetorresistencia y también es la geometría en la que se hacen la mayoría de los experimentos debido a su fácil técnica de medición. Los valores medidos de GMR son sistemáticamente menores que los encontrados, para los mismos sistemas, en la geometría CPP. Como ejemplo, podemos citar el trabajo W.P. Pratt *et al.* [36] en el cual se mide la GMR de una multicapa Ag/Co en ambas geometrías de medición. Ellos encuentran que en CPP la GMR es de 3 a 4 veces mayor que en CIP. Intuitivamente esto se puede entender si pensamos lo siguiente: la principal fuente de dispersión es la dependiente del *espín*, por lo tanto los electrones son más dispersados cuando atraviesan cada una de las interfaces del sistema. En CPP los electrones van cruzando dichas interfaces, mientras que en CIP, el transporte transcurre esencialmente paralelo a las capas. Por lo tanto muchos de los electrones no verán las interfaces y, además, los pocos que sí lo hacen son débilmente dispersados por ellas debido al pequeño ángulo con el cual las alcanzan.

Desde el punto de vista teórico, el transporte en CIP es más difícil de modelar. Esto es debido a que la corriente eléctrica es inhomogénea. Con ésto queremos decir que mientras algunos electrones fluyen principalmente por una determinada capa, otros van cruzando de una a otra capa de forma variada dependiendo de la dispersión que sufran principalmente en las interfaces. La aleatoriedad de la dispersión en las interfaces debido a la rugosidad de las mismas hacen que las líneas de corriente no tengan un patrón definido en toda la muestra.

El primer modelo con resultados con buen acuerdo experimental lo hicieron R.E. Camley y J. Barnás [40] quienes utilizaron la ecuación semiclásica de Boltzmann en la aproximación de tiempo de relajación. Utilizaron el modelo de las dos corrientes con tiempos de relajación distintos para ambas polarizaciones y proponiendo el mismo concepto que Sondheimer con respecto al tipo de dispersión en las interfaces. La única diferencia consiste en que los electrones pueden ser no solo dispersados en la misma capa sino que también puede ser transmitidos a las capas adyacentes. El resultado más importante que encuentran es que la GMR se incrementa fuertemente cuando el espesor de las

capas es del orden del camino libre medio, tal como se ve experimentalmente.

Cuando el espesor es mucho menor que el camino libre medio, el modelo semiclásico deja de ser válido ya que los efectos de interferencia cuántica se vuelven importantes. En este límite la fórmula de Kubo fue utilizada para dar cuenta de la GMR en CIP a través de la implementación usando funciones de Green [41].

1.4.1.2. GMR en la geometría CPP

Desde el punto de vista teórico esta geometría es más fácil estudiar que CIP, pero particularmente en las multicapas magnéticas es mucho más difícil de medir. Los espesores típicos en la dirección perpendicular a las capas son del orden de los micrones y la resistividad asociada a estos espesores en un sistema metálico es del orden de la resistencia de los contactos del sistema de medición, lo que llevó a inventar sistemas de medición muy ingeniosos [36, 42] pero tecnológicamente difíciles de implementar. Sin embargo, desde el punto de vista teórico la explicación de como aparece la GMR es más intuitiva. Las líneas de corriente van atravesando sucesivamente las diferentes capas de metal conductor y metal ferromagnético y como tenemos simetría de traslación en el plano de la multicapa, estas líneas son rectas, perpendiculares a las interfaces y su distribución es homogénea en toda la muestra. Por lo tanto podemos reducir el problema a uno de transporte eléctrico en una dimensión.

Modelo de Valet-Fert o del resistor.

El modelo de Valet-Fert [10] fue el primer modelo propuesto para el transporte CPP en multicapas y está basado en la ecuación semiclásica de Boltzmann. Las ideas de este método son muy intuitivas y nos permite tener una imagen sencilla de cómo ocurre el fenómeno de GMR.

Al trabajar con multicapas magnéticas tenemos que tener en cuenta la polarización de los electrones, por lo tanto el transporte eléctrico tiene las características que mencionamos en 1.2.1.1. Particularmente en estos materiales el modelo de las dos corrientes provee una buena descripción ya que en general la longitud de difusión de *espín* es de unos cientos de nanómetros y los espesores de las capas (nuestra longitud característica) es a lo sumo de unos cientos de angstroms. Partiendo de la ecuación de Boltzmann, como vimos en la sección 1.1.2, y aprovechando nuevamente la simetría de traslación en el plano de la multicapa como en el apartado anterior (1.4.1.1) con las capas delgadas, la función distribución desarrollada a primer orden queda dependiendo de $\mathbf{v}$ y z como en (1.38). Pero como el campo eléctrico está aplicado en la dirección z al introducir (1.38) en la ecuación de Boltzmann (1.14), ésta resulta

$$\frac{\partial g^{\pm}}{\partial z}(z,\mathbf{v}) + \frac{1}{v_z}\left(\frac{1}{\tau}+\frac{1}{\tau_d}\right) g^{\pm}(z,\mathbf{v}) = \frac{1}{v_z}\frac{\partial \tilde{\mu}^{\pm}}{\partial z}(z) + \frac{\tilde{\mu}^{\pm}(z)-\tilde{\mu}^{\mp}(z)}{\tau_d}, \tag{1.49}$$

donde τ y τ_d son los tiempos de relajación y de relajación asociado a la difusión del *espín* respectivamente. $\tilde{\mu}^{\pm}(z) = \mu^{\pm} - eV(z)$ es el potencial electroquímico para cada polarización de *espín*. $\mu^{\pm}$, $V(z)$ son el potencial químico y eléctrico respectivamente. En esta ecuación es necesario introducir el concepto de potencial químico μ ya que en las interfaces ocurre el fenómeno de acumulación de *espín*[5][43]. En esta última ecuación aparece un nuevo término en el miembro de la derecha con respecto a (1.39) que da cuenta de la probabilidad de que los electrones acumulados en las interfaces cambien su polarización y provoquen un cambio en el potencial electroquímico. En la geometría CIP teníamos la ventaja de tener un campo eléctrico constante en la dirección del transporte, en cambio, en esta simetría esto no sucede y el campo eléctrico en cada capa dependerá del material de la misma. Por lo tanto el potencial electroquímico no es un dato y dependerá del régimen estacionario que alcance la multicapa. Como veremos a continuación la cantidad bien definida es la densidad de corriente **J**.

Las condiciones de contorno están dadas, entonces, por la continuidad de la densidad de corriente **J** a lo largo de la dirección del transporte. Dentro de cada una de las capas tenemos dispersión y también consideramos que se cumple la ley de Ohm en cada una de ellas, por lo tanto podemos escribir la siguiente relación constitutiva para cada capa

$$\tilde{\mu}^{\pm}(z_0) - \tilde{\mu}^{\pm}(z_0 + d) = R^{\pm} J_z^{\pm}, \tag{1.50}$$

donde $R^{\pm}$ es la resistencia por unidad de área para cada polarización de *espín*, d es el espesor de la capa y z_0 es la coordenada de una de las interfaces de la capa. Como hemos dicho anteriormente en las interfaces también ocurren procesos de dispersión que tienen asociados una resistencia macroscópica, por lo tanto expresamos la continuidad de **J** en la interfaces de la siguiente forma

$$\tilde{\mu}^{\pm}(z_0^+) - \tilde{\mu}^{\pm}(z_0^-) = r^{\pm} J_z^{\pm} \tag{1.51}$$

donde $r^{\pm}$ es la resistencia efectiva macroscópica de la interfaz que surge de considerar la dispersión electrónica debida al cambio abrupto del potencial en la interfaz, z_0^+ y z_0^- denotan coordenadas infinitesimalmente desplazadas respecto de z_0.

Desde un punto de vista fenomenológico, la corriente polarizada está dada por el cociente entre la tensión aplicada a la multicapa y la resistencia equivalente de la misma. En el caso más general podemos plantear que esta resistencia equivalente es la suma en serie de una resistividad independiente del *espín* del volumen del metal no magnético, ρ_N, de

[5]La acumulación de *espín* tiene lugar en interfaces metal paramagnético/metal magnético. En el metal no magnético la densidad de corriente no está polarizada mientras que en el metal ferro J tiene una polarización distinta de cero. Esto conduce a que en el régimen transitorio, en las interfaces, se acumule la carga excedente de una dada polarización para poder satisfacer las condiciones de la capa siguiente. En el régimen estacionario esta acumulación actuará como un nuevo potencial de dispersión que lo expresamos a través del potencial químico, μ.

otras dependientes del *espín* de las interfaces, $r^{\pm}$, y del volumen del metal ferromagnético, $\rho^{\pm}$. Las resistividades dependientes del *espín* suelen reescribirse de la siguiente forma

$$r^{\pm} = 2r_b(1 \mp \gamma) \tag{1.52}$$

$$\rho^{\pm} = 2\rho_F(1 \mp \beta) \tag{1.53}$$

donde γ y β son los llamados coeficientes de asimetría para la interfaz y para el volumen respectivamente. Estos dos coeficientes, dentro de este modelo, son característicos de los metales que componen la multicapa.

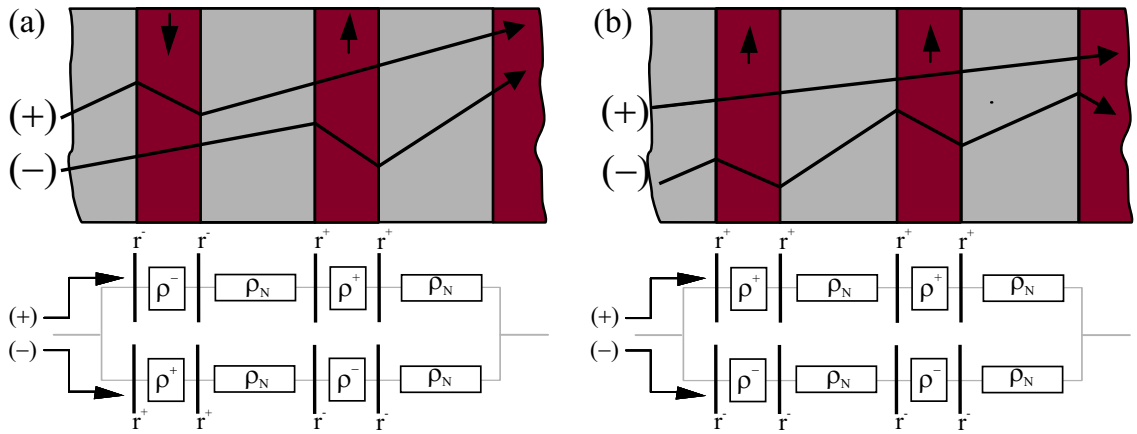

Figura 1.13: Esquema fenomenológico del modelo de las dos corrientes en la geometría CPP. (a) acoplamiento antiferromagnético y (b) acople ferro.

Si tomamos un electrón con *espín up*, al atravesar la multicapa con sus capas magnéticas acopladas antiferromagnéticamente (configuración antiparalela, *AP*), como se muestra en la figura 1.13, el electrón alternativamente pasará de ser mayoritario (+) a ser minoritario (-) y lo mismo sucederá con los electrones *down*. Entonces, para esta configuración los dos canales de conducción "verán" la misma resistencia cuando recorran dos celdas unidad. Por lo tanto, podemos calcular la resistencia total como,

$$\begin{aligned} R_{AP}^{\pm} &= N\left[2\rho_F(1 \mp \beta)t_F + 4r_b(1 \mp \gamma) + 2\rho_N t_N + 2\rho_F(1 \pm \beta)t_F + 4r_b(1 \pm \gamma)\right] \\ &= N[4\rho_F t_F + 8r_b + 2\rho_N t_N], \end{aligned} \tag{1.54}$$

donde N es la cantidad de bicapas de unidad magnética, t_N y t_F son los espesores del metal conductor y el ferromagnético respectivamente. Podemos ver que las resistencia de ambos canales son independientes de los coeficientes de asimetría, luego tienen la misma resistencia. La resistencia total, entonces, estará dada por

$$R_{AP} = \frac{R_{AP}^{+} R_{AP}^{-}}{R_{AP}^{+} + R_{AP}^{-}} \tag{1.55}$$

o lo que es equivalente

$$R_{AP} = N[2\rho_F t_F + 4r_b + \rho_N t_N]. \tag{1.56}$$

En la configuración paralela (P) los electrones con una dada polarización serán siempre mayoritarios o minoritarios. La resistencia para cada uno de los canales está dada por

$$R_P^{\pm} = N\left[4\rho_F(1\mp\beta)t_F + 8r_b(1\mp\gamma) + 2\rho_N t_N\right]. \tag{1.57}$$

Sumando en paralelo ambos canales obtenemos la resistencia total para esta configuración, R_P

$$R_P = -\frac{[2\rho_F(\beta-1)t_F + 4r_b(\gamma-1) - \rho_N t_N]\,[2\rho_F(\beta+1)t_F + 4r_b(\gamma+1) + \rho_N t_N]}{2\rho_F t_F + 4r_b + \rho_N t_N}. \tag{1.58}$$

Teniendo las expresiones para las resistencias en ambas configuraciones, estamos en condiciones de definir la razón de magnetorresistencia como

$$MR = \frac{R_P - R_{AP}}{R_{AP}} \tag{1.59}$$

$$= -\frac{4(\rho_F\beta t_F + 2r_b\gamma)^2}{(2\rho_F t_F + 4r_b + \rho_N t_N)^2}. \tag{1.60}$$

De la ecuación anterior se ve que para el efecto de GMR es esencial la diferencia entre las resistencias de los dos canales (mayoritario y minoritario). También podemos observar que no importa la relación entre los distintos parámetros, la MR siempre es negativa. Vale notar que estos resultados son válidos siempre que las capas magnéticas sean equivalentes (iguales).

El modelo de Valet y Fert no tiene en cuenta efectos de interferencia cuántica entre las distintas capas, o sea que las resistencias efectivas de cada una de ellas son independientes y se suman como resistores en serie en la forma clásica. Los efectos de interferencia son importantes cuando la longitud de coherencia de fase de los electrones, λ_c, es del orden de las longitudes características del sistema [44]. En los metales y a bajas temperaturas λ_c ronda los centenares de Angstroms. Según esto último, si las capas son de espesores menores a 100 Å tendría que verse interferencia cuántica entre las capas y el modelo del resistor perdería validez. Sin embargo, experimentalmente no sucede ésto y el modelo sigue valiendo aún para espesores menores a 100 Å. Este efecto es atribuido a que la dispersión debida a la rugosidad en las interfaces y la acumulación de *espín* es difusiva y por lo tanto los electrones de conducción pierden la memoria de su fase. Ésto hace que λ_c sea prácticamente del orden del espesor de la capa y que, por lo tanto, este modelo siga siendo válido.

En el transcurso de la tesis tomamos este modelo para tener una idea intuitiva de como es la GMR en los distintos sistemas estudiados. Pero, como dijimos en la introducción, focalizamos principalmente en la contribución de la estructura de bandas a la conductividad y este modelo no tiene en cuenta dicha contribución.

1.4.1.3. GMR inversa

En general, el efecto de GMR tiene lugar cuando al aplicar un campo magnético externo la resistencia eléctrica disminuye (GMR directa). Pero en algunas multicapas se ha visto experimentalmente que la resistencia aumenta (GMR inversa). Como vimos en esta sección si las capas magnéticas son similares, la dispersión dependiente de *espín* en capas sucesivas también lo es. Ante ésto, la única solución posible es una magnetorresistencia directa. Ahora, si las capas son diferentes, de forma tal que algunas de ellas dispersen más los electrones *up* y otras los *down*, es posible tener como solución la magnetorresistencia inversa. Se construyeron diversos sistemas donde esto sucedía. J.M. George *et al.* [45] observaron ésto en una superred Fe/Cu, en la cual se crecía una monocapa de Cr en medio de una capa de Fe cada dos capas de éste. La simple introducción de esta monocapa hace que la capa de Fe con Cr disperse más a los electrones de *espín* opuesto que la capa de Fe puro lo que provoca asimetría en las capas magnéticas responsable del efecto inverso. En el capítulo 3 estudiamos este sistema con detenimiento, enfocándonos en como la estructura de bandas se modifica con la introducción de la monocapa de Cr.

También fue posible conseguir este efecto en multicapas del tipo $Fe_{1-x}V_x$/Cu/Co/Cu [46], donde el comportamiento respecto a la dispersión de las capas de Fe era invertido aleándolas con V. Otro sistema interesante donde se encontró GMR inversa es la multicapa Co/Ru [47], en el cual todas sus capas magnéticas son Co, pero con distinta rugosidad en la interfaz. Entonces, aunque la dispersión en el volumen en todas las capas es la misma, no lo es en las interfaces debido a la rugosidad, y de aquí proviene la GMR inversa.

1.5. Aleaciones granulares

1.5.1. Comportamiento magnético en nanopartículas

1.5.1.1. Comportamiento monodominio

Cuando las partículas magnéticas son lo suficientemente pequeñas, de unos pocos cientos de angstroms, las respuestas de éstas a una excitación magnética son diferentes a las ya conocidas en materiales magnéticos macroscópicos[6].

La primera propiedad que se estudió fue la saturación magnética. Kittel *et al.* [49] estudiaron esta propiedad en dos muestras con agregados de Ni de diferentes diámetros. En general, en las partículas ferromagnéticas macroscópicas, las que forman dominios, el campo magnético necesario para alinear todos los dominios y alcanzar la saturación tiene que ser por lo menos igual al campo demagnetizante ya que éste es el responsable de que se formen dichos dominios. Para las partículas más grandes encontraron que el campo de

[6]Una explicación detallada de las propiedades magnéticas de películas delgadas y partículas pequeñas se puede encontrar en la referencia [48].

saturación era, efectivamente, del orden del campo demagnetizante; sin embargo en las más pequeñas el campo necesario era cuatro veces más chico. Ésto estaba significando que el campo demagnetizante no estaba jugando ningún rol en la dinámica de orientación a lo largo de la dirección del campo aplicado de los espines. Los autores propusieron que este efecto era debido a que la partícula en su totalidad era un único dominio, por lo tanto al aplicarle un campo todos sus espines responden de forma similar. Es más, si la anisotropía de las partículas fuese cero, bastaría con un campo magnético infinitesimal para saturar la magnetización de las muestras en la dirección del campo.

Otra de las propiedades estudiadas fue la coercitividad. El campo coercitivo es el campo necesario para que un material magnético previamente saturado vuelva a tener magnetización nula. A partir del tamaño en que una partícula se vuelve monodominio y a medida que su diámetro es menor, la coercitividad va disminuyendo. Ésto es debido a que las fluctuaciones térmicas provocan una demagnetización espontánea. Para un cierto diámetro crítico la coercitividad se vuelve nula. A partir de este diámetro las partículas se denominan superparamagnéticas. Este nombre se debe ya que la curva de histéresis de las mismas es como la de un paramagneto con un momento de varios órdenes de magnitud.

1.5.1.2. Superparamagnetismo

Consideremos un conjunto de partículas monodominio uniaxiales, cuya densidad de energía debido a esta anisotropía es

$$E = K \sin^2 \theta. \tag{1.61}$$

K es la constante de anisotropía, y θ el ángulo entre el momento magnético de la partícula y el eje preferencial de la misma. Si el volumen de cada partícula es V, entonces la energía de barrera, ΔE, que ésta tiene que superar para revertir su magnetización es KV. Si las partículas son lo suficientemente pequeñas, entonces el producto KV es lo suficientemente chico para que las fluctuaciones térmicas puedan provocar una inversión espontánea de la magnetización de un eje preferencial a otro. Por otro lado, el momento magnético de cada partícula será $\mu = M_s V$, donde M_s es la magnetización de saturación del material de las partículas. Ahora si se aplica un campo magnético, los momentos de cada partícula tenderán a alinearse con el campo, mientras que la temperatura favorecerá que se desordenen. Este comportamiento es el de un paramagneto clásico, pero con la diferencia que su momento magnético es miles de veces más grande.

Si $K = 0$, las partículas no tienen anisotropía, los momentos de cada una de ellas están alineados en cualquier dirección. Entonces la magnetización está dada por

$$M = n\mu \mathcal{L}(x), \tag{1.62}$$

donde M es la magnetización de la muestra, n es el número de partículas por unidad de volumen, $\mathcal{L}(x)$ es la función de Langevin y $x = \mu H / KT$. El comportamiento superparamagnético se puede comprobar viendo que se cumple lo siguiente:

- Las curvas de magnetización a diferentes temperaturas se superponen cuando M es graficada en función de H/T.
- La remanencia y coercitividad son cero, por lo tanto no hay histéresis.

Experimentalmente se ve que para partículas superparamagnéticas de cierto tamaño, por debajo de una temperatura crítica, la energía térmica no es suficiente para que las mismas alcancen el equilibrio térmico. En estas circunstancias, aparece histéresis y las partículas dejan de ser superparamagnéticas. Para estudiar la magnetización, necesitamos ver como es alcanzado el equilibrio térmico . Para estudiar ésto supongamos que disponemos de una muestra saturada magnéticamente compuesta de nanopartículas. Si fijamos $H = 0$ la magnetización empieza a decrecer. La tasa de decrecimiento en un dado tiempo t será proporcional a la magnetización en ese instante y al factor de Boltzmann $e^{-KV/kT}$, que pesa la probabilidad de que las fluctuaciones térmicas alcancen el valor de KV necesario para superar la energía de anisotropía. Entonces

$$-\frac{dM(t)}{dt} = f_0\, M(t)\, e^{-KV/kT} = \frac{M(t)}{\tau}, \tag{1.63}$$

donde f_0 es un factor de proporcionalidad llamado factor de frecuencia y, generalmente, se le asigna un valor de 10^9 s^{-1}, τ es un tiempo de relajación asociado con este proceso. Para obtener la magnetización remanente sólo se necesita integrar la ecuación anterior, entonces

$$M(t) = M_s e^{-t/\tau}, \tag{1.64}$$

donde

$$\frac{1}{\tau} = f_0 e^{-KV/kT}.$$

Se puede apreciar que τ depende exponencialmente de V y de T. Debido a la rápida variación de τ respecto de V para pequeños cambios en el diámetro de las partículas, el tiempo de relajación puede modificarse en varios órdenes de magnitud. Por lo tanto no es posible definir un tiempo característico para este proceso. Que un sistema se vea en su estado relajado o no depende del tiempo característico de medición. En particular, para las mediciones de magnetización se toma un tiempo característico de 100 s. Esto nos lleva a encontrar un volumen máximo, V_p, para el cual un conjunto de partículas se comportará de forma superparamagnética. Sabiendo que

$$10^2 \;=\; 10^9\, e^{-KV_p/kT} \tag{1.65}$$

y que por ende la energía de barrera KV_p es $25kT$. Encontramos que

$$V_p = \frac{25kT}{K}. \tag{1.66}$$

Otra forma es analizar cuál es la temperatura máxima a la cual las partículas, para el mismo tiempo característico de 100 s, no responden al campo como superparamagnéticas. Al estado en el que esto ocurre se lo suele llamar bloqueado. Con solo invertir la ecuación anterior obtenemos dicha temperatura máxima,

$$T_B = \frac{KV}{25k}, \tag{1.67}$$

a T_B se la denomina temperatura de bloqueo. En la figura 1.14 mostramos el comportamiento de partículas monodominio en función de la temperatura, del tamaño y del tiempo característico de medición.

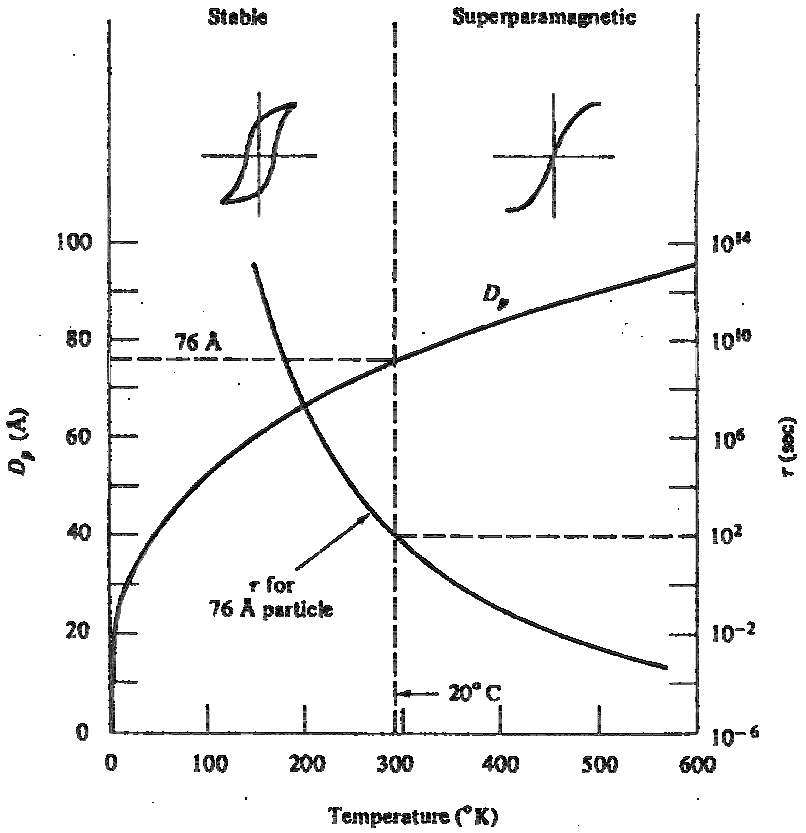

Figura 1.14: Comportamiento de las partículas monodominio en función de la temperatura, del diámetro y del tiempo característico de medición.

1.5.2. GMR en aleaciones granulares

Desde el punto de vista del estudio de las propiedades de transporte, las aleaciones granulares, son más difíciles de estudiar que las multicapas magnéticas. La disposición al azar, la distribución de volumen y sobre todo la variabilidad de las formas de los agregados magnéticos, hacen que se dificulte mucho el cálculo de estas propiedades. Por lo tanto es necesario hacer aproximaciones crudas para poder modelar este tipo de sistemas.

El primer modelo de transporte eléctrico para las aleaciones granulares magnéticas fue desarrollado por Z. Zhang y P. Levy [11]. Ellos consideraron las dispersión electrónica dependiente del *espín* en las interfaces de los agregados y en la matriz conductora. El formalismo es el mismo que el utilizado para multicapas en la geometría CPP, por lo tanto se considera que los centros dispersores, ya sea interfaces o volumen, aportan una resistividad efectiva. Escribiendo la conductividad, como en el modelo de Drude,

$$\sigma = \frac{ne^2}{2m_e}\sum_s \tau^s, \tag{1.68}$$

la cual es similar a la ecuación (1.6) pero teniendo en cuenta ambas polarizaciones de *espín*. Todos los efectos de dispersión están tenidos en cuenta en el tiempo de relajación. La estructura electrónica no es tenida en cuenta en (1.68), por lo tanto no se consideran dentro de este modelo los efectos de los agregados sobre la estructura de bandas del entorno. Podemos expresar el potencial visto por los electrones de la siguiente forma

$$\begin{aligned} V^s(\mathbf{r}) = &\sum_i V_i^{ind}\delta(\mathbf{r}-R_i) + \sum_\alpha\sum_{i\in\alpha} V_i^{dep}(1+p_b\,\hat{\sigma}^s.\hat{m}_i)\delta(\mathbf{r}-\mathbf{R}_i^\alpha) \\ &+\sum_\alpha\sum_{s\in\alpha} V_s(1+p_s\,\hat{\sigma}^s.\hat{m}_s)\delta(\mathbf{r}-\mathbf{R}_s^\alpha), \end{aligned} \tag{1.69}$$

donde $\mathbf{R}_i$, $\mathbf{R}_i^\alpha$ y $\mathbf{R}_s^\alpha$ son las posiciones de las impurezas en la matriz, dentro de los agregados y en la superficie de los mismos respectivamente. V_i^{ind}, V_i^{dep} y V_s son los potenciales independiente del *espín* en la matriz no magnética, dependientes del *espín* dentro de las partículas y en las superficies de las mismas respectivamente. p_b y p_s son los cocientes entre el potencial dependiente del *espín* y el independiente para los agregados y las interfaces respectivamente. $\hat{\sigma}^s$ es la matriz de Pauli para la proyección s. $\hat{m}_i^\alpha$ y $\hat{m}_s^\alpha$ son la dirección de magnetización de cada impureza dentro y en la superficie de los agregados respectivamente.

Por otro lado, cada dispersión dentro del material tiene un camino libre medio asociado, ya que cada una de ellas puede tener una escala de interacción distinta respecto a las otras. A estos caminos libres medios los podemos definir de la siguiente manera

$$\lambda_j = \frac{\varepsilon_F/k_F}{(1/N_j)\sum_{i\in j}|V_i^{(j)}|^2 N(\varepsilon_F)}, \tag{1.70}$$

donde j etiqueta la matriz, los agregados y la superficie que son las tres zonas donde pueden dispersarse los electrones. N_j es la cantidad de sitios para cada una de estas zonas. Esta definición está de acuerdo con la que hemos propuesto con anterioridad, ya que la suma $\sum_{i\in j}|V_i^{(j)}|^2 N(\varepsilon_F)$ tiene en cuenta la probabilidad de que un electrón en un estado determinado transicione a cualquier otro estado debido a la interacción con el potencial perturbador de la interfaz y de los agregados y debido, también, a la densidad de estados electrónicos en el nivel de Fermi [11].

Si recordamos la relación entre λ y τ dada en la expresión (1.27) y aplicando la regla de oro de Fermi [50] podemos obtener la siguiente expresión

$$\frac{1}{\tau^s} = \frac{\varepsilon_F}{k_F}(\xi_0 + \hat{\sigma}^s \xi_1), \tag{1.71}$$

donde

$$\begin{aligned}\xi_0 =& \frac{1-c}{\lambda_{ind}} + \frac{c}{\lambda_{agr}}(1+p_b^2) \\ &+ \frac{(36\pi)^{1/3} c(1+p_s^2)}{\lambda_s/a_0} \frac{\int dV_\alpha\, V_\alpha^{2/3} f(V_c)}{\int dV_\alpha\, V_\alpha f(V_\alpha)}\end{aligned} \tag{1.72}$$

y

$$\begin{aligned}\xi_1 =& \frac{2cp_b}{\lambda_{dep}} \frac{\int dV_\alpha\, V_\alpha f(V_\alpha)\, m_\alpha(V_\alpha)}{\int dV_\alpha\, V_\alpha f(V_\alpha)} \\ &+ \frac{2(36\pi)^{1/3} cp_s}{\lambda_s/a_0} \frac{\int dV_\alpha\, V_\alpha^{2/3} f(V_\alpha) m_\alpha(V_\alpha)}{\int dV_\alpha\, V_\alpha f(V_\alpha)}.\end{aligned} \tag{1.73}$$

Para llegar a esta expresión estamos asumiendo que los agregados son esféricos. c es la concentración de partículas, $f(V_\alpha)$ es la función distribución de volúmenes y m_α es la magnetización de las partículas con V_α. Entonces, la conductividad está dada por

$$\sigma = \frac{ne^2 k_F}{m_e \varepsilon_F} \frac{\xi_0}{\xi_0^2 - \xi_1^2}, \tag{1.74}$$

donde podemos ver que la conductividad es mínima cuando $\xi_1 = 0$. De la ecuación (1.73) vemos que esto sucede cuando los momentos magnéticos de los agregados están orientados al azar que es lo que se espera experimentalmente. La magnetorresistencia está dada por

$$\begin{aligned}MR(H) &= \frac{\rho(H) - \rho(0)}{\rho(0)} \\ &= -\left(\frac{\xi_1}{\xi_0}\right)^2\end{aligned} \tag{1.75}$$

Supongamos ahora que todos las partículas magnéticas tienen el mismo volumen, o sea $f(V_\alpha) = \delta(V_\alpha - V_0)$ entonces las ecuaciones (1.72) y (1.73) las podemos escribir como

$$\xi_0(V_0) = \frac{1-c}{\lambda_{ind}} + \frac{c}{\lambda_{dep}}(1+p_b^2) + \frac{3c(1+p_s^2)}{\lambda_{sup}/a_0}\frac{1}{r_0} \tag{1.76}$$

y

$$\xi_1(V_0) = \Big(\frac{2cp_b}{\lambda_{dep}} + \frac{6cp_s}{\lambda_{sup}}\frac{1}{r_0}\Big)m(V_0) = \gamma(V_0)m(V_0) \tag{1.77}$$

respectivamente. Para este caso la magnetorresistencia nos queda

$$MR = \frac{\gamma^2(V_0)}{\xi_0^2(V_0)}m^2(V_0). \tag{1.78}$$

De esta última expresión vemos que la magnetorresistencia es proporcional al valor de la magnetización al cuadrado. Esta dependencia con la magnetización fue obtenida con anterioridad por J.I. Gittleman *et al.* [2] pero argumentando que la MR es proporcional al producto escalar entre los momentos magnéticos de un agregado con sus primeros vecinos.

En general las curvas experimentales muestran que la GMR tiene un comportamiento acorde con el mostrado en la ecuación (1.78) con respecto a la dependencia de ésta con el tamaño de los agregados y con la magnetización del sistema. Pero estudios detallados de la GMR en función del tamaño [8, 51] mostraron que para un cierto diámetro ésta alcanza un valor máximo, hecho que la teoría expuesta anteriormente no puede explicar, ya que predice un decrecimiento monótono de la GMR con el tamaño de los agregados. Trabajos teóricos posteriores, mostraron que la hipótesis de Zhang y Levy fallaba cuando los agregados eran lo suficientemente pequeños. Se observó que, dependiendo del tamaño de los agregados, el comportamiento de la GMR en estos sistemas es una mezcla del comportamiento de ésta en las geometrías CIP y CPP [52, 53, 54]. La explicación surge de que, desde el punto de vista semiclásico, para diámetros suficientemente pequeños las líneas de corriente esquivan a los agregados, por lo tanto las resistividad es menor que la calculada por Zhang y Levy y los electrones sufren menos la interacción dependiente del *espín* en las interfaces.

En el capítulo 4 usamos este modelo para ajustar las curvas experimentales y estimar los tamaños de los agregados magnéticos. También veremos que por debajo de cierta concentración este modelo falla como explicamos en el párrafo siguiente.

Capítulo 2

Técnicas de cálculo y experimentales

2.1. Cálculo de la estructura electrónica

En esta sección explicaremos los distintos métodos utilizados para obtener la estructura electrónica de los sistemas en estudio, para lo cual comenzaremos planteando el *Hamiltoniano* exacto de nuestro problema

$$\mathcal{H} = \sum_i \frac{p_i^2}{2m} + \sum_\alpha \frac{p_\alpha^2}{2M} + \frac{1}{2}\sum_{\alpha,\beta} \frac{z_\alpha z_\beta e^2}{|\mathbf{R}_\beta - \mathbf{R}_\alpha|} - \sum_{i,\alpha} \frac{z_\alpha e^2}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{R}_\alpha|} + \frac{1}{2}\sum_{i,j} \frac{e^2}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|}, \tag{2.1}$$

donde i, j etiquetan a los electrones del sistema y α, β los núcleos. $\mathbf{r}_{i(j)}$ son las coordenadas del $i(j)$-ésimo electrón y $\mathbf{R}_{\alpha(\beta)}$ las coordenadas del $\alpha(\beta)$-ésimo núcleo, $z_{\alpha(\beta)}$ es el número atómico del $\alpha(\beta)$-ésimo núcleo. Los dos primeros términos del lado derecho de la Ecuación (2.1) dan cuenta de las energías cinéticas de electrones y núcleos respectivamente, los últimos de la interacción núcleo-núcleo, núcleo-electrón, electrón-electrón respectivamente. La resolución de este *Hamiltoniano* es un problema de muchos cuerpos que no puede ser abordado exactamente. Los métodos para la resolución utilizan distintas aproximaciones para simplificarlo. En esta tesis se utilizaron dos métodos, uno parametrizado basado en la aproximación de enlaces fuertes (*tight binding*) y otro de primeros principios basado en la teoría de la funcional densidad. A continuación detallaremos las principales características de estos dos métodos

2.1.1. Métodos de primeros principios

2.1.1.1. Teoría de la funcional de la densidad

La teoría de la funcional densidad (DFT) está basada en el teorema de H. Hohenberg y W. Kohn [55]. Este teorema demuestra que la energía total de un sistema de electrones interactuantes inmerso en un potencial externo (que en nuestro caso será el potencial de

Coulomb en un sólido debido a los núcleos) es una funcional de la densidad electrónica del estado fundamental

$$E = E[\rho_\uparrow, \rho_\downarrow], \tag{2.2}$$

cuya expresión es desconocida. Por lo tanto la utilidad de DFT depende del uso de una funcional que sea buena aproximación para el estado fundamental y de un esquema de cálculo adecuado.

Una forma conveniente de expresar (2.2) es en función de la energía total de Hartree más otra funcional desconocida llamada funcional de correlación e intercambio $E_{xc}[\rho_\uparrow, \rho_\downarrow]$, la cual suponemos pequeña con respecto al término de Hartree. Entonces la expresión completa para la energía la escribimos como

$$E[\rho_\uparrow, \rho_\downarrow] = T_s[\rho_\uparrow, \rho_\downarrow] + E_{ei}[\rho_\uparrow, \rho_\downarrow] + E_H[\rho_\uparrow, \rho_\downarrow] + E_{ii}[\rho_\uparrow, \rho_\downarrow] + E_{xc}[\rho_\uparrow, \rho_\downarrow], \tag{2.3}$$

donde $T_s[\rho_\uparrow, \rho_\downarrow]$ es la energía cinética de un gas de electrones no interactuantes, $E_{ei}[\rho_\uparrow, \rho_\downarrow]$ es la interacción de Coulomb entre los electrones y núcleos, $E_{ii}[\rho_\uparrow, \rho_\downarrow]$ surge de la interacción entre núcleos y $E_H[\rho_\uparrow, \rho_\downarrow]$ es la componente de Hartree de la interacción electrón-electrón y la definimos como

$$E_H[\rho_\uparrow, \rho_\downarrow] = \frac{e^2}{2} \int d\mathbf{r} d\mathbf{r}' \frac{\left[\rho_\uparrow(\mathbf{r}) + \rho_\downarrow(\mathbf{r})\right] \left[\rho_\uparrow(\mathbf{r}') + \rho_\downarrow(\mathbf{r}')\right]}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|}. \tag{2.4}$$

El término de intercambio y correlación, $E_{xc}[\rho_\uparrow, \rho_\downarrow]$, que se usa en esta tesis es el de la aproximación de densidad local de *espín* (LSDA) propuesta originalmente por Slater [56]. En esta aproximación podemos escribir

$$E_{xc}[\rho_\uparrow, \rho_\downarrow] = \int d\mathbf{r}' \left[\rho_\uparrow(\mathbf{r}') + \rho_\downarrow(\mathbf{r}')\right] \varepsilon_{xc} \left[\rho_\uparrow(\mathbf{r}') + \rho_\downarrow(\mathbf{r}')\right], \tag{2.5}$$

aquí la función $\varepsilon_{xc}(\rho_\uparrow, \rho_\downarrow)$ es aproximada por una función local de la densidad que reproduce la energía de un gas uniforme de electrones en cada sitio $\mathbf{r}'$.

W. Kohn y L.J. Sham [57] propusieron un esquema de cálculo que permite implementar en forma concreta la teoría. La idea principal subyacente es escribir la densidad electrónica total como la suma de densidades de partículas independientes. Entonces, la expresión correcta para la densidad está dada por la solución autoconsistente de un sistema de ecuaciones de partículas independientes que tienen la forma de la ecuación de Schrödinger para un electrón. Estas ecuaciones son conocidas como las ecuaciones de Kohn-Sham (KS) y se expresan de la siguiente forma

$$\left[T + V_{ei}(\mathbf{r}) + V_H(\mathbf{r}) + V_{xc,\sigma}(\mathbf{r})\right] \varphi_{i\sigma}(\mathbf{r}) = \varepsilon_i \varphi_{i\sigma}(\mathbf{r}). \tag{2.6}$$

Estas ecuaciones se relacionan con la densidad a través de

$$\rho(\mathbf{r}) = \sum_{\substack{orb. \\ ocup.}} \varphi^*_{i\sigma}(\mathbf{r}) \varphi_{i\sigma}(\mathbf{r}), \tag{2.7}$$

donde el último orbital ocupado está dado por el número de electrones del sistema. En la ecuación (2.6) $\varphi_{i\sigma}(\mathbf{r})$ son los orbitales de partícula independiente, conocidos como orbitales de Kohn-Sham, T es el operador energía cinética, V_{ei} es el potencial de Coulomb generado por los núcleos, V_H es el potencial de Hartree y $V_{xc,\sigma}$ es el potencial de correlación e intercambio. V_H y $V_{xc,\sigma}$ están definidos en función de ρ como

$$V_H = e^2 \int d\mathbf{r}' \frac{\rho_\uparrow(\mathbf{r}) + \rho_\downarrow(\mathbf{r})}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|}, V_{xc,\sigma} = \frac{\delta E_{xc}[\rho_\uparrow, \rho_\downarrow]}{\delta \rho_\sigma(\mathbf{r})}. \tag{2.8}$$

El problema de resolver la ecuación de Schrödinger de muchos cuerpos pasa a ser en DFT equivalente a encontrar en forma autoconsistente la solución de una serie de ecuaciones de partículas independientes. Si tenemos en cuenta que nosotros utilizaremos este método para resolver la estructura electrónica de sistemas periódicos, también podemos utilizar todas las simplificaciones que provee el teorema de Bloch. La base de funciones que se utiliza para resolver las ecuaciones de Kohn-Sham define el método de cálculo. Una de las bases más utilizadas es la de ondas planas. Esto es así porque éstas son ideales para describir a los electrones casi-libres. Los electrones de valencia, que son los electrones cuya energía está cerca del nivel de Fermi y que están más alejados de los núcleos, estarán bien representados por combinaciones lineales de estas ondas planas. Sin embargo, los átomos también están compuestos por los electrones internos, que están cerca de los núcleos y que interactúan muy fuertemente con ellos a través de la fuerza de Coulomb. Pero estos electrones no participan de las propiedades física y químicas relacionadas con el nivel de Fermi.

Las funciones de onda de los electrones internos tienen muchas oscilaciones, por lo tanto para expandir estas funciones en ondas planas se necesita una base muy grande y desde el punto de vista del cálculo, demandaría mucho tiempo computacional. Para solucionar ésto se utilizan predominantemente dos métodos: el de pseudopotenciales y el de ondas planas aumentadas[1]. En el método de pseudopotenciales se reemplaza el potencial fuerte atractivo cerca del núcleo por un pseudopotencial de tal forma que a partir de una distancia dada del núcleo coincida con el potencial real. Este pseudopotencial está diseñado para que las funciones de onda cerca del núcleo varíen de forma suave y puedan ser expandidas con un número pequeño de ondas planas. El método de ondas planas aumentadas es el que usamos en esta tesis y lo explicamos con más detalle a continuación.

2.1.1.2. Método de ondas planas aumentadas

Una forma de simplificar la estructura electrónica de un sólido es separarlo en dos zonas [58]. Una zona esférica, usualmente llamada *muffin tin*, que rodeará a cada uno de los átomos hasta una cierta distancia del núcleo, y otra zona intersticial como se indica

[1] Una revisión completa de estos métodos se puede encontrar en la referencia [31].

en la figura 2.1. En el *muffin tin* se supone que las funciones de onda se comportan como soluciones atómicas, mientras que en la zona intersticial, como el potencial es mucho más suave, es conveniente utilizar una base de ondas planas. Entonces la base de las funciones de ondas que describirán el sólido será

$$\varphi(\mathbf{r}) = \begin{cases} \frac{1}{\sqrt{\Omega}} \sum_{\mathbf{G}} c_{\mathbf{G}} e^{i(\mathbf{G}+\mathbf{k})\mathbf{r}} & \mathbf{r} \in \text{Intersticio} \\ \sum_{lm} A_{lm} u_l(\mathbf{r}) Y_{lm}(\mathbf{r}) & \mathbf{r} \in \textit{Muffin tin} \end{cases} \tag{2.9}$$

donde Ω es el volumen de la celda, Y_{lm} son los armónicos esféricos y u_l son las soluciones de la siguiente ecuación diferencial

$$\left[-\frac{d^2}{d\mathbf{r}^2} + \frac{l(l+1)}{r^2} + V(\mathbf{r}) - E \right] \mathbf{r}\, u_l(\mathbf{r}) = 0, \tag{2.10}$$

c_G y A_{lm} son coeficientes de la expansión, $\mathbf{G}$ denota un vector de la red recíproca y E es la energía del estado considerado. Los A_{lm} se eligen de tal forma de unir las dos soluciones de $\varphi(\mathbf{r})$ en el borde de la esfera. Este es el método denominado APW (*Augmented Planes Waves*) y tiene la desventaja de que las funciones de onda dentro de la esfera son solución de la ecuación de Schrödinger sólo para la energía E del estado considerado y encontrar las soluciones, o sea resolver las ecuaciones no lineales en E, es computacionalmente muy costoso.

Figura 2.1: Zonas en la que se divide el sólido para utilizar los métodos de ondas planas aumentadas.

El método LAPW (*Linearized Augmented Plane Waves*), que es una derivación del APW, tiene como funciones base dentro de la esfera a una combinación lineal de funciones radiales y sus derivadas con respecto a la energía. En la zona intersticial la base es la

misma que en el método APW, o sea ondas planas. En este caso las funciones de onda se expresan de la siguiente manera

$$\varphi(\mathbf{r}) = \begin{cases} \frac{1}{\sqrt{\Omega}} \sum_{\mathbf{G}} c_{\mathbf{G}} e^{i(\mathbf{G}+\mathbf{k})\mathbf{r}} & \mathbf{r} \in \text{Intersticio} \\ \sum_{lm} \left[A_{lm} u_l(\mathbf{r},\varepsilon) + B_{lm} \frac{du_l(\mathbf{r},\varepsilon)}{d\mathbf{r}} \right] Y_{lm}(\mathbf{r}) & \mathbf{r} \in \textit{Muffin tin} \end{cases} \tag{2.11}$$

donde u_l, en este caso, depende de un parámetro ε que se relaciona con el parámetro E del método APW de la siguiente manera

$$u_l(\mathbf{r},\varepsilon) = u_l(\mathbf{r}) + (\varepsilon - E)\frac{du_l(\mathbf{r})}{d\mathbf{r}} + O\left[(\varepsilon - E)^2\right]. \tag{2.12}$$

Este nuevo parámetro ε permite linealizar la ecuación de u_l y encontrar la solución es mucho más fácil computacionalmente. Finalmente, se debe resolver un sistema de ecuaciones lineales en E en forma autoconsistente. Normalmente se denomina LAPW al método que utiliza solamente las componentes esféricas del potencial y FP-LAPW (FP significa *Full Potential*) al método que utiliza también las no-esféricas.

El código utilizado en parte de esta tesis es el WIEN97 [59] que es una implementación del método arriba presentado. En el apéndice B mostramos las principales características de este código.

2.1.2. Método de Enlaces Fuertes

En este apartado veremos qué simplificaciones podemos hacerle al *Hamiltoniano* dado en la ecuación (2.1) para poder resolverlo en la aproximación de enlaces fuertes.

Nosotros calculamos la estructura electrónica a temperatura cero, por lo tanto los núcleos están fijos en su posición de equilibrio. Podemos despreciar la energía cinética de estos últimos. El término de repulsión *coulombiana* entre núcleos es en este caso una constante y no lo tenemos en cuenta. El *Hamiltoniano* se reduce a

$$\mathcal{H} = \sum_i \frac{p_i^2}{2m} + \sum_\alpha \frac{p_\alpha^2}{2M} - \sum_{i,\alpha} \frac{z_\alpha e^2}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{R}_\alpha|} + \frac{1}{2}\sum_{i,j} \frac{e^2}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|}, \tag{2.13}$$

$\mathcal{H}$ se puede simplificar aún más si se tiene en cuenta que las capas interiores del átomo están fuertemente ligadas al núcleo y que están llenas. Las funciones de onda de estos electrones prácticamente no difieren de las correspondientes al átomo aislado y tienen un efecto despreciable en las propiedades electrónicas y magnéticas que están determinadas por los electrones de las capas externas como mencionamos anteriormente. Teniendo en cuenta ésto se llega a

$$\mathcal{H} = \sum_i \frac{p_i^2}{2m} + \sum_{i,\gamma} V_\gamma(\mathbf{r}_i - \mathbf{R}_\gamma) + \frac{1}{2}\sum_{i,j} \frac{e^2}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|}, \tag{2.14}$$

donde los subíndices i, j se refieren únicamente a los electrones de las capas externas, llamados electrones de valencia y $V_\gamma(\mathbf{r}_i\text{-}\mathbf{R}_\gamma)$ es el potencial efectivo que siente el i-ésimo electrón debido al carozo positivo situado en la posición $\mathbf{R}_\gamma$ e incluye el apantallamiento de los núcleos por las capas electrónicas internas. El tercer término corresponde a la interacción electrón-electrón de valencia.

Los metales de transición se caracterizan por tener la banda de carácter d semillena y una ocupación del orden de 1,4 electrones por átomo en la banda sp. La interacción entre orbitales s y p de átomos vecinos (que son bastante más extendidos que los d) mantiene a los átomos lo suficientemente apartados como para que el solapamiento de los electrones d sea pequeño. Por lo tanto, la banda d es angosta y estos electrones, que son los responsables de casi todas las propiedades de los metales de transición, conservan algunas características atómicas. Esto permite simplificar aún más el problema: explotando la localización de las funciones de onda se pueden despreciar las interacciones entre los electrones y de ellos con los núcleos situados a una distancia mayor que algún valor R_0 y utilizar como base a funciones de onda atómicas para resolver el problema. Debido al apantallamiento en los sólidos de metales de transición, la interacción electrón-electrón se puede considerar en campo medio y el problema se transforma en uno de un electrón. Estas dos aproximaciones constituyen el modelo conocido como método de enlaces fuertes (*tight binding*). El efecto del magnetismo puede obtenerse en esta aproximación agregando al *Hamiltoniano* modelo de un electrón un término, con un parámetro de intercambio $J_{i\mu\nu}$ (i es el índice del sitio y μ, ν de los orbitales). En este trabajo sólo J_{idd} es distinto de cero. Para dar cuenta de transferencias de carga entre átomos y entre orbitales de un mismo átomo se agregan términos tipo de Hubbard con parámetros $\mathrm{U}_{i\mu\nu}$. Ambos tipos de parámetros $U_{i\mu\nu}$ y $J_{i\mu\nu}$ pueden pensarse como integrales atómicas de un centro (pero de dos electrones) renormalizadas en el sólido por el apantallamiento debido a los electrones del sistema.

Teniendo en cuenta todas las aproximaciones expuestas y pasando al espacio recíproco, nos queda para cada vector $\mathbf{k}$ del mismo un sistema de ecuaciones a resolver de la forma

$$\sum_{i'\mu'} \left[\sum_{\mathbf{R}/|R|<R_0} \mathrm{e}^{\mathrm{i}\mathbf{k}.\mathbf{R}} t_{i\mu,i'\mu'} + \left\{ \sum_{\nu} \left(U_{i\mu\nu}\eta_{i\nu} - \sigma\frac{J_{i\mu\nu}}{2} m_{i\nu} \right) - E^{\alpha}_{\sigma}(\mathbf{k}) \right\} \delta_{ii'}\delta_{\mu\mu'} \right] C^{\alpha}_{i\mu\sigma}(\mathbf{k}) = 0, \tag{2.15}$$

donde $t_{i\mu,i'\mu'}$ es la probabilidad de salto entre sitios i e i' y orbitales μ y μ'; E^{α}_{σ} es el α-ésimo autovalor con *espín* σ (+1:*up* y -1:*down*); $m_{i\nu}$ es el momento magnético en unidades de μ_B, $C^{\alpha}_{i\mu\sigma}$ son los coeficientes del α-ésimo autovector de *espín* σ. Los elementos diagonales del *Hamiltoniano* que llamaremos $\varepsilon_{i\mu\sigma}$, corresponden a las energías de sitio de los distintos orbitales y están dados por

$$\varepsilon_{i\mu\sigma} = t_{i\mu i\mu} + \sum_{\nu} U_{i\mu\nu}\eta_{i\nu} - \sigma\frac{J_{i\mu\nu}}{2} m_{i\nu}. \tag{2.16}$$

Si tomamos como energías de sitio de referencia $\varepsilon^0_{i\mu}$ a las energías $\varepsilon_{i\mu\sigma}$ correspondientes a $\eta_{i\mu} = \eta^0_{i\mu}$ y $m_{i\mu} = 0$, donde $\eta^0_{i\mu}$ son las ocupaciones electrónicas del material puro, podemos expresar las energías de sitio como

$$\varepsilon_{i\mu\sigma} = \varepsilon^0_{i\mu\sigma} + \sum_{\nu} U_{i\mu\nu}\Delta\eta_{i\nu} - \sigma\frac{J_{i\mu\nu}}{2}m_{i\nu}, \tag{2.17}$$

$$\Delta\eta = \eta_{i\nu} - \eta^0_{i\nu}. \tag{2.18}$$

Para un dado barrido en $\mathbf{k}$, este sistema de ecuaciones se resuelve iterativamente en forma autoconsistente. En nuestro caso $t_{i\mu,i'\mu'}$, $U_{i\mu\nu}$ y $J_{i\mu nu}$ son parámetros ajustados a las bandas de volumen. En el apéndice C describimos cómo se determinan los parámetros y cuáles son los utilizados en esta tesis.

2.2. Cálculo de la contribución de la estructura de bandas a la conductividad

Los elementos del tensor conductividad que debemos calcular vienen dados por la expresión (1.25):

$$\sigma_{ij} = \frac{-e^2}{4\pi^3}\iint dS_F\ \tau(\mathbf{k})\, v_i(\mathbf{k})\, v_j(\mathbf{k})\frac{1}{|\nabla_{\mathbf{k}}\varepsilon|}. \tag{2.19}$$

En particular necesitamos tener un método numérico eficiente para evaluar la integral sobre la superficie de Fermi. En esta tesis utilizamos dos métodos para hacer esto: el método de la áreas orientadas y el de los tetraedros. El primero tiene la ventaja de que solamente necesitamos calcular la proyección de la superficie de Fermi en el plano perpendicular al transporte pero, por otro lado, se necesita un barrido en el espacio $\mathbf{k}$ más denso para alcanzar la convergencia que con el método de los tetraedros. El método de los tetraedros utiliza una interpolación lineal, lo que reduce la cantidad de puntos $\mathbf{k}$ en el barrido necesario para encontrar la superficie de Fermi.

2.2.1. Método de las áreas orientadas

Recordemos la expresión (1.26):

$$\sigma_{ii} = \frac{-e^2}{4\pi^3} \iint dS_F \; \tau(\mathbf{k}) \; v_i(\mathbf{k}) v_i(\mathbf{k}) \frac{1}{|\nabla_{\mathbf{k}}\varepsilon|}. \tag{2.20}$$

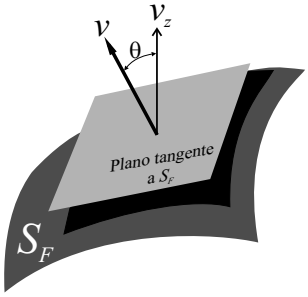

Figura 2.2: Superficie de Fermi y el plano tangente en un punto a dicha superficie. El vector normal al plano es la velocidad semiclásica.

Ayudados por la figura 2.2 podemos ver que $dS_F \; v_i \frac{1}{|\nabla_{\mathbf{k}}\varepsilon|}$ es la proyección de la superficie de Fermi en la dirección i (donde i es z para el ejemplo de la figura). $|\nabla_{\mathbf{k}}\varepsilon|$ es el módulo del vector velocidad que es perpendicular a la superficie de Fermi. Entonces podemos reescribir (2.20) de la siguiente forma

$$\sigma_{ii} = \frac{-e^2}{4\pi^3} \tau \iint dS_{F,i} \; \tau(\mathbf{k}) \; v_i(\mathbf{k}), \tag{2.21}$$

donde $S_{F,i}$ es la proyección de la superficie de Fermi perpendicular a la dirección i. Por lo tanto observamos que la componente ii de la contribución de la banda a la conductividad consiste simplemente en integrar la proyección de la velocidad semiclásica perpendicular a la dirección i de la superficie de Fermi. Esto simplifica mucho los cálculos ya que la integral puede hacerse para cada una de las direcciones de forma independiente. En el apéndice D mostramos explícitamente el método numérico.

2.2.2. Método de los tetraedros

El método de los tetraedros [60] permite integrar funciones sobre la primera zona de Brillouin, sumando dichas funciones sobre superficies de energía constante. En particular, nosotros lo usamos para integrar (sumar) la ecuación (1.26) sobre la superficie de Fermi, S_F.

En este método la primera zona de Brillouin es dividida en tetraedros del mismo volumen cuyos vértices son puntos $\mathbf{k}$ del grillado seleccionado con el criterio que es indicado en [60]. De todos los tetraedros formados en la primera zona, S_F intersecta a algunos de ellos. De estos últimos, alguno(s) de sus vértices tendrán una energía mayor que ε_F y otro(s) una menor. Entonces en las aristas (que son las rectas que unen a los vértices), existe algún punto con la energía de Fermi. Para estimar este punto se hace una interpolación lineal entre los valores de energía de los vértices y la de Fermi. Estos puntos determinan un plano dentro de cada tetraedro (ver figura (2.3)) que, en esta

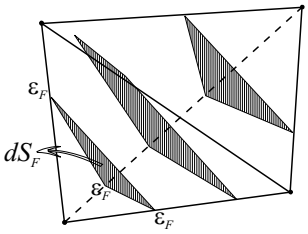

Figura 2.3: Dibujo esquemático de un tetraedro. Los planos muestran las tres formas posibles como la superficie de Fermi puede ser interpolada dentro de uno de ellos.

aproximación a primer orden, es S_F. Una vez determinada la superficie de Fermi, también se obtiene simultáneamente el vector gradiente $\nabla_k \varepsilon|_{\varepsilon_F}$, que será normal a la superficie, y que es la velocidad semiclásica[2].

2.2.3. Convergencia de los métodos

Como es de suponer, la convergencia de cualquiera de los dos métodos estudiados depende de la densidad del barrido en el espacio recíproco.

En particular, en el método de las áreas orientadas tenemos que asegurarnos que el mallado sea lo suficientemente denso como para no omitir posibles cruces del nivel de Fermi. Por ejemplo, es posible que para dos puntos consecutivos la energía de ambos sea menor que la de Fermi, pero sin embargo ambos pertenecen a la misma banda que pudo haber cruzado el nivel de Fermi en un punto intermedio, no incluido en el barrido. La densidad necesaria para evitar este error numérico depende de qué tipo de banda cruce el nivel de Fermi.

En la figura 2.4 graficamos el error relativo, respecto al valor convergido, de la contribución de las bandas a la conductividad en función del número de puntos **k** del barrido para Cu y Fe en volumen. Podemos ver que mientras para Cu la convergencia, con un error menor al 1 %, se alcanza con 15000 puntos **k**, el Fe recién la alcanza con 43000 puntos **k**. Esto se debe a que el nivel de Fermi del Cu es cruzado por estados con simetría mayormente *s* y que tienen forma parabólica. En cambio, el nivel de Fermi del Fe, para ambas polarizaciones de *espín*, es cruzado por bandas electrónicas con simetría *d* ya que los estados 3*d* no están completamente llenos en ambas proyecciones de *espín*. Las bandas con esta última simetría son muy "rugosas", o sea que cruzan el nivel de Fermi repetidas veces como se puede observar en el gráfico 1.4 para las bandas *down* del Co. Por lo tanto el cálculo de conductividad a partir de bandas con estados *d* en el nivel de Fermi son más propensos a presentar errores numéricos como los mencionados en el párrafo anterior.

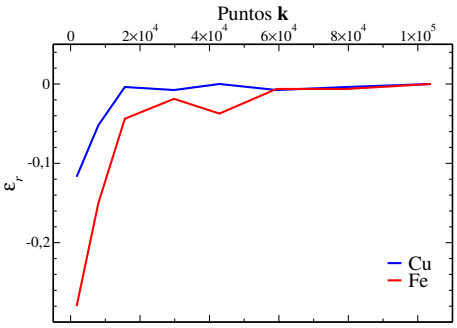

Figura 2.4: Error relativo, respecto al valor convergido, de la contribución de las bandas a la conductividad en función del número de puntos **k** del barrido.

[2]Una descripción más detallada del método se encuentra en el apéndice D.

2.3. Medición del transporte eléctrico

Para el estudio experimental de las propiedades de transporte de las diferentes películas delgadas estudiadas se realizaron mediciones de resistencia en función de campo magnético a temperatura ambiente y a 4,2 K. Las medidas se realizaron con la técnica usual de medición a cuatro puntas (figura 2.5) con corriente continua. Se utilizaron dos equipos para realizar las mediciones en distintos rangos de campo magnético. Uno de ellos es un electroimán que permite realizar las medidas de magnetotransporte hasta un campo aplicado de 1,4 T. La alimentación de los imanes permite fijar la magnitud del campo y la velocidad de variación del mismo, lo que permite hacer barridos de campo magnético. El campo es medido por una punta *Hall* y se utiliza un controlador de temperatura con una resistencia de *carbon-glass* para la medición de la temperatura. El otro equipo permite aplicar campos de hasta 9 T que es producido por un imán superconductor. En este caso, la intensidad del campo se midió directamente a través de la fuente calibrada del equipo. El controlador de temperatura consiste básicamente de una resistencia *cernox*.

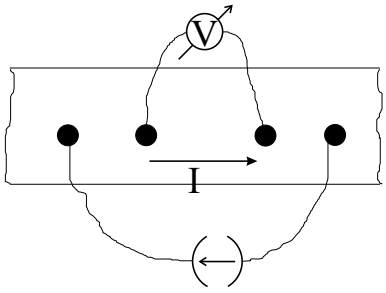

Figura 2.5: Esquema de la disposición de los contactos en el método de las cuatro puntas. Por los contactos externos inyectamos corriente a la muestra, mientras que por los contactos internos medimos la caída de potencial en la misma.

2.4. Medición de la magnetización

2.4.1. Medición directa

Una de las formas de medir la magnetización de las muestras fue a través de un magnetómetro SQUID. Su nombre significa *superconducting quantum interference device* o dispositivo superconductor de interferencia cuántica. El sensor de magnetización consta de un anillo superconductor con una juntura Josephson que permite medir la variación de flujo magnético dentro del mismo con mucha precisión. La variación del flujo se obtiene moviendo la muestra ubicada en el centro del anillo, en la dirección perpendicular al plano de éste. El campo magnético, generado por un imán superconductor, es aplicado en general en dirección paralela a la superficie de la muestra, en un rango de ± 5 T y para temperaturas de entre 5 y 300 K. Se realizaron mediciones de magnetización en función de la temperatura y magnetización en función del campo magnético.

2.4.2. Medición a través de resonancia ferromagnética

Para medir la respuesta magnética también se utilizó la técnica de resonancia ferromagnética. Esta técnica no es una medida directa de la magnetización como lo es la descripta anteriormente, sino que su valor se infiere de la dinámica de ella. El campo magnético externo constante es generado por un electroimán hasta una intensidad de 1,4 T, mientras que para el campo variable en el tiempo se utilizan microondas de 9 y 33 GHz.

2.4.2.1. Fenomenología

Un material ferromagnético sometido a un campo de microondas, h, de cierta frecuencia, ν, sumado a un campo magnético estático, H_0, perpendiculares entre sí, estará en resonancia de sus momentos magnéticos bajo ciertas condiciones. Este fenómeno se puede estudiar a través de la ecuación de la dinámica de la magnetización $\mathbf{M}$:

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = \gamma \mathbf{M} \times \mathbf{H}_{eff}, \tag{2.22}$$

donde

$$\mathbf{H}_{eff} = \mathbf{H}_0 + \mathbf{h}e^{i2\pi\nu t}.$$

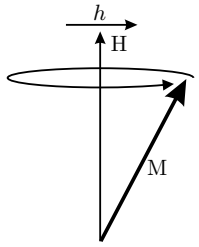

Figura 2.6: Esquema del movimiento de precesión de $\mathbf{M}$ en FMR.

El campo efectivo, $\mathbf{H}_{eff}$, también puede incluir campos cristalinos y demagnetizantes[3]. $\gamma = \frac{e}{2mc} g$ es el factor giromagnético y g el factor de Landé. En general, hallar la frecuencia de resonancia consiste de dos pasos: el primero es encontrar la dirección de equilibrio de los momentos magnéticos que depende del campo efectivo, $\mathbf{H}_{eff}$, en la muestra. Luego hay que resolver la ecuación diferencial (2.22) para encontrar la frecuencia de resonancia ,que depende tanto de la orientación de equilibrio como de $\mathbf{H}_{eff}$. Como podemos ver de la ecuación (2.22) la variación de $\mathbf{M}$ con respecto al tiempo depende de la componente perpendicular de $\mathbf{H}_{eff}$ con respecto a ella. Por lo tanto, generalmente, el movimiento resultante es de precesión como mostramos esquemáticamente en la figura 2.6.

[3] Una breve descripción de estos dos efectos la encontramos en el apéndice E.

2.4.2.2. Geometrías de medición

Existen dos geometrías de medición de uso más frecuente en las películas delgadas. Una de ellas es la llamada de medición en el plano (*in-plane*), que consiste en que el campo magnético externo esté en el plano del *film*, o sea $\Theta_H = 90°$ según la figura 2.7. Luego se realiza un barrido para $0° < \Phi_H < 360°$ en busca de posibles anisotropías dentro del plano.

Por otro lado está la geometría fuera del plano (*out-of-plane*), que consiste en estudiar los campos de resonancia para direcciones de H_0 no coplanares con el *film*. Usualmente se hacen barridos partiendo de $\Theta_H = 0°$ hasta $\Theta_H = 90°$.

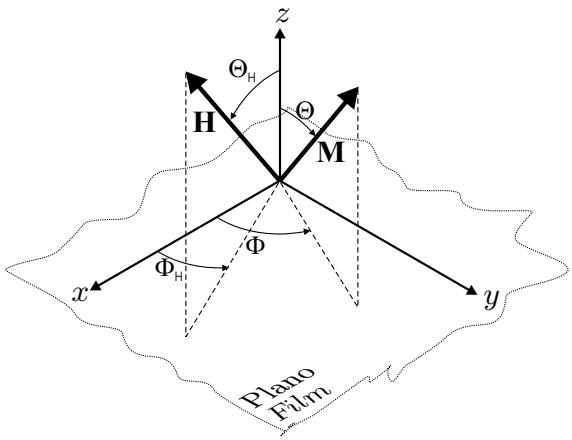

Figura 2.7: Convención de ejes y ángulos respecto al plano de la película delgada.

Capítulo 3

Magnetorresistencia gigante en superredes Cu/Fe.

3.1. Introducción

Como hemos mencionado en la sección 1.4.1.3, los sistemas en multicapas pueden presentar GMR inversa (IGMR). En 1994 se observó por primera vez este efecto cuando J.M. George *et al.* [45] midieron la IGMR de multicapas Fe/Cu a las cuales se les crecía una monocapa de Cr cada dos capas de Fe. El comportamiento inverso se observa en este sistema para campos aplicados de hasta 0,2 T, mientras que para campos mayores presenta un comportamiento directo como muestra la figura 3.1. En particular la GMR inversa es máxima cuando el espesor de la capa de Cu es de 14 Å, que es el ancho necesario para que las capas de Fe se acoplen de forma antiferro, como se espera para una multicapa (MML) Fe/Cu. Por otro lado, a través de un cálculo hecho por D.J. Singh [61], se sabe que una capa muy delgada de Cr sobre Fe o dentro de éste, se acoplará fuertemente de forma antiferromagnética. Cuando se aplica el campo externo, la primera capa que responde a este campo es la de Fe sin Cr, ya que su campo coercitivo es mucho menor. Esta primera alineación de capas de Fe produce la GMR inversa. Con la aplicación de campos mayores, comienza a alinearse el Cr con respecto al hierro circundante, dando lugar a GMR directa con un comportamiento parecido al de una superred Fe/Cr.

Desde un punto de vista fenomenológico se atribuyó este efecto a que el Cr induce a la capa de Fe que lo contiene a cambiar su comportamiento respecto a la dispersión dependiente del *espín*, y como vimos en la sección 1.4.1.3 ésta es una condición necesaria para poder tener GMR inversa ya que ambas capas magnéticas dejan de ser similares. I. Mertig *et al.* [13] hicieron un estudio teórico teniendo en cuenta la estructura de bandas del sistema pero incluyendo al Cr en los cálculos tan solo como simples impurezas dentro de la capa de Fe. De esta forma, pudieron explicar la parte de la curva experimental en la cual la GMR es inversa, sin embargo no dieron cuenta del comportamiento a altos campos

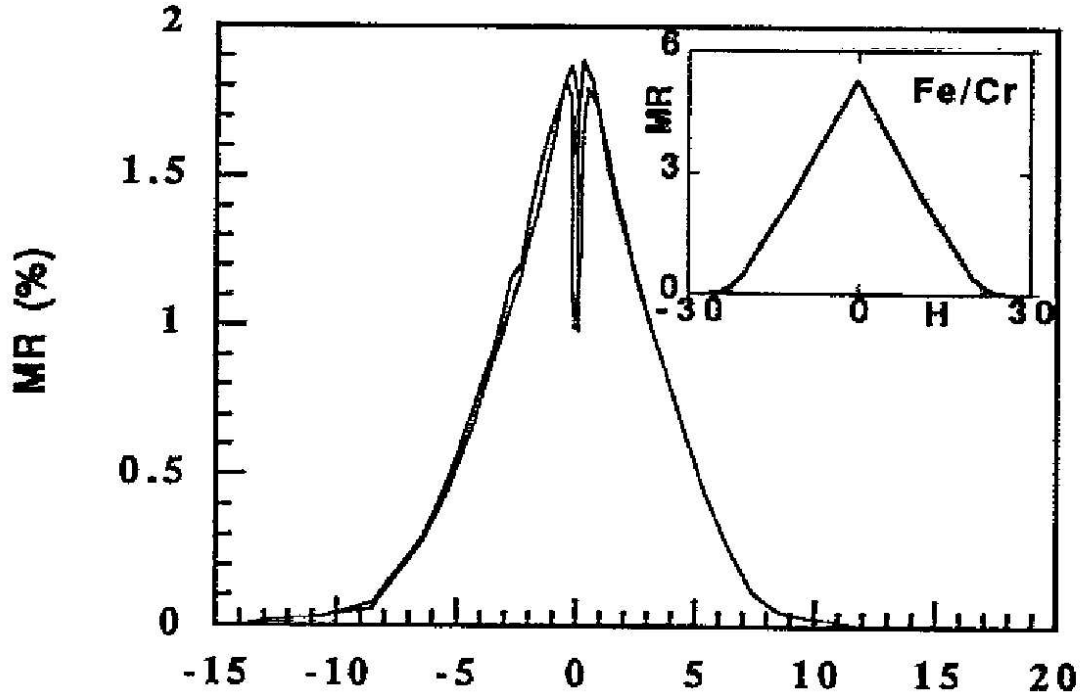

Figura 3.1: Magnetorresistencia en función del campo magnético aplicado para el sistema Fe(15 Å)/Cu(16 Å)/Fe(12 Å)/Cr(4 Å)/Fe(12 Å). La figura incluida muestra la MR para una multicapa Fe(12 Å)/Cr(6 Å). En este gráfico la MR está definida como $\frac{R(H)-R(H_{sat})}{R(H_{sat})}$ y H está en unidades de 0,1 T.

para los cuales la GMR se vuelve directa. Supusieron que debido a la poca cantidad de Cr depositado, éste se iba a distribuir como impurezas diluidas dentro de la capa de Fe pero, hasta el momento, no se ha hecho ningún estudio para determinar si ésto es realmente así. Cabe la posibilidad de que el Cr forme una incipiente capa continua en cuyo caso hay que considerar el efecto del Cr sobre la estructura de bandas del sistema. Por lo tanto en este capítulo focalizamos el estudio en las siguientes cuestiones: (a) la importancia relativa entre efectos intrínsecos (bandas electrónicas) y extrínsecos (impurezas) en la GMR inversa observada en las MMLs Cu/Fe con Cr, (b) la dependencia de la GMR con la cantidad de interfaces Fe/Cr y/o la rugosidad de las mismas. (c) la posibilidad de coexistencia de GMR inversa en una geometría y directa en la otra geometría. Para llevar a cabo este estudio consideramos una MML Cu/Fe en la cual una o más capas de Cr están intercaladas cada dos capas de Fe. Como el Fe y el Cr tienen aproximadamente el mismo volumen atómico, esperamos que el Cr se interdifunda parcialmente. Pero esto dependerá del método y de las condiciones de crecimiento, que pueden influir de forma

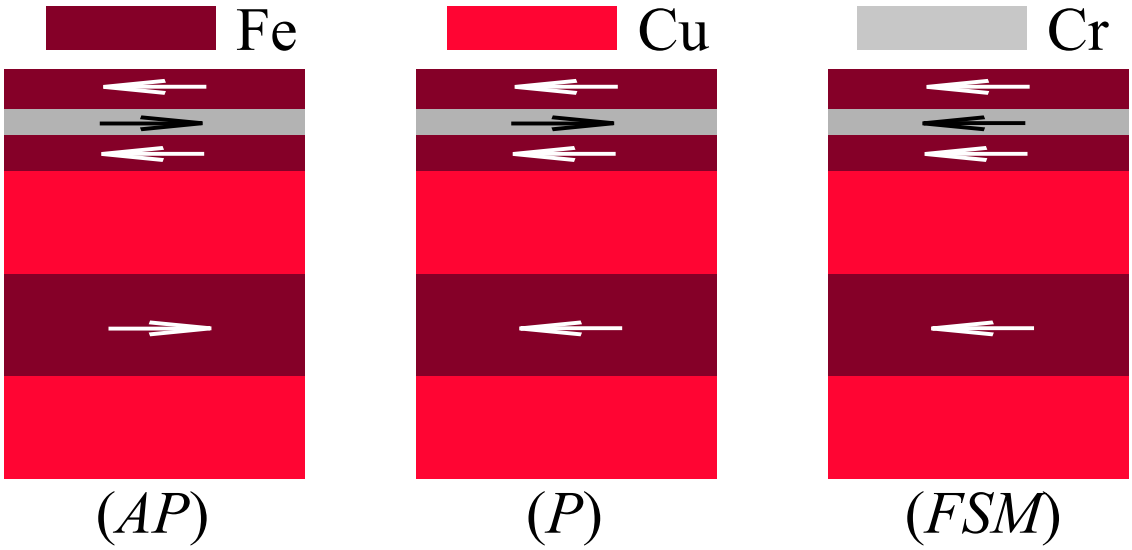

Figura 3.2: Esquemas de las diferentes situaciones estudiadas. Con (AP) denotamos la configuración donde las capas de Fe subsecuentes están acopladas antiferromagnéticamente, (P) significa de forma ferromagnética y por (FSM) entendemos las situaciones donde, a través de cálculos de momento magnético fijado, el Cr se acopla ferro con respecto al Fe que lo circunda.

determinante en el grado de interdifusión. Si la interdifusión no es completa, se forma una capa de Cr no aliada con el Fe y, desde el punto de vista electrónico tenemos que considerar que estas capas de Cr forman bandas electrónicas y que, por otro lado, los átomos de Cr aislados sean impurezas.

Proponemos comparar como cambia la conductividad en este tipo de multicapas para situaciones en las cuales las capas de Fe están acopladas de forma antiferro y ferro entre sí, y también cuando la capa de Cr está alineada ferromagnéticamente con el Fe circundante. En la figura 3.2 mostramos los esquemas de las diferentes situaciones magnéticas estudiadas.

Los cálculos de transporte los realizamos dentro del marco semiclásico de la ecuación de Boltzmann de tal manera que las contribuciones de las bandas son tomadas en cuenta explícitamente a través de las velocidades semiclásicas. Las correcciones de vértice (dispersión con ángulo cercano a 180°) son despreciadas. En CIP estas correcciones son menos importantes que en CPP, pero las tendencias en los resultados no se ven influidas por esta simplificación. Los tiempos de relajación se consideran dependientes del *espín*, a través de una parametrización adecuada. Solamente consideramos dispersión elástica, la cual conserva la proyección del *espín* en las interfaces y en el volumen.

3.2. Método de cálculo

Para obtener la estructura de bandas utilizamos el código WIEN97 mencionado en la sección 2.1.1.2 con un potencial de intercambio y correlación dado por Perdew y Wang[62] para la aproximación de densidad local de *espín* (LSDA).

Como fue mencionado en la introducción, las conductividades son calculadas utilizando la ecuación semiclásica de Boltzmann en la aproximación de tiempo de relajación sin considerar las interacciones que pueden cambiar la polarización de *espín* (*spin-flip*) tales como la de *espín*-órbita o la colisión con magnones. Por lo tanto usamos la ecuación (1.26) para obtener el tensor de conductividad, pero teniendo en cuenta que tenemos transporte polarizado en *espín* y que la superficie de Fermi está formada por estados correspondientes a diferentes bandas electrónicas. La ecuación (1.26) la reescribimos de la siguiente manera:

$$\sigma_{ii}^{s} = \frac{-e^2}{4\pi^3} \sum_{s,\nu} \tau^s \iint dS_F \; [v_i^{s\nu}(\mathbf{k})]^2 \frac{1}{|\nabla_{\mathbf{k}}\varepsilon|}. \tag{3.1}$$

donde s da cuenta de la polarización de *espín*, ν es el índice de banda. El tiempo de relajación, τ^s independiente de $\mathbf{k}$, es un parámetro que depende del *espín*.

Suponemos que τ^s viene dado por la interacción de los electrones de conducción con las impurezas del sistema. En este esquema el único rol de la estructura de bandas es dar cuenta de la velocidad semiclásica de los electrones para los diferentes valores de $\mathbf{k}$. Por lo tanto el tiempo de relajación está dado por las impurezas de los materiales que constituyen la superred y suponemos que se interdifunden principalmente en las interfaces. Las impurezas de tipo Cu están en la interfaz Cu/Fe y las de tipo Cr en la de Cr/Fe. Con respecto a las impurezas magnéticas en Cu, la referencia [63] nos muestra que las mismas aportan de forma despreciable a la densidad de estados en el nivel de Fermi y por lo tanto la GMR no se ve afectada por éstas.

Como estamos suponiendo que la concentración de impurezas es lo suficientemente chica como para que la ecuación de Boltzmann tenga validez, podemos aplicar la regla de Matthiessen y sumar las contribuciones de cada uno de los tipos de impurezas para estimar el tiempo de relajación. Estamos interesados en la evolución de la GMR en función de la concentración relativa de ambos tipos de impurezas y no en el valor absoluto de la conductividad, por lo tanto, consideramos que para cada una de las multicapas, el número total de dispersores por celda unidad es fijo e igual a una dada constante K,o sea

$$c_{\mathrm{Cr}} N_{\mathrm{Cr/Fe}} + c_{\mathrm{Cu}} N_{\mathrm{Cu/Fe}} = K \qquad c_{\mathrm{Cu}},\, c_{\mathrm{Cr}} \ll 1, \tag{3.2}$$

donde $N_{A/Fe}$ es el número de interfaces por celda unidad (A=Cr o Cu) y c_{A} es la concentración atómica del átomo de tipo A correspondiente.

Como dijimos anteriormente en el límite de bajas concentraciones, los eventos de dispersión de los distintos centros se pueden tomar como independientes y por lo tanto

podemos escribir a τ^s siguiendo la regla de Matthiessen. El valor de τ^s viene dado por un promedio pesado de $\tau_{Cu/Fe}$ y $\tau_{Cr/Fe}$ y utilizamos las concentraciones relativas como factores de peso. Para la configuración magnética en la cual las capas de Fe están alineadas, la expresión para τ^s se escribe, finalmente, de la siguiente manera

$$\frac{1}{\tau^s} = \frac{K}{N}\left(\frac{1-\bar{x}_{Cr}}{\tau^s_{Cu/Fe}} + \frac{\bar{x}_{Cr}}{\tau^s_{Cr/Fe}}\right), \tag{3.3}$$

donde

$$\bar{x}_{Cr} = \frac{N_{Cr/Fe}\, c_{Cr}}{N_{Cu/Fe}\, c_{Cu} + N_{Cr/Fe}\, c_{Cr}}$$

y

$$N = N_{Cr/Fe} + N_{Cu/Fe}.$$

$\bar{x}_{Cr}$ es la concentración relativa de centros dispersores de Cr. $\tau_{A/Fe}$ es el tiempo de relajación del Fe en presencia de impurezas de Cr o Cu. En el cálculo de la GMR el factor K/N se cancela.

En la configuración antiparalela de capas sucesivas de Fe la expresión correspondiente para τ^s es mezcla de los tiempos de relajación de los canales mayoritarios y minoritarios de capas contiguas en volumen. Siguiendo la referencia [13], para la determinación de τ^s en esta configuración asumimos que la densidad local de estados en el nivel de Fermi de las capas magnéticas tiene el mismo valor para ambas polarizaciones. Entonces escribimos,

$$\frac{1}{\tau^s} = \frac{K}{N}\left(\frac{1-\bar{x}_{Cr}}{\tau^s_{Cu/Fe}} + \frac{\bar{x}_{Cr}}{\tau^{-s}_{Cr/Fe}}\right), \tag{3.4}$$

donde $-s$ indica la polarización de *espín* contraria a s.

En nuestros cálculos, los valores de $\tau^s_{A/Fe}$ que aparecen en la expresiones (3.3) y (3.4) son parámetros que obtenemos de combinar resultados que aparecen en la literatura con resultados de cálculos propios. Por un lado, suele considerarse como un dato importante la llamada asimetría de *espín*,

$$\beta_{A/Fe} = \tau^{\uparrow}_{A/Fe}/\tau^{\downarrow}_{A/Fe}, \tag{3.5}$$

ésta nos da idea de la polarización relativa debida a la dispersión dependiente del *espín*. Por otro lado, podemos definir la siguiente expresión para la conductividad del Fe en volumen en presencia de impurezas

$$\sigma_{A/Fe} = \tau^{\uparrow}_{A/Fe}\tilde{\sigma}^{\uparrow}_{Fe} + \tau^{\downarrow}_{A/Fe}\tilde{\sigma}^{\downarrow}_{Fe}, \tag{3.6}$$

donde $\tilde{\sigma}^s_{Fe}$, producto de nuestro cálculo, es la contribución de las bandas electrónicas a la conductividad del Fe en volumen para cada canal de *espín* s, dividida por su correspondiente tiempo de relajación. La expresión (3.6) es simplemente un promedio pesado de

las conductividades de ambos canales de *espín*, los pesos son los tiempos de relajación para cada canal debido a las impurezas. Los valores de $\beta_{A/Fe}$ y los de $\sigma_{A/Fe}$ son tomados de la referencia [64]. De las ecuaciones (3.5) y (3.6) podemos obtener los valores de $\tau^s_{A/Fe}$, a los cuales mostramos en la tabla 3.1.

	Cr	Cu
$\sigma^{\uparrow}_{A/Fe}$	0.12	0.53
$\sigma^{\downarrow}_{A/Fe}$	0.70	0.065
$\beta_{A/Fe}$	0.11	3.68
$\tau^{\uparrow}_{A/Fe}$	1.05	4.84
$\tau^{\downarrow}_{A/Fe}$	9.75	1.31

Tabla 3.1: $\sigma^s_{A/Fe}$ es la inversa de la resistividad residual del Fe en volumen en presencia de las impurezas consideradas en este capítulo al 1 %; los valores son tomados de la referencia [64] y son dados en $(\mu\Omega\ cm)^{-1}$. $\beta_{A/Fe}$ es el coeficiente de asimetría de *espín* del Fe dopado con las impurezas consideradas; los valores son tomados de la referencia [13]. $\tau^s_{A/Fe}$ son los tiempos de relajación para ambas polarizaciones de *espín* obtenidos de la ecuación (3.6) y están dados en unidades arbitrarias.

La situación experimental de saturación en el cual las magnetizaciones del Fe y Cr están alineadas es una solución del problema en presencia de campo magnético aplicado. Un artilugio de cálculo para simular la saturación magnética, es hacer un cálculo imponiendo condiciones de vínculo, específicamente tomamos como vínculo el momento magnético total de la celda unidad. Esto significa que al hacer la autoconsistencia la magnetización de la celda siempre se mantiene fija en el valor deseado. De esta forma podemos simular el campo aplicado ya que vamos buscando soluciones para momentos magnéticos crecientes.

Definimos a la razón de GMR como

$$\mathrm{GMR} = \frac{\sigma_{ii}(AP)}{\sigma_{ii}(P)} - 1 \qquad -1 < \mathrm{GMR} < +\infty \tag{3.7}$$

donde $P(AP)$ significa configuración paralela (antiparalela). Si este coeficiente es positivo (negativo) tenemos IGMR(DGMR). La configuración P es la configuración correspondiente a alinear paralelamente a los Fe a los costados del Cu (campo bajo de saturación). En el caso de los cálculos a momento de *espín* fijo, P denota la configuración que se obtiene con los campos más altos. AP siempre indica la configuración inicial donde las capas de Fe a los costados de Cu están alineadas de forma antiparalela.

3.3. Resultados

Los cálculos han sido hechos para superredes crecidas en la dirección (001) y siguiendo la estructura BCC del Fe. Como las capas son lo suficientemente delgadas, asumimos que el Cu crece de forma epitaxial sobre el Fe, con la misma estructura, ésto es lo que sucede experimentalmente como se puede ver a través de espectroscopia de rayos X [65]. El parámetro de red en el plano es el correspondiente al optimizado del Fe en el marco LDA (2,77 Å), por otro lado las distancias entre planos interfaciales Cu/Fe y Cr/Fe son también las optimizadas LDA. Utilizamos un radio de *muffin tin*, R_{mt}, de 2,0 unidades atómicas para los tres tipos de átomos estudiados. El parámetro de corte, que da cuenta de la cantidad de ondas planas de la base en la zona intersticial, es tomado de tal forma que $R_{mt}K_{max} = 8$, donde K_{max} es el máximo módulo considerado para los vectores de la red recíproca. Encontramos que la distancia interfacial Cu/Fe aumenta 5 % (corresponde a una distancia interplanar de 1,45 Å) con respecto al parámetro de red del Fe en volumen en la aproximación LDA, mientras que para Fe/Cr la interfaz disminuye en 4 % (1,32 Å). Todos los parámetros optimizados LDA se encuentran en la tabla 3.2.

Elementos en volumen	Parámetro de red [Å]	Interfaces	Distancia interfacial [Å]
Fe	2,77	Cu/Fe	1,45
Cu	2,78	Fe/Cr	1,32
Cr	2,86		

Tabla 3.2: Parámetros de red y distancias interfaciales de equilibrio calculadas en la aproximación de densidad local de *espín* (LDA)

La estructura de bandas es calculada utilizando un barrido de 167 puntos **k** en la primera zona de Brillouin (FBZ). La autoconsistencia es hecha hasta asegurarnos que el nivel de Fermi esté convergido orbital por orbital y no sólo en forma promedio. Para el cálculo de la contribución de las bandas a la conductividad utilizamos el método de las áreas orientadas (ver sección 2.2.1) sobre una malla de 20000 puntos **k**. Los cálculos son hechos para los sistemas descriptos anteriormente, se varía la cantidad de planos de Cu y en la región Fe/Cr se consideran varias combinaciones de átomos y planos de estos elementos. Estas combinaciones contemplan diferente cantidad de planos de Cu, de Fe y de Cr. Con el objetivo de "medir" la importancia relativa de las bandas con respecto a las impurezas y de ver la dependencia de la IGMR con el número de interfaces Fe/Cr, con la rugosidad y con la geometría de medición, analizamos las siguientes situaciones: *i*) Efectos de las bandas del Cr sobre la GMR, *ii*) Los efectos de las impurezas de Cr y Cu sobre la GMR en superredes Fe/Cu y *iii*) Los efectos combinados de impurezas de Cr y Cu, y bandas de Cr.

3.3.1. Efectos de las bandas electrónicas del Cr sobre la GMR.

Para estudiar el efecto de las bandas, los cálculos de transporte los realizamos para una multicapa Fe_3/Cu_4 /Fe/Cr/Fe/Cu_4 en función de la distancia interfacial Fe/Cr. Hemos estudiado este sistema aún cuando es bien sabido que para 4 capas de Cu el acoplamiento entre capas de Fe es ferromagnético, recién para 8 o 9 capas existe un acople antiferro. A pesar de esto, propusimos soluciones antiferro para 4 capas ya que el tiempo de cálculo nos impone límites y obtuvimos la GMR suponiendo que esta configuración es la del estado fundamental.

En la figura 3.3 mostramos los resultados obtenidos para la GMR en las geometrías CPP y CIP. Los resultados dados en esta figura no tienen en cuenta la variación de τ^s con la concentración de impurezas, solamente se tienen en cuenta los efectos de las bandas sobre la GMR. por lo tanto el valor de τ^s es el mismo para ambas polarizaciones de *espín*. En 3.3(a) mostramos el valor de la GMR para Fe_3/Cu_4 con parámetros de red de equilibrio LDA. Comparando 3.3(a) con 3.3(b) se puede ver que se produce un gran cambio en la GMR con la sola introducción del Cr, especialmente en la geometría CPP. En la figura 3.3(b) la distancia interfacial Fe/Cr es la correspondiente a la de Fe en volumen optimizado LDA. En la figura 3.3(c) mostramos los resultados para una contracción de 4 % de la distancia interfacial Fe/Cr y en la 3.3(d) de 10 %. En esta sistemática podemos ver que al aumentar la hibridización entre los átomos de Cr y Fe, la tendencia a la IGMR aumenta. Esto es más notorio sobre todo en la geometría CPP.

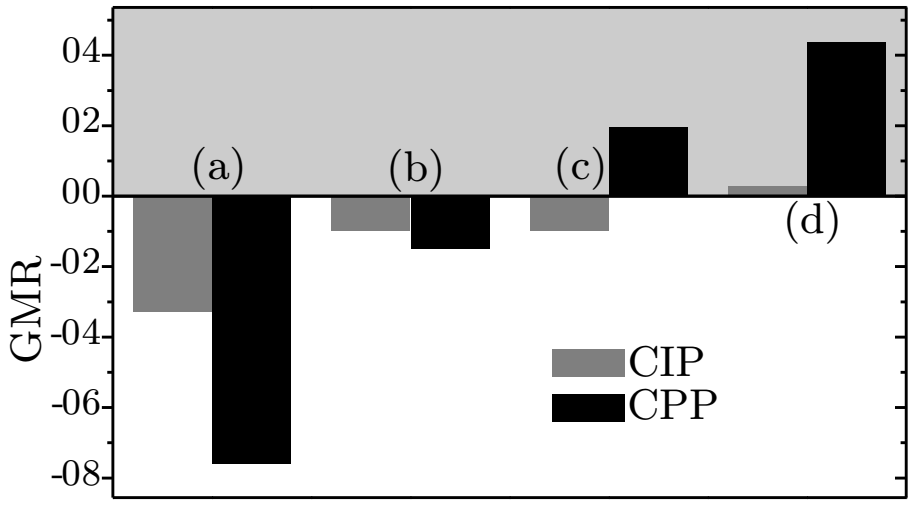

Figura 3.3: Contribución de las bandas electrónicas a la GMR para a) Fe_3/Cu_4, b) Fe_3/Cu_4/Fe/Cr/Fe/Cu_4 con una distancia interfacial Cr/Fe igual a la de Fe en volumen, c) y d) *idem* b) pero con la distancia Cr/Fe contraída 4 % y 10 % respectivamente. Las superrredes son crecidas en la dirección (001). La zona sombreada indica GMR inversa.

3.3.2. Contribución de las impurezas de Cr y Cu sobre la GMR de superredes Fe/Cu .

Los efectos sobre la GMR de las impurezas en el límite de baja dilución, como ya hemos explicado anteriormente, son tenidos en cuenta a través de τ^s. Las multicapas estudiadas en este caso son del tipo Fe_N/Cu_M ($N = 3, 5$ y $M = 4, 8$), por lo tanto no tenemos en cuenta el efecto de las bandas del Cr. Solamente analizamos cómo la concentración relativa de impurezas de Cr, $\bar{x}_{Cr}$, influye sobre la GMR. En la figura 3.4 mostramos los resultados de cambiar el número de capas de Cu y Fe en función de $\bar{x}_{Cr}$. Al cambiar el número de capas de Fe no aparece una modificación en las tendencias ni en los valores de la GMR. Esto lo podemos ver comparando las figuras 3.4(a) y 3.4(b) donde aumentamos de tres a cinco el número de monocapas de Fe. Al aumentar $\bar{x}_{Cr}$ vemos una tendencia a la IGMR. En CIP esta tendencia es más clara que en CPP, pero en esta aproximación los valores de la GMR en ambas geometrías corresponden a GMR directa. En cambio, si aumentamos la cantidad de capas de Cu (de 4 a 8), la tendencia a IGMR en CIP aumenta y para un rango pequeño de $\bar{x}_{Cr}$ la GMR se torna efectivamente inversa (ver figura 3.4(c)) que es lo que se ha observado experimentalmente para la cantidad de capas de Cu considerada. Por otro lado en CPP, vemos que la variación de la GMR con $\bar{x}_{Cr}$ es aún menor que en los casos anteriores.

En los cálculos de transporte realizados en este apartado el nivel de Fermi se mantuvo fijo en el valor correspondiente a las multicapas sin impurezas. Para sostener esto último, estimamos qué error podríamos haber estado cometiendo al no tener en cuenta las impurezas en la determinación del nivel de Fermi. Para esto suponemos tener una concentración del 5 % de impurezas de Cu y Cr en Fe que es una buena cota máxima y también que tenemos tantas impurezas de Cr como de Cu. Con estos dos suposiciones y sabiendo la cantidad de electrones por exceso o defecto que aportan las impurezas, estimamos el corrimiento del nivel de Fermi. Encontramos que los valores de GMR calculados para este nuevo nivel de Fermi varían en un 4 % y 2 % para las geometrías CPP y CIP respectivamente, y por lo tanto no afectan a las tendencias observadas.

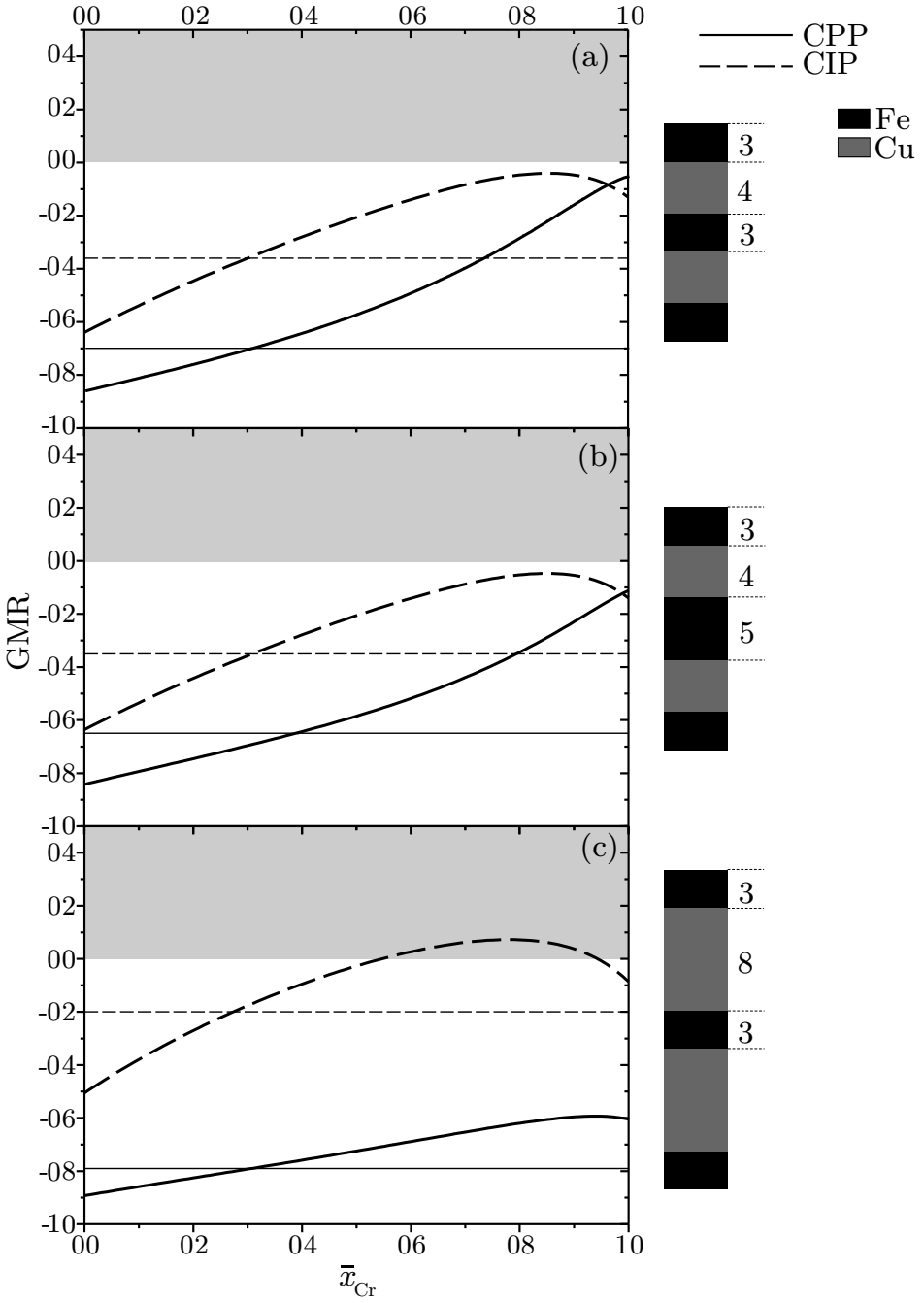

Figura 3.4: GMR calculada para a) Fe_3/Cu_4, b) Fe_5/Cu_4 y c) Fe_3/Cu_8 en función de la concentración relativa de dispersores de Cr, $\bar{x}_{Cr}$. Las áreas sombreadas corresponden a IGMR. Las líneas rectas muestran la GMR dada únicamente por la contribución de las bandas. El número de monocapas atómicas en cada capa de las multicapas está dado en los esquemas que se encuentran a la derecha de las figuras.

3.3.3. Efecto combinado de impurezas de Cr y Cu y de bandas de Cr

En este apartado analizamos las dos contribuciones a la GMR en forma conjunta. El efecto de las bandas de Cr es estudiado introduciendo en el sistema capas continuas y discontinuas de Cr y los efectos de impurezas de la forma usual en este trabajo, a través de τ^s. Acá estamos asumiendo que parte del Cr depositado se interdifunde en el Fe, pero dependiendo de la cantidad depositada parte del Cr empezará a formar una capa continua.

En la figura 3.5 mostramos los efectos de introducir un número variable de interfaces de Fe/Cr, y también de capas de Cu sobre la GMR. En el gráfico mostramos además la contribución de las bandas sin tener en cuenta impurezas (líneas rectas). En la figura 3.5(a) vemos cómo la inclusión de bandas de Cr modifica drásticamente a la GMR en la geometría CPP, si la comparamos con la figura 3.4(a). Ahora la GMR en CPP es positiva para casi todo el rango de valores $\bar{x}_{\mathrm{Cr}}$. Es interesante notar que las impurezas de Cu (valores bajos de $\bar{x}_{\mathrm{Cr}}$) hacen que la GMR tenga una tendencia a ser aún más directa que considerando sólo la contribución de la banda. En cambio a valores más altos de $\bar{x}_{\mathrm{Cr}}$ la tendencia se revierte y se torna inversa. Para la geometría CIP este último comentario también es válido. En esta geometría la tendencia también es hacia la GMR inversa pero con valores de GMR más pequeños.

Si cambiamos el número de monocapas de Cu (de 4 a 8), la GMR en CPP sigue siendo inversa pero con valores más pequeños que en el caso anterior, mientras que en CIP se mantiene prácticamente igual que con 4 capas de Cu. Ver figura 3.5(b). Esperamos que para el número de capas de Cu (8 ó 9) para el cual ocurre el máximo acoplamiento antiferro, la GMR en CPP sea inversa y de mayor magnitud que en CIP. Por otro lado, la CIP no se ve modificada en forma apreciable para los espesores de Cu estudiados.

Duplicando la cantidad de interfaces Fe/Cr no se observa ningún cambio en CIP mientras que en CPP el valor de la GMR se duplica (figura 3.5(c)).

También simulamos una rugosidad ordenada en las interfaces poniendo una monocapa que contiene una aleación ordenada de FeCr a cada lado de la capa de Cr. En la figura 3.5(d) podemos observar que obtenemos un rango mayor de $\bar{x}_{\mathrm{Cr}}$ para el cual la GMR es inversa en CIP, mientras que en CPP no se producen cambios con respecto a lo mostrado en la figura 3.5(a). Este efecto lo podemos entender si consideramos que estamos introduciendo interfaces Fe/Cr perpendiculares a la dirección de transporte, resultando ésto en una contribución del tipo CPP en la geometría CIP. Por lo tanto la hibridización del Fe con el Cr contribuye a la IGMR. Sin embargo el efecto no es lo suficientemente importante como para cambiar cualitativamente el comportamiento de la GMR. Por otro lado en CPP la GMR no presenta ninguna fuente adicional de dispersión respecto del caso estudiado en 3.5(a) como acabamos de ver. Para todos los casos estudiados es interesante notar que la GMR alcanza un máximo para un dado valor de $\bar{x}_{\mathrm{Cr}}$.

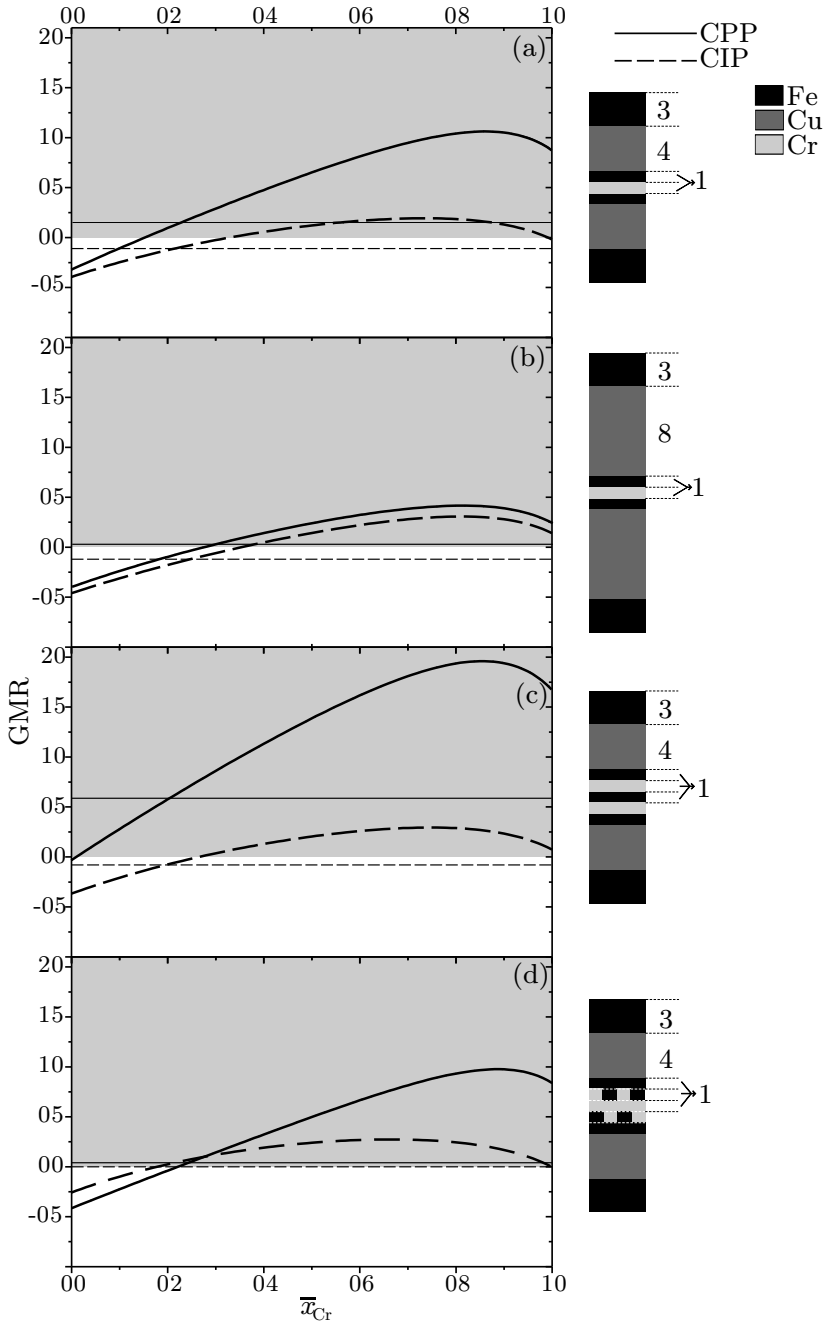

Figura 3.5: GMR calculada para a) $Fe_3/Cu_4/Fe/Cr/Fe/Cu_4$, b) $Fe_3/Cu_8/Fe/Cr/Fe/Cu_8$, c) $Fe_3/Cu_4/Fe/Cr/Fe/Cr/Fe/Cu_4$ y d) $Fe_3/Cu_4/Fe/Fe_{0,5}Cr_{0,5}/Cr/Cr_{0,5}Fe_{0,5}/Fe/Cu_4$ en función de la concentración relativa de dispersores de Cr, $\bar{x}_{Cr}$. Las áreas sombreadas corresponden a la IGMR. Las líneas rectas muestran la GMR dada únicamente por la contribución de las bandas. El número de capas atómicas en cada región de las multicapas se muestra en los esquemas de la derecha.

3.3.4. Evolución de la GMR con alineamiento magnético creciente

En la tabla 3.3 mostramos los resultados obtenidos para la GMR de una multicapa $Fe_3/Cu_4/Fe/Cr/Fe/Cu_4$ con concentración de impurezas $\bar{x}_{Cr}$ = 0,5 cuando realizamos cálculos fijando el valor del momento magnético, con el objetivo de simular la aplicación de campos magnéticos fuertes. Mostramos los valores obtenidos de GMR para diferentes valores del momento magnético total de la celda, junto con los momentos magnéticos del Cr y de los Fe. Nuestros cálculos reproducen el comportamiento experimental. Observamos un incremento inicial de los valores de GMR hasta alcanzar la saturación a bajos campos. Más allá de este punto, se logra un mayor alineamiento de los momentos magnéticos, en particular consideramos dos configuraciones, FSM1 y FSM2, con sus momentos magnéticos fijados según indica la tabla 3.3. Para estos dos últimos la GMR se vuelve negativa en CIP, como ha sido observado por J.M. George *et al.* en la referencia [45]. En CPP la GMR se vuelve negativa solo para FSM2, pero FSM1 ya muestra una tendencia hacia la DGMR. Este resultado pone en evidencia la importancia de los efectos que tienen las bandas sobre la GMR de los sistemas estudiados a través de las velocidades semiclásicas.

Configuración magnética	μ_{celda}	μ_{Fe}	μ_{Cr}	CIP-GMR	CPP-GMR
AP	-4.88	1.14	-0.22	0	0
P	8.82	1.02	-0.25	0.12	0.65
FSM1	13.00	1.95	0.30	**-0.20**	0.27
FSM2	16.00	2.42	0.98	**-0.30**	**-0.34**

Tabla 3.3: Valores de CIP y CPP-GMR calculados para diferentes configuraciones magnéticas de la superred $Fe_3/Cu_4/Fe/Cr/Fe/Cu_4$. μ_{celda} denota el momento magnético total por celda unidad y μ_A el momento magnético local de los átomos de Cr y de Fe adyacentes a la capa de Cr. AP es la configuración magnética a campo cero, P denota la configuración de saturación a bajos campos (capas de Fe alineadas a través del Cu), FSM1 y FSM2 son las configuraciones en las cuales el momento magnético total es mayor que para la configuración P. En negrita resaltamos los resultados que indican GMR directa. Todos los momentos son dados en unidades de μ_B.

3.4. Conclusiones

Hemos determinado la competencia entre los efectos de impurezas de Cu y Cr y de bandas de Cr en la determinación del tipo de GMR (directa o inversa) para superredes del tipo $(Fe/Cu/Fe/Cr/Fe/Cu)_N$. Las conductividades para obtener los valores de GMR han sido calculadas utilizando la ecuación linealizada semiclásica de Boltzmann en la aproximación de tiempo de relajación. No han sido consideradas los correcciones de vértice.

3.4. Conclusiones

Las velocidades semiclásicas han sido obtenidas de estructuras de bandas calculadas desde primeros principios en la aproximación LDA. Los efectos de impureza han sido considerados a través de tiempos de relajación isotrópicos dependientes de la polarización del *espín*. También hemos asumido que trabajamos en el límite de baja concentración de impurezas, lo que permite calcular los tiempos de relajación a través de una expresión tipo ley de Matthiessen. En particular al no considerar correcciones de vértices, ésto puede derivar en una mala determinación de la conductividad sobre todo en CPP, pero como lo que hemos analizado es la GMR, las tendencias de la misma son aceptables.

Los valores y signos de la GMR calculados dependen fuertemente del grado de hibridización entre las capas de Fe y Cr, especialmente en la geometría CPP.

En ausencia de bandas de Cr en los cálculos y teniendo en cuenta sólo las impurezas, hemos visto una clara tendencia a la IGMR en CIP. Esta tendencia depende de la concentración relativa de impurezas. Para cierto ancho de Cu y concentración de impurezas, la GMR se vuelve positiva. En cambio, en CPP la GMR está lejos de ser inversa. Estos resultados ya habían sido obtenidos por P. Zhan *et al.*[13]. El cambio en la cantidad de monocapas de Fe no modifica los resultados.

Al agregar monocapas completas o incompletas de Cr, hemos obtenido un cambio cualitativo en el comportamiento de la GMR, especialmente en CPP. En ambas geometrías la GMR tiene una tendencia mayor hacia la IGMR, pero en CPP la IGMR muestra valores más grandes. Tanto en CPP como en CIP la GMR inversa se presenta para un rango amplio de $\bar{x}_{\mathrm{Cr}}$. Hemos mostrado que en CPP la IGMR aumenta al agregar interfaces Fe/Cr, mientras que en CIP ésta no se ve afectada. Podemos concluir que en CPP los efectos de bandas son más importantes que los de impurezas, mientras que en CIP sucede lo contrario. Agregar rugosidad a las interfaces (en nuestro caso una rugosidad ordenada), provoca un aumento en la tendencia a la IGMR en CIP. Este efecto es debido a la aparición de interfaces efectivas Fe/Cr en esta geometría.

Resumiendo, hemos dado cuenta de la evolución experimental completa de la GMR del sistema en estudio en presencia del campo magnético aplicado teniendo en cuenta las bandas electrónicas del Cr.

En general el transporte en ambas geometrías, CIP y CPP, sigue la misma tendencia en cuanto al signo de la GMR.

Capítulo 4

Propiedades magnetoeléctricas de películas delgadas de aleaciones granulares

4.1. Introducción

P. Holody y sus colaboradores [66] estudiaron experimentalmente las propiedades de transporte de materiales nanoestructurados híbridos compuestos por capas magnéticas continuas y también por agregados magnéticos dispuestos en capas, separados por un metal noble. Los sistemas en donde las capas magnéticas están formadas por agregados embebidos en una matriz de metal noble, presentan la ventaja de evitar en gran medida el acoplamiento magnético intercapa que suele ocurrir debido a la existencia de pequeños puentes magnéticos formados en el metal noble.

En particular, P. Schroeder y colaboradores [67] estudiaron las propiedades magnéticas de multirredes metálicas Co/Ag con capas ultrafinas del material magnético. Este grupo reporta la formación de agregados monodominio para espesores de Co menores a 10 Å. Para espesores mayores, las partículas magnéticas coalescen en una sola capa magnética. F. Fettar *et al.* [68] modificaron el tamaño de los agregados recociendo las muestras y lograron de esta forma la *percolación* de los mismos para espesores de 8 Å en muestras tratadas a 400 °C. Veremos en este capítulo, que la coalescencia puede ser alcanzada por otro procedimiento. Éste consiste en aplicar un campo magnético durante el crecimiento de las muestras, lo que provoca que los agregados crezcan más elongados y de mayor tamaño dependiendo del campo aplicado, hasta que para un dado campo dado se alcanza la coalescencia. Esta parte de la tesis se realizó en el laboratorio de Resonancias Magnéticas del Centro Atómico Bariloche.

Las muestras estudiadas están compuestas por agregados de una aleación de CoFe embebidas en Ag dispuestos de dos formas distintas tal como esquematizamos en la fi-

gura 4.1. En un caso tenemos una aleación granular (GA) dentro de la cual los agregados de **Co**Fe están dispuestos al azar, en el otro caso tenemos una multicapa formada por capas de aleación granular separadas por capas de Ag. En ambos sistemas estudiamos las propiedades magnéticas y de transporte en función de la concentración del material magnético. En particular, pusimos atención en el cambio de comportamiento del transporte de las multicapas en el umbral de coalescencia, o sea, cómo cambian la resistividad y la GMR en este tipo de multicapas cuando la capa de aleación pasa de estar formada por agregados a ser una capa única.

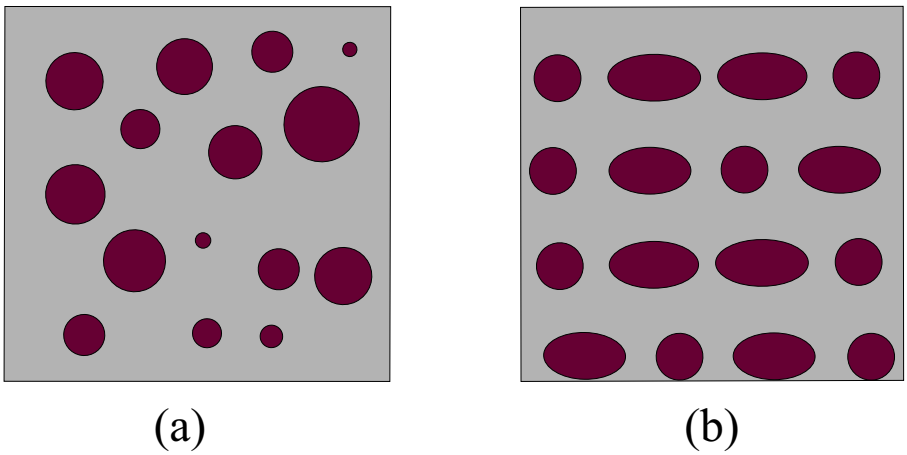

Figura 4.1: Esquemas del tipo de películas delgadas estudiadas. (a) Aleación granular donde los agregados de **Co**Fe están dispuestos al azar en la matriz de Ag. (b) La aleación granular se encuentra formando capas discontinuas de una multicapa en la cual el separador no magnético es plata.

4.2. Descripción de las muestras y detalles experimentales

Las películas delgadas de aleación granular $(Co_{90}Fe_{10})_xAg_{1-x}$ ($0{,}10 < x < 0{,}50$) y de multicapas con capas magnéticas discontinuas $[Co_{90}Fe_{10}\ t_{\mathbf{Co}Fe}/Ag\ t_{Ag}]_{\times 20}$ ($t_{\mathbf{Co}Fe}$ = 5 Å, 7,5 Å y 12 Å $< t_{Ag} <$ 100 Å) han sido crecidas por la técnica de *dc-sputtering* sobre sustratos de vidrio *Down-Corning*. Las muestras se crecieron sobre 50 Å de Ta y con una capa superior de 120 Å de Ta para protegerla de la oxidación.

Para crecer los *films* de aleación granular se utilizó una matriz asimétrica de una aleación $Co_{90}Fe_{10}$ (**Co**Fe) distribuida sobre un blanco de Ag. La composición resultante de cada una de las muestras se midió mediante EDAX y se encontró un gradiente de composición atómica del 50 % a lo largo de 100 mm. Por lo tanto es posible asegurar

que en muestras de hasta 3 mm de ancho, la composición no varía más allá de 10 %. El tamaño y la forma de los agregados magnéticos en las multicapas han sido modificados a través de la aplicación de una campo magnético externo (H_{dep} = 0 Oe (M1), 100 Oe (M2), 350 Oe (M3)) al momento de la deposición, y también cambiando al ancho nominal de **Co**Fe ($t_{\mathbf{Co}\mathrm{Fe}}$ = 5 Å (MLs5) y $t_{\mathbf{Co}\mathrm{Fe}}$ = 7,5 Å (MLs7)), manteniendo fijo el espesor de Ag, t_{Ag} = 50 Å. Las muestras fueron crecidas por J. Barnard en la Universidad de Alabama.

La estructura cristalina de las muestras se analizó por espectroscopia de difracción de rayos X (XRD). En el caso de las aleaciones granulares y debido a la pequeña cantidad de material magnético, únicamente se observa el pico (111) de Ag en los patrones de difracción. La posición de este pico se va corriendo hacia la posición del de **Co**Fe al aumentar la concentración de este último. También aumenta la diferencia entre el parámetro de red medido y el correspondiente a la celda de Ag en volumen (siempre negativo). Al mismo resultado arribaron J.R. Mitchell y A.E. Berkowitz [69] para aleaciones $\mathrm{Co}_{1-x}\mathrm{Ag}_x$. En las multicapas, los patrones XRD muestran en la aleación un texturado (111) de Ag. El espectro **Co**Fe sólo se observa para las muestras MLs7. En estas multicapas, se observan picos satélite alrededor del pico (111) de Ag, indicando una buena estructura artificial de las muestras.

Las medidas magnéticas se llevaron a cabo con un magnetómetro SQUID. Se midieron curvas de magnetización en función de T, entre 4,2 K y 300 K en muestras enfriadas con y sin campo campo magnético, con un campo de 100 Oe aplicado paralelo a las capas de las muestras. También se realizaron curvas de histéresis para el mismo rango de temperatura alcanzando campos de hasta 5 T.

Mediciones de resonancia ferromagnética (FMR) fueron realizadas para estudiar la forma de los agregados. Estas mediciones se hicieron en un espectrómetro Bruker a 9,3 Ghz (banda X) entre 100 K y 350 K. La dependencia angular del campo de resonancia fue estudiada en la geometría fuera del plano.

Las mediciones de resistividad y magnetorresistencia se realizaron con la técnica usual de cuatro puntas con corriente continua fluyendo paralela a las capas (geometría CIP) en un rango de temperatura entre 4,2 K y 300 K y hasta 1,5 T.

4.3. Resultados y discusión

4.3.1. Mediciones de magnetización

Para estudiar las propiedades magnéticas de partículas pequeñas es usual medir curvas de magnetización en muestras enfriadas sin campo (ZFC) y con campo magnético (FC). En particular, nosotros usamos este tipo de mediciones para estudiar la existencia de partículas monodominio y para estimar la distribución de tamaños de las mismas.

En la figura 4.2 mostramos las curvas ZFC y FC para la muestra de la aleación granular $\mathbf{Co}\mathrm{Fe}_{0,16}\mathrm{Ag}_{0,84}$. Como se puede ver, la curva ZFC presenta un máximo a una tem-

peratura que llamaremos T_m. A temperaturas mayores la magnetización decrece y ambas curvas se superponen siguiendo una ley de Curie cuya constante tiene un valor que pone en evidencia la existencia de partículas ferromagnéticas monodominio. La magnetización para las muestras más diluidas ($x < 0{,}10$) sigue la ley de Curie para todo el rango de temperaturas estudiado, indicando que las partículas magnéticas en estas muestras son muy pequeñas o bien casi isotrópicas (la temperatura de bloqueo, T_B, es menor que 5 K). La T_m de las aleaciones granulares aumenta monótonamente con la concentración de **Co**Fe (ver figura incluida en 4.2). También, con el aumento de la concentración, se puede observar un ensanchamiento del máximo de la curva ZFC. En las aleaciones granulares con $x \geq 0{,}20$, T_m es mayor que la temperatura ambiente. Como T_m es proporcional a la temperatura de bloqueo[70], entonces la variación de T_m estaría relacionada con un cambio en el tamaño de los clusters y/o de la anisotropía magnética del sistema.

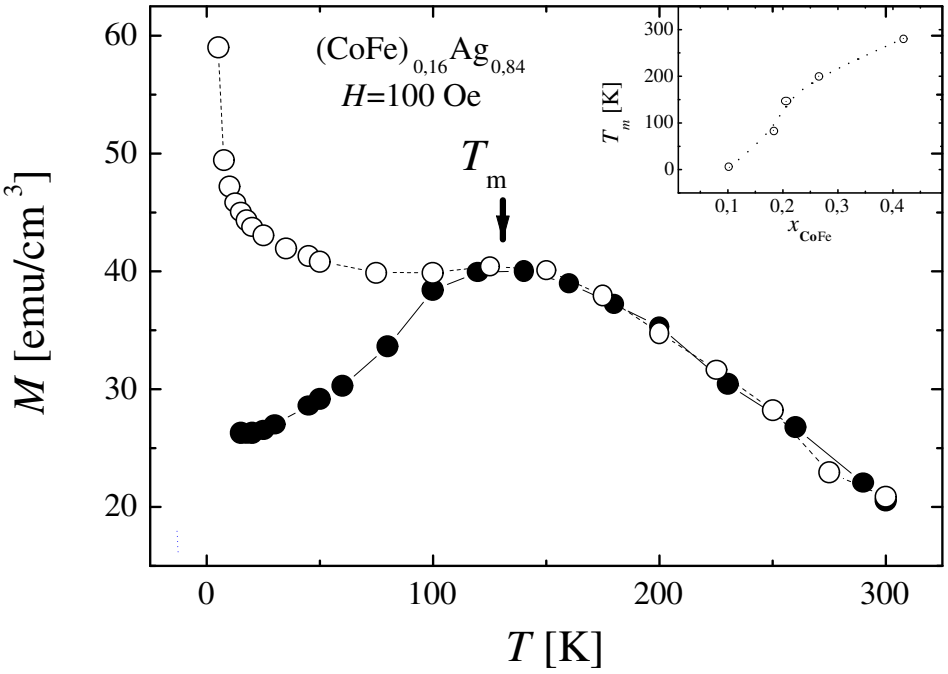

Figura 4.2: Curvas de magnetización (•) ZFC y (◦) FC para la muestra granular **Co**$Fe_{0,16}Ag_{0,84}$. La figura incluida muestra T_m en función de la concentración de **Co**Fe, x.

Las curvas ZFC son ajustadas por la siguiente expresión [71]

$$M(T,H) = M_s \int_0^{v*} f(V_c)\, \mathcal{L}\Big(\frac{M_s V_c H}{k_B T}\Big)\, dV_c, \tag{4.1}$$

siendo $v* = 25k_BT/K$, V_c el volumen de los agregados, M_s es la magnetización de saturación de la componente magnética, $\mathcal{L}(x)$ es la función de Langevin y $f(V_c)$ es la función de distribución de volumen de las partículas. En las aleaciones granulares, $f(V_c)$ es una función gaussiana ($f(V_c) = e^{-[(V_c - <V_c>)/2\sigma]^2}$)[1]. El segundo término corresponde a la contribución a la magnetización de la fracción de partículas bloqueadas a una temperatura T. Si consideramos que las partículas tienen un eje uniaxial de anisotropía y, que en cada una de las partículas, este eje está orientado al azar, a medida que la temperatura aumenta, las partículas bloqueadas comienzan a activarse térmicamente y sus momentos magnéticos empiezan a aportar a la magnetización como en un paramagneto clásico a través del primer término de la expresión (4.1).

De estos ajustes, encontramos un tamaño medio de 28 Å para las aleaciones más diluidas ($x = 0{,}09$). Este diámetro aumenta hasta 40 Å para $x = 0{,}17$ y es más grande que 50 Å para $x > 0{,}20$. La constante de anisotropía deducida de las curvas se mantiene casi constante, $K = 1{,}5(5)\times 10^7$ erg/cm^3, para $x < 0{,}30$. Este valor es dos órdenes de magnitud más grande de los que usualmente se reportan para las anisotropías magnetocristalina y de forma. Este aumento puede ser asociado a contribuciones de superficie.

Las curvas de magnetización ZFC y FC para las multicapas se muestran en la figura 4.3. Observamos un aumento de T_m con H_{dep} para las muestras MLs5 y MLs7 (figura incluida en 4.3). Esta variación es suave para las muestras MLs5, mientras que para las MLs7 es más pronunciada. En particular la muestra M3-MLs7 muestra una T_m mayor a 300 K. Las curvas de magnetización de M1-MLs5 y M2-MLs5 han sido ajustadas según la ecuación (4.1) y usando una función distribución log-normal ($f(V_c) = e^{-[\ln(V_c/<V_c>)/2\sigma]^2}$). El diámetro medio de los agregados en MLs5 pasa de 30 Å, en M1, hasta 43 Å, en M3. También a medida que H_{dep} aumenta, se ensancha la distribución. Profundizaremos el análisis del cambio de anisotropía y tamaño de las partículas cuando se presenten los resultados de FMR.

Las curvas de histéresis medidas a temperatura ambiente, indican que un 25 % de los agregados de las muestras de la serie M3-MLs5 están bloqueados a esa temperatura. Este porcentaje aumenta hasta el 75 % para las M1-MLs7 y, en M2-MLs7, M3-MLs7, todas las partículas están bloqueadas. Usando la expresión (4.1), estimamos un tamaño de 80 Å para los agregados bloqueados a temperatura ambiente.

La magnetización de saturación encontrada en estas muestras es generalmente más pequeña que la medida para estas aleaciones en volumen [72]. Este resultado parece

[1]La distribución de tamaños sigue cierta estadística que depende de la técnica de crecimiento y de tratamientos térmicos posteriores.

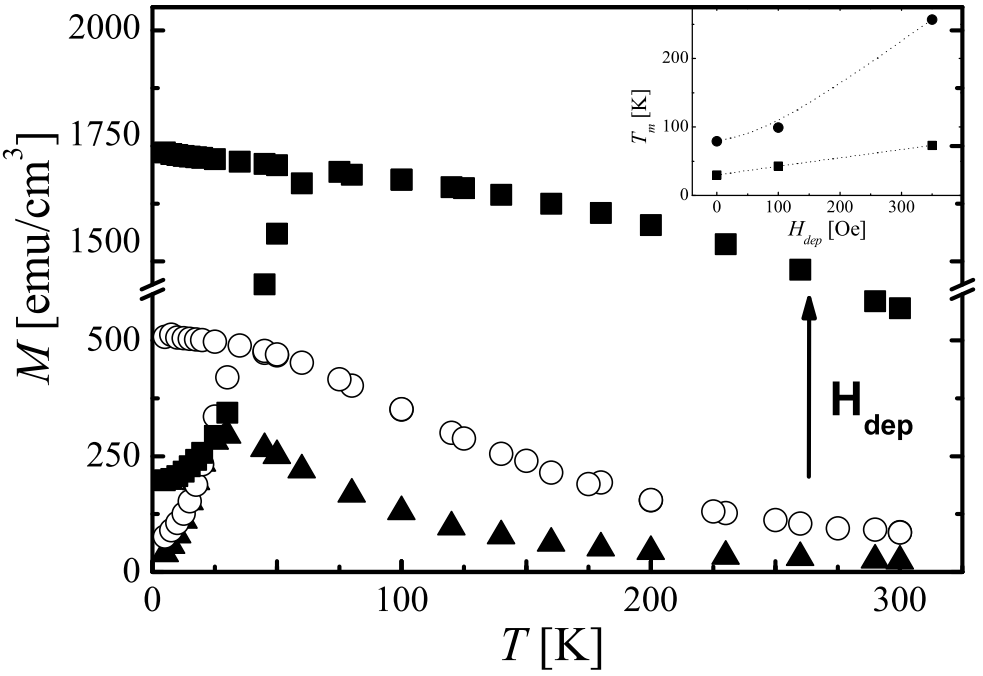

Figura 4.3: Curvas de magnetización ZFC y FC para las multicapas MLs7, crecidas con diferentes campos aplicados, H_{dep}. En la figura incluida mostramos T_m vs. H_{dep} para las muestras MLs5 (■) y MLs7(●).

indicar la presencia de capas magnéticamente muertas o hibridizadas con las bandas electrónicas de Ag. Este comportamiento ya ha sido observado en multicapas $Co_{1-x}Fe_x$/Cu [73].

4.3.2. Mediciones de resonancia ferromagnética

La forma de los agregados ha sido estudiada realizando mediciones de resonancia ferromagnética (FMR)[2]. La dependencia angular del espectro de FMR es medida en la geometría fuera del plano, se hizo un barrido del ángulo polar, Θ_H, desde 0º (perpendicular a la superficie de la muestra) hasta 90º (en el plano de la muestra), manteniendo el ángulo azimutal fijo. En la figura 4.4 mostramos el campo de resonancia en función de Θ_H para la aleación granular $(\mathbf{Co}Fe)_{0,31}Ag_{0,69}$, la multicapa M3-MLs7 y una película

[2]Una película delgada de Ag(50 Å)/**Co**Fe(1000 Å)/Ag(50 Å) ha sido tomada como referencia.

delgada de 1000 Å de **Co**Fe de referencia. Los resultados pueden ser explicados en términos de la anisotropía de forma de las muestras. Para obtener una descripción cuantitativa de estos resultados, usamos la siguiente expresión para la energía libre del sistema [74]

$$F = -f\,\mathbf{M}.\mathbf{H} + \frac{1}{2} f\,\mathbf{M}[(1-f)\hat{N}_g + f\hat{N}_t]\mathbf{M} \tag{4.2}$$

donde f es el factor de llenado volumétrico de los entes magnéticos ($0 < f < 1$) y $\hat{N}_g$ y $\hat{N}_t$ son los tensores demagnetizantes de los agregados y del film, respectivamente. En el caso general de partículas elipsoidales y eligiendo una base diagonal, $\hat{N}_g = 4\pi$(1-2ε, ε, ε) y $\hat{N}_t = 4\pi$(1,0,0) donde ε da cuenta de la elipticidad de las muestras.

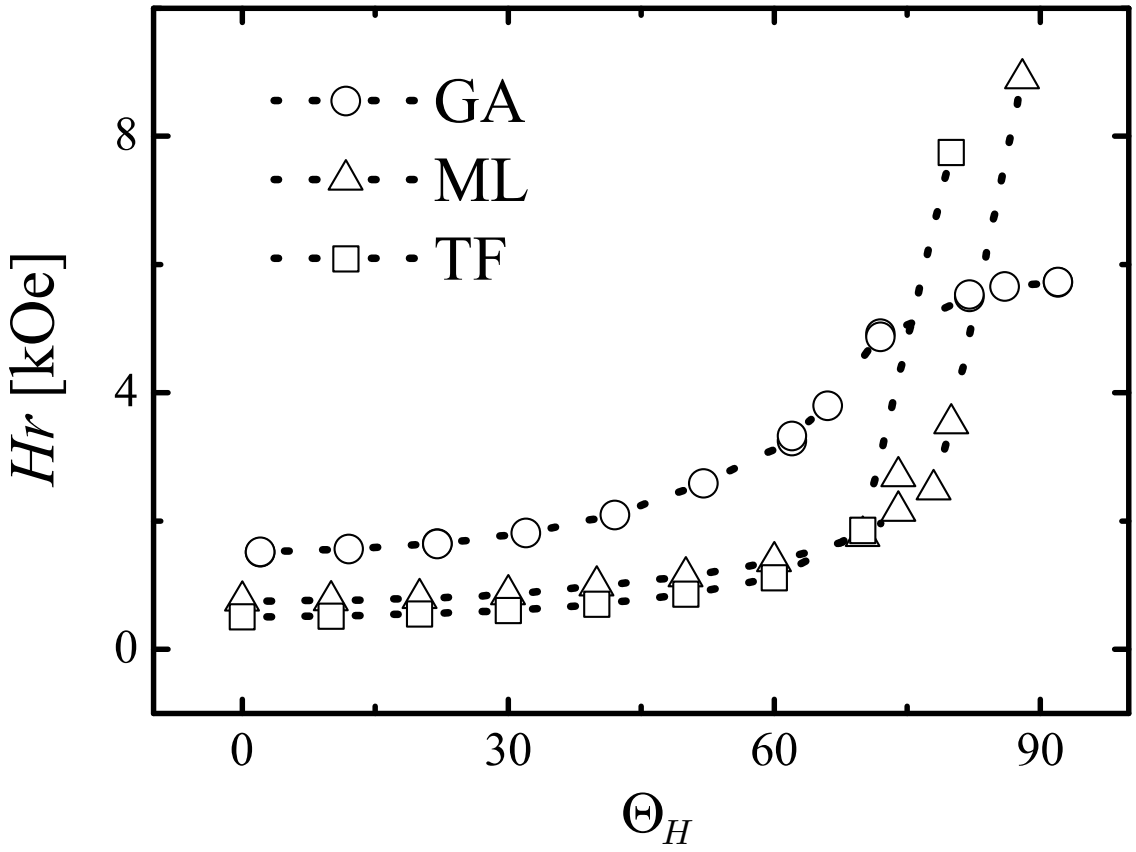

Figura 4.4: Campo de resonancia en función del ángulo azimutal. Con GA denotamos a la aleación granular, con ML a la multicapa y con TF a la película delgada de **Co**Fe de referencia.

Por otro lado sabemos que la resonancia magnética ocurre cuando se satisface la siguiente ecuación en las posiciones de equilibrio de **M** [75]:

$$\omega_{res} = \frac{\gamma}{M\,\mathrm{sen}\,\Theta}\left(F_{\Phi\Phi}F_{\Theta\Theta} - F_{\Phi\Theta}^2\right)^{1/2}, \tag{4.3}$$

En particular, en el estudio en la geometría fuera del plano sólo se pueden obtener soluciones analíticas de la expresión 4.3 para las siguientes orientaciones de **M**

$$\frac{\omega}{\gamma} = \begin{cases} \left[H_{\|}(H_{\|} + 4\pi M_{eff})\right]^{1/2} & \text{para } \Theta = \frac{\pi}{2} \\ H_{\perp} - 4\pi M_{eff} & \text{para } \Theta = 0 \end{cases}, \tag{4.4}$$

donde $H_{\|}$ y $H_{\perp}$ son los campos de resonancia para $\Theta = \frac{\pi}{2}$ y $\Theta = 0$ respectivamente, manteniendo φ fijo. La magnetización efectiva, M_{eff}, está dada por

$$4\pi M_{eff} = 4\pi M\left[f + (1-3\varepsilon)(1-f)\right]. \tag{4.5}$$

En el caso de partículas esféricas $\varepsilon = \frac{1}{3}$ y la magnetización es $4\pi\, M_{eff} = 4\pi\, Mf$. Las expresiones (4.4) para $H_{\perp}$ y $H_{\|}$ son similares a las correspondiente a las películas delgadas con un factor f acompañando a la M.

La magnetización efectiva de las muestras, calculadas después de ajustar la dependencia angular de las campos de resonancia se muestra en la Tabla 4.1. Los resultados obtenidos por FMR muestran que las aleaciones granulares están compuestas por agregados casi esféricos para $x < 0{,}30$. Esta conclusión se deduce de la comparación entre la f calculada y el valor nominal medido por microscopia SEM. Para concentraciones grandes de **Co**Fe, la dependencia angular del espectro de FMR sugiere que las partículas coalescen.

	Muestra	$M_{eff}[\text{emu/cm}^3]$	f_{calc}	f_{SEM}
Película delgada **Co**Fe		1470,9		
GA	$x = 0{,}314$	383(5)	0,29	0,229
	$x = 0{,}197$	148(10)	0,11	0,137
ML	$t_{\mathbf{Co}\text{Fe}} = 5$ Å, $H_{dep} = 0$ Oe	320(10)		
	$t_{\mathbf{Co}\text{Fe}} = 5$ Å, $H_{dep} = 350$ Oe	673(5)		
	$t_{\mathbf{Co}\text{Fe}} = 7{,}5$ Å, $H_{dep} = 0$ Oe	754		
	$t_{\mathbf{Co}\text{Fe}} = 7{,}5$ Å, $H_{dep} = 350$ Oe	954		

Tabla 4.1: Magnetización efectiva (M_{eff}) de muestras seleccionadas. El factor de llenado de volumen f_{SEM} se obtiene de la concentración de aleación magnética, medido por microscopia electrónica de barrido, f_{calc} es calculado a partir de la ecuación (4.5) suponiendo agregados esféricos.

Las muestras de multicapas muestran una magnetización efectiva más grande que la de las aleaciones granulares, y esto se atribuye a una mayor anisotropía de forma: en las

multicapas los agregados son esferoides oblados en contraste con los de las aleaciones donde son prácticamente esféricos. A medida que H_{dep} aumenta y la capa magnética es más gruesa se observa un notable crecimiento de la anisotropía de forma. Sin embargo, aún en la muestra M3-MLs7, la magnetización efectiva es más pequeña que la de una película delgada, indicando que la componente magnética no tiene aún la anisotropía de una capa continua. En una película delgada se espera que ε tienda a 0 y por lo tanto que M_{eff} sea igual a M. Sólo para $t_{\mathbf{Co}\mathrm{Fe}} > 15$ Å los espectros de FMR revelan una capa continua totalmente formada [76]. Estos resultados tienen que ser considerados cuidadosamente, porque la coalescencia de los agregados puede no ser vista a la concentración correcta del material magnético por medio de FMR. La contribución de todas las partículas se puede llegar a ver en los espectros como una sola gran línea si los campos de resonancia de ellas son muy parecidos y si el ancho de las líneas no permite resolver las resonancias individuales.

4.3.3. Transporte eléctrico

En esta sección presentamos y discutimos los resultados de las mediciones de transporte para los dos sistemas estudiados.

4.3.3.1. Aleaciones granulares

En la figura 4.5 graficamos las resistividades de las películas de aleación granular en función de la concentración de **Co**Fe, x, a temperatura ambiente. Las curvas muestran tres comportamientos diferentes dependiendo de los valores de x. A concentraciones bajas (LC), $0{,}05 \leq x \leq 0{,}11$, la resistividad aumenta monótonamente desde 87 hasta 281 $\mu\Omega$cm. Sobre el final de la zona LC y el comienzo de la zona de concentraciones intermedias (IC), $0{,}1 \leq x \leq 0{,}17$, se puede observar una disminución importante en la resistividad. En la región IC la resistividad, ρ, se mantiene prácticamente constante alrededor de 120 $\mu\Omega$cm. Finalmente, para altas concentraciones (HC) ($0{,}21 \leq x \leq 0{,}26$) la resistividad vuelve a mostrar un aumento hasta alcanzar un valor máximo de 345 $\mu\Omega$cm a $x = 0{,}26$. Con el objetivo de explicar este comportamiento, tenemos que considerar cómo es el transporte eléctrico en esta clase de materiales. En las aleaciones granulares las fuentes principales de resistividad son tres: la resistividad del metal de la matriz, ρ_{Ag}, la correspondiente al material de los agregados, $\rho_{\mathbf{Co}\mathrm{Fe}}$, y la contribución proveniente de la dispersión dependiente del *espín* en la interfaz partícula-matriz, $\rho_{\mathrm{Ag}/\mathbf{Co}\mathrm{Fe}}$.

Basándonos en la teoría de Levy y Zhang [11] descripta en el apartado 1.5.2 y asumiendo que tenemos una distribución al azar de partículas en la matriz de plata, podemos inferir la siguiente relación

$$\rho_{\mathbf{Co}\mathrm{Fe}} = \alpha S_{tot}, \tag{4.6}$$

donde α es una constante que depende de la razón entre la dispersión dependiente e independiente del *espín*. Ahora, si consideramos que todos los agregados tienen el mismo

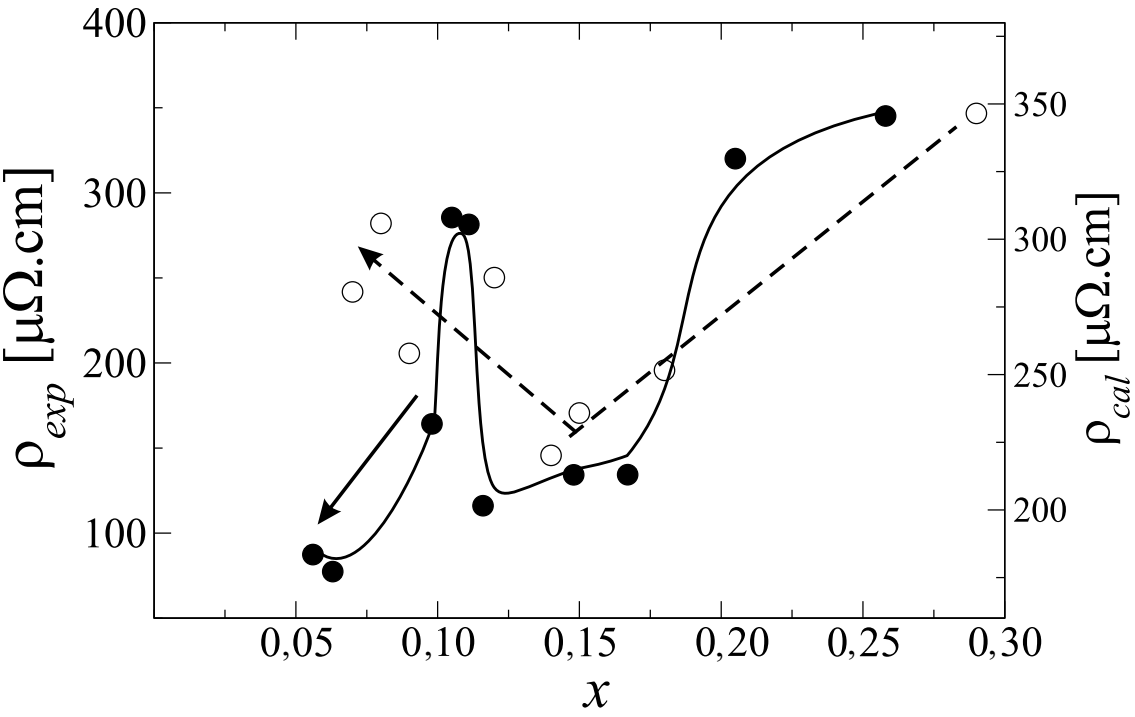

Figura 4.5: Resistividad (•) medida y (◦) calculada de las aleaciones granulares en función de la concentración de **Co**Fe a T = 293 K. Los valores calculados son obtenidos de la ecuación (3.3). La línea punteada y continua son guías para los ojos.

volumen, S_{tot} se puede relacionar con el volumen medio de los mismos, $< V_{cl} >$, y con su densidad, n_{cl}. La ecuación (4.6) la podemos expresar en términos de estos parámetros como

$$\rho_{\mathbf{Co}\mathrm{Fe}} = \alpha V_{cl}^{2/3} n_{cl}. \tag{4.7}$$

Las resistividades medidas son mucho más grandes que las reportadas para películas delgadas de Ag ($\sim$ 7,6 $\mu\Omega$cm) y de **Co**Fe ($\sim$ 16 $\mu\Omega$cm) [77]. Por ello ajustamos los datos experimentales solo considerando la contribución interfacial a la resistividad. En la figura 4.5 mostramos la resistividad normalizada, ρ_{cal}, calculada a partir de la ecuación (4.7) tomando el parámetro α fijo. V_{cl} y n_{cl} son obtenidos de las mediciones de magnetorresistencia, como será explicado más adelante. Como se puede observar no encontramos una concordancia cuantitativa con las mediciones en todo el rango de concentraciones, pero vemos que las dos curvas muestran el mismo comportamiento para $x > 0{,}10$. Para concentraciones menores hay una clara discrepancia ya que la resistividad calculada disminuye al crecer x, mientras que la ρ medida aumenta. Estos resultados podrían sugerir que la contribución a la resistividad que proviene de la dispersión interfacial pierde su importancia relativa respecto de las otras fuentes de dispersión. En el apartado 1.5.2 damos una explicación para este efecto.

La magnetorresistencia de estas muestras fue medida con campos magnéticos de hasta 1,5 T y a temperatura ambiente. El cociente de magnetorresistencia lo definimos de la siguiente forma

$$MR(H) = \frac{\rho(H=0) - \rho(H)}{\rho(H=0)}, \tag{4.8}$$

esta definición la usaremos a lo largo de todo el capítulo.

Como podemos ver en la figura incluida dentro de la 4.6, la saturación magnética no es alcanzada con estos campos. Por lo tanto realizamos una estimación de la *MR* en situación de saturación (MR_o), ajustando la MR medida usando la siguiente ecuación

$$MR(H) = MR_o \int f(V_c)\mathcal{L}^2\Big(\frac{M_s V_c H}{k_B T}\Big) dV_c. \tag{4.9}$$

El uso de la función de Langevin para ajustar los valores de *MR* a temperatura ambiente presupone que todos los agregados que contribuyen a la MR son superparamagnéticos a esta temperatura. En la figura 4.6 mostramos la MR_o como función de x. La forma de la curva es la esperada para este tipo de sistemas.

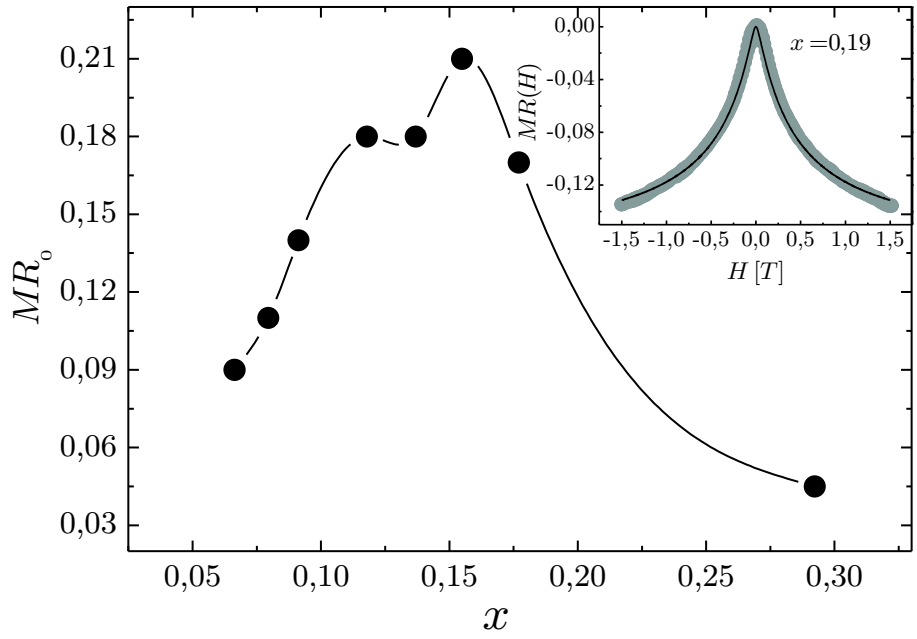

Figura 4.6: MR_o en función de x. La figura incluida muestra una típica curva de *MR* y su correspondiente ajuste.

Para valores de x chicos la *MR* aumenta con la concentración de **Co**Fe debido al aumento en el número de centros de dispersión dependientes del *espín* con alta relación superficie/volumen. Hasta concentraciones intermedias MR_o continúa creciendo. A partir

de aquí, a medida que aumenta el número de agregados con x aparece una competencia con el crecimiento del tamaño de los mismos y la aparición de zonas con acoplamiento ferromagnético y la consecuente pérdida del superparamagnetismo. Debido a esta transición al comportamiento ferromagnético, la distribución al azar de los momentos magnéticos responsable de la GMR es suprimida y MR_o alcanza un valor máximo para $x \approx 0{,}16$. También la reducción de la razón entre superficie y volumen a medida que el volumen de las partículas aumenta con x, provoca una disminución de la GMR.

Más allá del máximo, los efectos que conducen a la disminución de la GMR prevalecen y MR_o comienza a reducirse. Para $x > 0{,}20$ la componente ferromagnética se hace mucho más grande y la relación superficie-volumen cae abruptamente y comienza la coalescencia de los agregados, cuyo umbral ha sido estimado para valores de x entre 0,2 y 0,33 [78]. Nuestro valor máximo de MR_o concuerda con los reportados por F. Parent *et al.* [79] y V.C. Kravets *et al.* [80], pero es menor que los obtenidos por otros autores [9, 81], donde el máximo valor se da en $x \approx 0{,}24$. La posición del mismo dependerá fuertemente de la técnica de deposición, las condiciones de crecimiento y del espesor de la película delgada. De los datos de magnetorresistencia calculamos el diámetro medio efectivo de partícula, d_{cl}, utilizado en la ecuación (4.7). Asumiendo que los agregados son esféricos, d_{cl} se obtiene de la ecuación (4.9). En la figura 4.7 se muestra el diámetro medio en función de x. Un aumento monótono de d_{cl} con la concentración de **Co**Fe es observado de acuerdo a resultados de magnetización. Sin embargo, los diámetros medios obtenidos podrían estar sobreestimados, ya que los agregados más pequeños se saturan magnéticamente a campos más intensos que 1,5 T. Entonces sus efectos sobre la curva $MR(H)$ pueden no estar tenidos en cuenta. Nuestra estimación de d_{cl} es una cota máxima para el mismo. La densidad de agregados, n_{cl}, usada en el cálculo de la resistividad, se obtiene de $n_{cl} = x/V_{cl}$. Hay que tener en cuenta que esta fórmula es estrictamente correcta cuando la fracción ferromagnética o la cantidad de partículas acopladas es despreciable. Entonces, a medida que x aumenta más allá de 0,16 y el número de agregados multidominio y/o acoplados se hace importante, la determinación de n_{cl} pierde precisión.

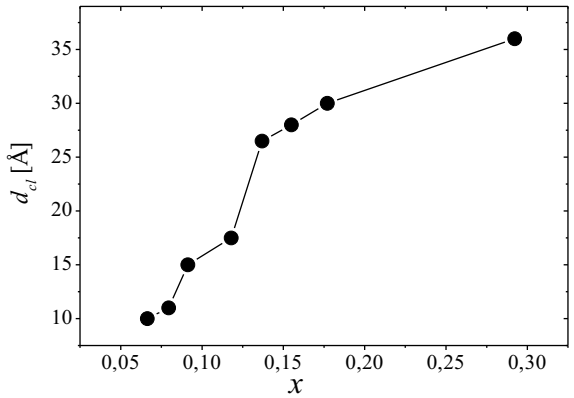

Figura 4.7: Diámetro medio calculado, d_{cl}, *vs.* x.

4.3.3.2. Aleación en multicapas

En la figura 4.8 mostramos la resistividad CIP en función de x y t_{Ag} para las muestras MLs5, medidas a temperatura ambiente. Podemos observar una gran diferencia con la resistividad medida en las aleaciones granulares. Para analizar los datos obtenidos utilizamos un modelo semiclásico derivado de la teoría propuesta por E.H. Sondheimer [39] y ulteriores modificaciones que fueron explicadas en la subsección 1.4.1.1 para la conductividad de películas delgadas.

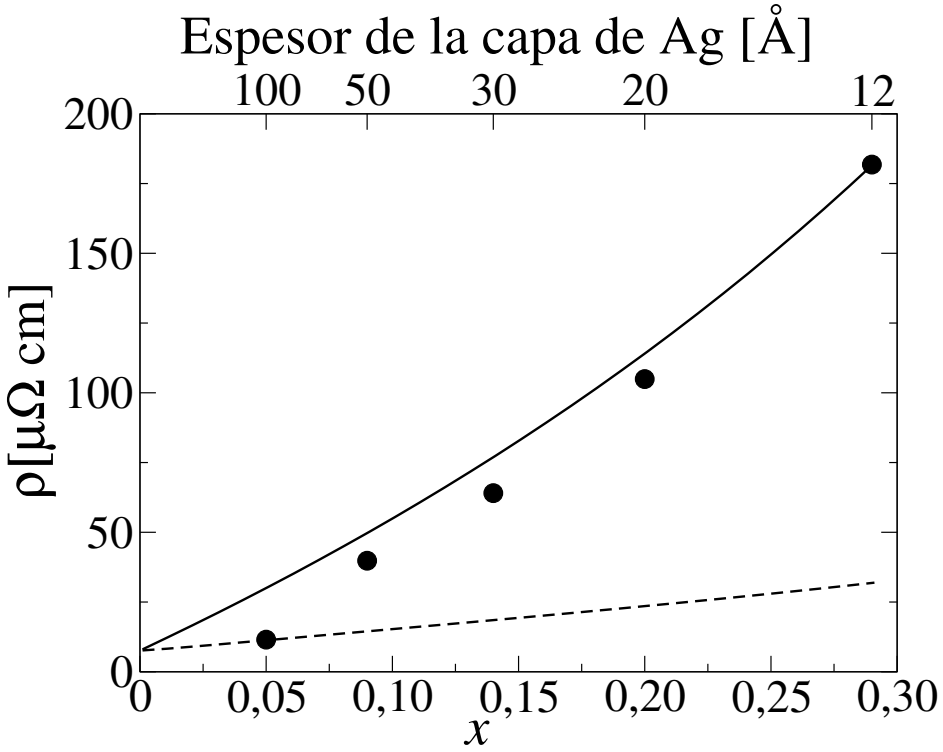

Figura 4.8: Resistividad de las aleaciones granulares crecidas en multicapa (Ag t_{Ag}/**Co**Fe $t_{\mathbf{Co}Fe}$ = 5 Å), medida a temperatura ambiente en función de x y del espesor de Ag. Las líneas continua y punteada son calculadas a partir de las ecuaciones correspondientes a los modelos CPP y CIP.

Con el objetivo de describir nuestro sistema en el marco de esta teoría, tenemos que tener en cuenta dos aspectos. En la sección 4.3.1 mostramos que las capas de CoFe de las muestras MLs5 son discontinuas. Entonces podemos suponer que los agregados magnéticos embebidos en Ag, juegan el rol de una interfaz CoFe/Ag muy rugosa. Los electrones serán dispersados en forma aleatoria. En este sentido, proponemos que las capas de **Co**Fe son interfaces que dispersan en forma difusiva y por lo tanto los electrones perderán en ellas su coherencia de fase. La validez de esta propuesta depende del espesor de las capas

de Ag. Estas capas tienen que tener un espesor lo suficientemente grande con respecto al de las capas magnéticas como para que los electrones fluyan principalmente por las capas de Ag y la conductancia a través de las capas de CoFe sea despreciable.

Las mediciones fueron hechas sin campo aplicado por lo tanto tenemos una alineación al azar de los agregados. Los portadores con ambas polarizaciones sufrirán en promedio la misma dispersión dependiente del *espín* y podemos, entonces, proponer una corriente efectiva no polarizada. Tomando esto en cuenta, podemos usar el modelo propuesto por P.F. Carcia y A. Suna [82]. Escribimos la resistividad de la siguiente manera

$$\frac{1}{\rho_{CIP}} = \frac{1}{\rho_{\mathrm{Ag}}}\left[1 - \frac{\lambda_{\mathrm{Ag}}}{t_{\mathrm{Ag}}}(I+J)\right], \tag{4.10}$$

donde

$$I = \frac{3}{2}\int_0^1 d\mu\mu(1-\mu^2)\left(1 - e^{-\frac{\lambda_{\mathrm{Ag}}}{t_{\mathrm{Ag}}}\mu}\right)^2,$$

$$J = \frac{3}{2}\int_0^1 d\mu\mu(1-\mu^2)\left(1 - e^{-\frac{\lambda_{\mathrm{Ag}}}{t_{\mathrm{Ag}}}\mu}\right)e^{-\frac{\lambda_{\mathrm{Ag}}}{t_{\mathrm{Ag}}}\mu},$$

donde λ_{Ag}, ρ_{Ag} son el camino libre medio y la resistividad en volumen de Ag, respectivamente. Esta ecuación es similar a la dada en la referencia [82] asumiendo la dispersión en las interfaces totalmente difusiva.

Cuando el espesor de las capas de Ag comienza a ser comparable con el de las capas de **Co**Fe, el modelo descripto anteriormente no es válido. Los electrones no pueden fluir fácilmente a través de la Ag y son dispersados por los agregados magnéticos. En estas condiciones ya no se puede considerar que la resistividad está dada únicamente por la Ag, sino que la dispersión dependiente del *espín* en las interfaces **Co**Fe/Ag juegan también un rol protagonista. En este límite proponemos que el transporte se comporta como el observado en la geometría CPP pero con una interfaz efectiva CoFe/Ag. En este marco, la resistencia de las muestras debe calcularse sumando la resistencia de las capas de Ag y la resistencia de la interfaz de los agregados magnéticos como resistencias en serie. Podemos expresar la resistividad de la siguiente forma

$$\frac{1}{\rho_{CPP}} = \frac{1}{\rho_{\mathrm{Ag}} + \frac{R_{\mathrm{CoFe}}}{t_{Ag}}}, \tag{4.11}$$

donde $R_{\mathbf{Co}\mathrm{Fe}}$ es la resistencia que surge de la dispersión de los electrones en las interfaces agregados/matriz. En esta última ecuación también asumimos que los electrones de ambas polarizaciones sufren la misma dispersión dependiente del *espín* a lo largo de toda la muestra. A temperatura ambiente aparecen dos fuentes adicionales de resistividad, las

que corresponden a los fonones y a los magnones respectivamente. La dispersión de los magnones en las interfaces y dentro del material magnético provocan una mezcla de las polarizaciones de *espín* en la corriente eléctrica. En nuestro caso esta contribución se hace despreciable debido a que no hay una polarización privilegiada en las muestras [77]. Por otro lado la dispersión de los fonones podría aumentar la resistividad de la Ag. Sin embargo la ρ_{Ag} de estas películas delgadas crecidas por *sputtering* es mucho más grande que la resistividad de la Ag pura, por lo tanto el peso de la variación con la temperatura es despreciable frente al valor base.

La dependencia de la resistividad con el espesor de Ag[3] calculado para la geometría CIP y CPP (ecuaciones (4.10) y (4.11)) se muestra en la figura 4.8. Podemos ver que los datos experimentales siguen un comportamiento tipo ρ_{CPP}, excepto para las muestras muy diluídas (t_{Ag} = 100 Å) donde los datos se desvían de dicha curva. Para estos espesores de Ag la resistividad está más cercana al comportamiento de la plata en volumen donde parece ser más apropiado considerar ρ_{CIP}. Los resultados evidencian que la resistividad de las MLs surge principalmente de la dispersión en las interfaces **Co**Fe/Ag, de manera similar a lo encontrado en los resultados de las aleaciones granulares.

En la figura 4.9 graficamos ρ_{sat} en función de H_{dep} a 4,2 K y H = 1,5 T para las muestras correspondientes a los dos espesores de **Co**Fe estudiados. En ambas series de muestras, observamos que la resistividad decrece a medida que H_{dep} aumenta. Este comportamiento es coherente con el aumento del tamaño de los agregados con H_{dep} observado en las mediciones de magnetización y esto está relacionado con la disminución de la superficie interfacial total **Co**Fe/Ag. En las muestras MLs7 la resistividad disminuye apreciablemente a un valor cercano al de la plata crecida por *sputtering* ($\approx$ 7,5 $\mu\Omega$cm) cuando H_{dep} pasa de 0 Oe a 100 Oe y se mantiene constante en ese valor para 350 Oe. Esta tendencia podría indicar que las contribuciones más importantes a la resistividad no cambian más allá de H_{dep} = 100 Oe. Sin embargo, como explicamos en los resultados de FMR, la aplicación de un campo durante la deposición provoca un cambio en la forma de las partículas y un aumento de sus tamaños. Esta aparente contradicción puede ser clarificada si asumimos que para estos valores de H_{dep} ocurre una transición que podemos llamar de coalescencia eléctrica. Al coalescer los agregados forman caminos de baja resistencia en las capas magnéticas evitando que los portadores crucen las interfaces que son muy resistivas y también, la coalescencia, favorece una disminución drástica de la cantidad total de superficie interfacial debido a la unión de los agregados. Estos dos hechos reducen de forma apreciable la mayor fuente de resistividad que son las interfaces, por lo tanto a partir de la coalescencia, los cambios topológicos producidos por el campo H_{dep} no afectan a la resistividad de las muestras.

[3]Los valores de ρ_{Ag} en volumen y de $R_{\mathbf{Co}\mathrm{Fe}}$ para las interfaces Ag/CoFe son tomados de la tesis doctoral de J. Duvail, Universite Paris-Sud. El valor de $R_{\mathbf{Co}\mathrm{Fe}}$ usado en nuestros ajustes es un 8 % del valor estimado por J.L. Duvail. Este valor está indicando que la dispersión no es tan importante como en la geometría CPP. Esto se puede entender si consideramos que una fracción de electrones sigue fluyendo solamente a través de la plata.

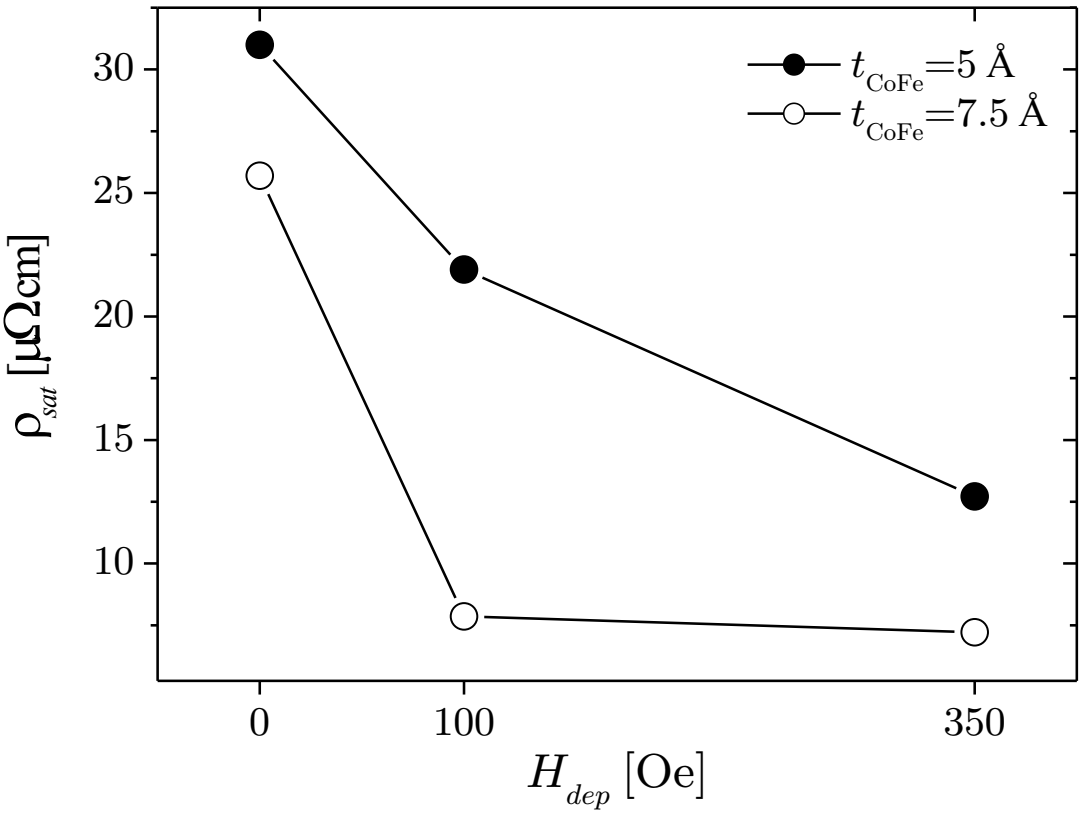

Figura 4.9: Resistividad de saturación ρ_{sat} *vs.* H_{dep} para las muestras MLs5 y MLs7, medida a 4,2 K.

En la figura 4.10 mostramos la curva de magnetorresistencia para ambas series y para diferentes H_{dep}. Podemos ver que en nuestras muestras el campo de saturación es menor a 1,5 T (ver la figura incluida en 4.10). Para la serie MLs5, observamos que la razón de MR es constante cono función de H_{dep}. Por otro lado, las muestras MLs7 presentan valores más pequeños de MR que decaen rápidamente con H_{dep}. Estos valores más bajos de *MR* indican que el material magnético está formado por agregados más grandes [51, 83]. La fuerte disminución de la *MR* para H_{dep} = 350 Oe la asociamos a la coalescencia de las partículas magnéticas [51]. Los valores de MR reportados en trabajos anteriores [51, 36] para sistemas donde el Co forma una capa continua son similares a los medidos en la muestra M3-MLs7 ($MR \approx 0,07$).

A partir de las mediciones de resistividad y magnetorresistencia de las aleaciones granulares en multicapas, podemos hacer el siguiente análisis. La principal fuente de resistencia proviene de la dispersión en las interfaces Ag/**Co**Fe, y depende fuertemente de la razón entre el espesor de la capa magnética y la de Ag. Por otro lado la GMR viene dada principalmente por la dispersión dependiente del *espín* intracapa. Podemos asegurar

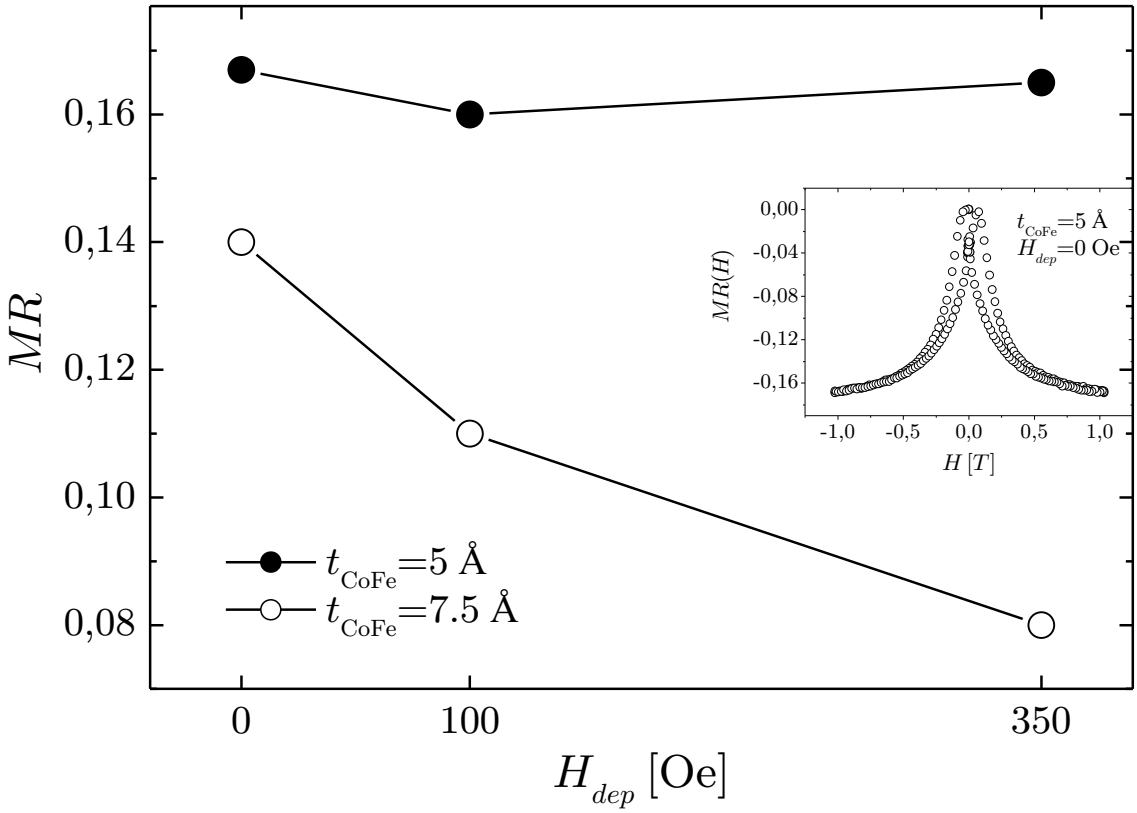

Figura 4.10: MR *vs.* H_{dep} para las multicapas, medidas a 4,2 K. En la figura incluida mostramos una típica curva de magnetorresistencia.

ésto al comparar nuestros datos con los de la literatura, donde se muestra que los valores de *MR* para multicapas Ag/Co con $t_{\mathrm{Ag}} \approx 50$ Å son del orden de 0,08 [36]. Estos valores son más pequeños que nuestros resultados, salvo para la muestra M3-MLs7, la cual presenta una GMR similar a la de la referencia anterior. En este sentido esta última muestra se comporta como una multicapa con las capas magnéticas continuas. Las muestras MLs5 no muestran grandes cambios en la MR aún cuando su resistividad presenta grandes variaciones. Las mediciones de resistividad ponen en evidencia la topología de los agregados y son muy sensibles a cambios en su disposición y tamaño. Por otro lado, la MR "sensa" el cambio de orientación magnética de las partículas.

Con respecto a la coalescencia, observamos que las capas de **Co**Fe tienden a ser continuas cuando H_{dep} aumenta. El valor de H_{dep} para el cual se encuentra el umbral de coalescencia depende de la magnitud que se está midiendo. En particular, en las mediciones de resistividad signos de coalescencia se pueden observar para las M2/M3-MLs7, mientras que de las mediciones de magnetorresistencia vemos indicios pero no podemos afirmar que este umbral se haya alcanzado.

4.4. Conclusiones

Hemos estudiado experimentalmente las propiedades de magnetotransporte de películas delgadas de aleaciones granulares **Co**Fe embebidas en Ag y de multicapas formadas por capas de Ag alternadas con capas de **Co**Fe-Ag. En particular, investigamos el transporte electrónico en estos sistemas ya que están formados por agregados monodominio nanoscópicos. Topológicamente las muestras se diferencian entre sí puesto que en las aleaciones granulares los agregados están dispuestos al azar en las 3 dimensiones, mientras que en las multicapas, los agregados están dispuestos en forma aleatoria en cada capa de aleación (2-D). El comportamiento monodominio se puso en evidencia a través de mediciones de magnetización ZFC-FC. Cambiando la concentración de la aleación magnética se cambió el tamaño y concentración de los agregados en las aleaciones granulares. En cambio en las multicapas, la modificación de tamaño y concentración se logró a través de la aplicación de un campo magnético durante el crecimiento de las muestras y cambiando el espesor de las capas de **Co**Fe. Las medidas de resonancia ferromagnética nos permitieron concluir que las partículas en las aleaciones granulares son cuasi-esféricas, mientras que en las multicapas son elipsoidales. También se pudo observar, con FMR, un aumento de la anisotropía de forma con H_{dep} indicando la tendencia progresiva de la forma de los agregados a ser más elipsoidales.

La dependencia de la resistividad eléctrica con la concentración de **Co**Fe en ambos tipos de muestras pone en evidencia las diferencias topológicas de las mismas. Con $x >$ 0,10, el comportamiento de la resistividad de las aleaciones concuerda cualitativamente con el modelo propuesto por S. Zhang y P. Levy. Para concentraciones menores a 0,10, los datos experimentales no se ajustan a este modelo. En la literatura, se atribuye este resultado a efectos de tamaño.

En las multicapas estudiamos el transporte en dos límites diferentes dependiendo del espesor de la capa de Ag. En uno de ellos se modela la corriente eléctrica siguiendo el modelo de Sondheimer. En el otro, proponemos que la mayor contribución a la resistividad viene dada por la dispersión electrónica en la interfaz Ag/**Co**Fe. Para los espesores estudiados de Ag, los datos experimentales se comportan cualitativamente como en la geometría CPP. Sólo para t_{Ag} = 100 Å, la curva muestra un comportamiento cercano al modelo CIP.

Comparamos la *MR* de ambos tipos de sistemas tomando muestras con tamaños de partículas similares. Encontramos que la GMR es sistemáticamente más grande en las aleaciones granulares. En las multicapas observamos que la GMR decrece a medida que H_{dep} aumenta, indicando la existencia de interacciones entre agregados y/o coalescencia.

Capítulo 5

Conductividad eléctrica en multicapas CoAg/Ag

5.1. Introducción

Como hemos visto en el capítulo 4, es posible crecer una aleación granular magnética desordenada en el plano pero ordenada en la dirección de crecimiento, en particular formando una multicapa con un metal noble actuando como espaciador (figura 4.1(b)). También discutimos que dependiendo de la técnica de crecimiento, de la cantidad de material magnético depositado y/o de tratamientos térmicos posteriores es posible cambiar el tamaño y forma de los agregados magnéticos dentro de la capa desordenada. De esta forma se puede lograr que las partículas alcancen la coalescencia topológica, o sea que comiencen a conectarse entre ellas.

De las mediciones de las propiedades magnéticas se puede observar que a medida que la distancia media entre las partículas va disminuyendo, éstas comienzan a interactuar vía intercambio directo y dejan de comportarse de forma superparamagnética. Al llegar a la coalescencia el tamaño medio de los agregados aumenta debido a la unión con otros lo que conduce a la formación de dominios y a un comportamiento ferromagnético clásico. Por otro lado el comportamiento de la conductividad eléctrica presenta cambios cuando la coalescencia tiene lugar. En la literatura podemos encontrar estudios experimentales sobre esta transición de una capa granulada a una capa continua en multicapas pero focalizados en los efectos sobre la GMR [51]. Hasta el momento no había estudios en la literatura en los que se determinara cuáles son los mecanismos microscópicos que entran en juego en el umbral de coalescencia.

Como vimos en el capítulo anterior, desde un punto de vista fenomenológico, para un espesor fijo la conductividad va cambiando a medida que la capa de aleación va coalesciendo. De las mediciones pudimos observar que, como mostramos en la figura 5.1[1], la

[1]Este gráfico es el mismo que el 4.9 pero aquí mostramos la conductividad de saturación en lugar de la

conductividad para las muestras crecidas bajo campos de 100 Gauss, no es muy distinta de aquellas crecidas a 350 Gauss. Por una lado esto muestra que aunque los campos de deposición sean mayores a 100 Gauss, la dispersión debida a las interfaces de los agregados con la Ag no cambia. Por otro lado esta conductividad de saturación tiene un valor muy cercano a la conductividad residual de la Ag crecida por *sputtering*, indicando que la resistividad efectiva proveniente de las interfaces es despreciable, como es esperable en una multicapa magnética de 50 Å de espesor de Ag en la geometría CIP. Esto lo podemos entender si tenemos en cuenta que en el límite de *percolación* la cantidad de superficie interfacial Ag/**Co**Fe cae abruptamente debido a la incipiente unión de los agregados. También aparecen caminos de conducción a través de las partículas de **Co**Fe que provocan que los electrones fluyan sin atravesar las interfaces Ag/**Co**Fe.

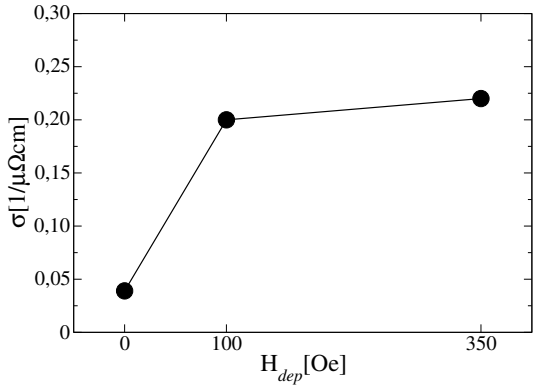

Figura 5.1: Conductividad de saturación para la serie de multicapas con espesor de **Co**Fe de 7,5 Å (Capítulo 4).

En este capítulo focalizamos en el estudio, desde un punto de vista microscópico, del comportamiento de este tipo de multicapas. Para lograr ésto utilizamos nuevamente la ecuación semiclásica de Boltzmann en la aproximación de tiempo de relajación. En este estudio usamos estructuras de bandas reales con el objetivo de cuantificar la contribución de las bandas electrónicas a través de la velocidad semiclásica. Por otro lado proponemos un tiempo de relajación que tiene en cuenta tanto los efectos de *percolación* como la dispersión difusiva debido a las capas de aleación sobre los electrones de conducción. En este capítulo contribuimos a entender qué pasa en esta transición. Para ésto mostramos cómo se comportan la conductividad eléctrica alrededor del umbral de coalescencia para una multicapa granular $(Co_{1-x}Ag_x)_3/Ag_7$. Analizamos cómo la estructura de bandas se ve modificada dependiendo del tamaño de los agregados de Co y del grado de conexión entre ellos. También, proponemos una expresión para el tiempo de relajación de estos sistemas que depende de la densidad de estados localizados de tipo *d* de Co en el nivel

resistividad.

de Fermi.

La contribución de las bandas electrónicas al transporte eléctrico es tomada en cuenta de forma explícita a través de las velocidades semiclásicas. El tiempo de relajación, τ, es calculado siguiendo lo expuesto en 1.2.1.2, en donde se propone que τ es inversamente proporcional a la densidad de estados parcial *d* en el nivel de Fermi.

A los efectos de hacer los cálculos, los sistemas estudiados son periódicos en las tres dimensiones, y cada celda unidad contiene un agregado de Co. La dirección de crecimiento es la (100) dentro de una estructura base tipo FCC. En la tabla 5.1 mostramos la celda unidad de cuatro de los cinco sistemas estudiados. El quinto es la multicapa Co_3/Ag_7. En todos estos sistemas las direcciones *x* e *y* son isotrópicas. Los sistemas (a) y (b) contienen agregados de Co no coalescidos, en tanto, (c) y (d) tienen agregados del mismo tamaño que (b) pero están conectados entre sí, simulando el comienzo de la coalescencia. En particular, el sistema (d) simula un mayor grado de conexión entre los agregados que el sistema (c). En la figura 5.2 podemos ver esquemas de los sistemas estudiados.

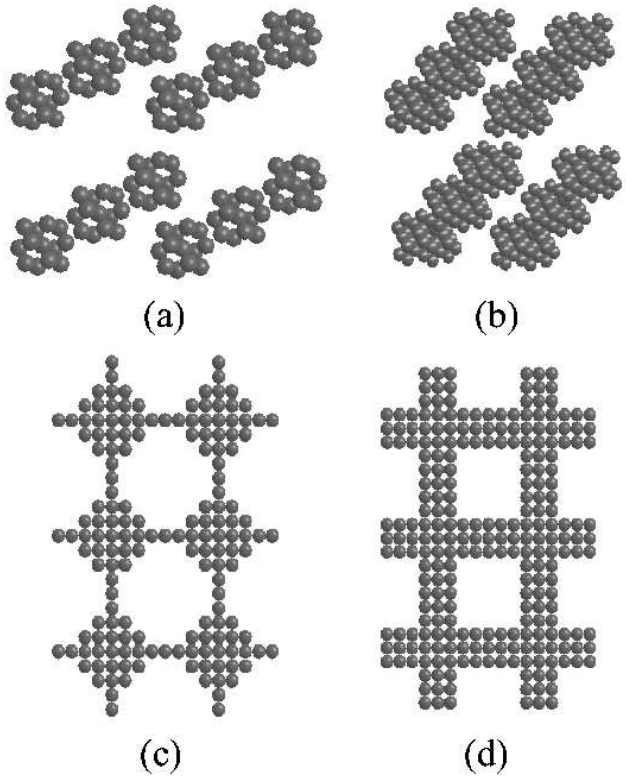

Figura 5.2: Vistas esquemáticas de los sistemas estudiados. A los sistemas (a) y (b) los presentamos en perspectiva mientras que de (c) y (d) mostramos una vista superior de las capas de aleación granular.

	Sistema	x_{Co}(at.)	π
(a)	$(Co_{13}Ag_{83})_3/Ag_7$	0.14	-
(b)	$(Co_{33}Ag_{63})_3/Ag_7$	0.34	-
(c)	$(Co_{43}Ag_{53})_3/Ag_7$	0.45	0.20
(d)	$(Co_{59}Ag_{37})_3/Ag_7$	0.61	0.60

Tabla 5.1: Multicapas estudiadas. x_{Co}(at.) es la concentración de átomos de Co en la zona de la aleación granular. π es el cociente entre la sección de los Co que interconectan a los agregados y la máxima sección de los agregados perpendicular a la dirección de crecimiento.

5.2. Método de Cálculo

5.2.1. Estructura electrónica

Con el objetivo de obtener la estructura electrónica utilizamos un *Hamiltoniano* de enlaces fuertes con orbitales *s*, *p* y *d* para los átomos de Co y para los de Ag que son primeros vecinos de los cobaltos; para el resto de los átomos de plata usamos sólo orbitales de tipo *s*. Chequeamos la validez de esta simplificación en la cantidad de orbitales usados, comparando los momentos magnéticos de los átomos de Co de las interfaces con los de un sistema similar pero que contiene todos los orbitales. Desde el punto de vista de la conductividad eléctrica es razonable hacer ésto porque los portadores de corriente en Ag son principalmente los electrones de simetría *s*, de tal manera que no perdemos validez en el cálculo al no considerar las bandas *p* y *d* de la plata. El magnetismo es obtenido a través de un término tipo *Hubbard* en la aproximación de Hartree-Fock. Los parámetros de sitio y los de salto son los correspondientes a los elementos en volumen. Por otro lado, los parámetros de salto que conectan átomos de distinta especie son tomados como la media geométrica de los parámetros de volumen de cada una de las especies [84]. Los parámetros utilizados se presentan en el apéndice C.3. Para hacer los cálculos de autoconsistencia usamos un barrido al azar de 20 puntos **k** en la primera zona de Brillouin.

5.2.2. Conductividad eléctrica

La conductividad eléctrica es obtenida a través de la ecuación de Boltzmann en la aproximación de tiempo de relajación como vimos en la sección 1.1.2 (ecuación (1.26)), pero teniendo en cuenta que el transporte está polarizado en *espín* y que la superficie de Fermi es atravesada por más de una banda electrónica. Por lo tanto reescribimos la ecuación (1.26) de la siguiente forma:

$$\sigma_{ii} = \frac{-e^2}{4\pi^3} \sum_{\nu s} \iint dS_F \; \tau(\mathbf{k})^s \, v_i^{\nu s}(\mathbf{k}) \, v_i^{\nu s}(\mathbf{k}) \frac{1}{|\nabla_{\mathbf{k}} \varepsilon|}, \tag{5.1}$$

donde s, ν son la proyección del *espín* y el índice de banda respectivamente, $\mathbf{k}$ pertenece a S_F y $\tau(\mathbf{k})^s$ es el tiempo de relajación dependiente del *espín* y de $\mathbf{k}$. Para el cálculo de la conductividad utilizamos una grilla homogénea de 20000 puntos $\mathbf{k}$ en la primera zona de Brillouin. Como nuestro sistema es tetragonal simple, nos quedamos con la dieciseisava parte de la primera zona que corresponde a 1490 puntos $\mathbf{k}$. En esta sección usamos el método de los tetraedros para realizar la integral.

Debido a que los distintos sistemas tienen diferente número de orbitales, la cantidad de estados en el nivel de Fermi no es la misma para todos ellos, por lo tanto las cantidades que presentamos son valores normalizados obtenidos tomando en cada caso el cociente de conductividades entre los sistemas que contienen agregados de Co y los mismos sistemas pero con los Co reemplazados por átomos de Ag. De esta forma comparamos cantidades que son independientes de la cantidad de orbitales de los sistemas en estudio.

5.2.2.1. Cálculo del tiempo de relajación

En el capítulo 3 utilizamos un tiempo de relajación isotrópico, independiente de $\mathbf{k}$ y que sólo depende de la proyección de *espín* ya que nuestro objetivo era calcular la GMR. La magnetorresistencia es una razón de resistividades (o de conductividades) y es razonable estudiarla tomando un tiempo de relajación promedio sin perder predictibilidad en el resultado. Pero si focalizamos nuestro estudio en la conductividad de los metales de transición propiamente dicha, es necesario también considerar cómo depende de $\mathbf{k}$ el tiempo de relajación.

Dentro de las multicapas estudiadas en este capítulo podemos distinguir dos regiones bien diferenciadas: las capas de metal noble, en nuestro caso Ag, y las zonas donde se encuentran los agregados magnéticos embebidos en Ag. Debido a esta estructura tan particular, el transporte es altamente inhomogéneo ya que la dispersión de electrones es muy distinta en ambas zonas. Es razonable suponer que la dispersión se dará solamente en las capas que contienen los agregados ya que la fuente más importante de resistencia proviene de la interfaz Ag/Co. La dispersión será totalmente difusiva, debido a que la aleación granular está totalmente desordenada en la capa, o sea que los electrones emergen de cada colisión sin ninguna dirección preferencial. Desde el punto de vista de los estados electrónicos, esta suposición lleva a plantear que los estados posibles después de la interacción pueden ser cualquiera de los que se encuentran en la superficie de Fermi. Por lo tanto las direcciones y velocidades con las cuales emergen los electrones están determinadas por la topografía de la superficie de Fermi.

La superficie de Fermi está formada principalmente por los estados conductores *s* de la plata y por los estados *d* del Co que son muy localizados y responsables del magnetismo en este metal. Como vimos en la sección 1.2.1.2 los electrones que son dispersados a estos estados localizados no contribuyen de forma apreciable a la conducción. Por otro lado la contribución *d* a la densidad de estados en el nivel de Fermi es mayor que la *s* y

por ende la probabilidad de que los electrones de tipo *s* sean dispersados a estos estados *d* es mayor que la dispersión hacia estados del tipo *s*.

La imagen que uno se hace es que a medida que los electrones fluyen dentro de la muestra se van topando con las capas donde se encuentran los agregados y la probabilidad de que un electrón sea dispersado y sufra una transición a uno de los estados localizados está dada por la razón

$$r = \frac{N_d}{N}, \tag{5.2}$$

donde N_d y N son la densidad de estados *d* de los Co y la densidad total, respectivamente, ambas evaluadas en el nivel de Fermi. Por otro lado los electrones que no son dispersados y los que son dispersados a estados conductores seguirán su camino hasta que se encuentren con otra capa de aleación. De esta forma podemos pensar que la distancia media recorrida por un electrón hasta que es dispersado a un estado localizado está dada por

$$\begin{aligned} \ell &= \frac{\sum_{i=0}^{\infty} t_{\mathrm{Ag}}\, i\, r^i}{\sum_{i=0}^{\infty} r^i} \\ &= \frac{t_{\mathrm{Ag}}}{r}, \end{aligned} \tag{5.3}$$

donde t_{Ag} es el espesor de las capas conductoras. El numerador de esta última ecuación da cuenta de la suma de probabilidades de que un electrón sea dispersado a un estado localizado después de haber recorrido *i* capas de la aleación. El denominador es el factor de normalización. De esta ecuación podemos ver que ℓ es inversamente proporcional a r. También podemos analizar los límites de esta ecuación, donde vemos que si r es cercano a 1, o sea una superficie de Fermi prácticamente compuesta por estados *d* del Co, ℓ tiende a t_{Ag} ya que los electrones son dispersados muy fuertemente a los estados localizados al toparse con la primera capa de aleación. Por el contrario si N_d es pequeña, la dispersión será débil y el camino libre medio tiende a infinito, o mejor dicho tomará un valor asintótico tendiendo al camino libre medio de la Ag.

Una vez obtenida esta distancia media que es la que recorren los electrones en la dirección perpendicular a las capas tanto en CPP como en CIP, el tiempo de relajación se puede obtener a través de la velocidad semiclásica en esa dirección de la siguiente forma

$$\tau^{\nu s}(\mathbf{k}) = \frac{\ell}{v_z^{\nu s}(\mathbf{k})}, \tag{5.4}$$

donde $\tau^{\nu s}(\mathbf{k})$ es independiente de la geometría de transporte.

Es importante recalcar que en este tiempo de relajación no estamos teniendo en cuenta la dispersión a otros estados *s*. Dependiendo de la geometría de medición la contribución a la resistividad de este término será más o menos importante. En CIP, esperamos que su contribución sea despreciable ya que los electrones son dispersados en un ángulo pequeño debido a que sus velocidades son principalmente paralelas a las capas. En cambio en CPP,

los electrones fluyen perpendicularmente a las capas, por lo tanto el ángulo de dispersión es mucho mayor. Debido a ésto los efectos de *backscattering* son importantes y como consecuencia en esta geometría la contribución $s-s$ no es despreciable.

Como dijimos con anterioridad nuestro objetivo es estudiar cómo la coalescencia influye en el comportamiento de la conductividad. En los diferentes sistemas propuestos se ve que la hibridización de las bandas depende del número de átomos de Co en las interfaces y del entorno de los mismos. Esto modifica la forma de las bandas en la superficie de Fermi y la densidad de estados, ambos efectos están presentes en nuestros cálculos. Seguramente tener en cuenta la dispersión $s-s$ nos llevaría a un valor más cercano al real para la conductividad pero las tendencias no cambiarían.

5.3. Resultados

5.3.1. Contribución de la estructura de bandas.

En esta subsección analizamos como incide la contribución de las bandas sobre el transporte en los distintos sistemas estudiados suponiendo un tiempo de relajación independiente de $\mathbf{k}$, s y ν, o sea considerando un valor de τ que es el mismo valor para todos los sistemas estudiados. Esto nos permite estudiar la contribución de la estructura de bandas a la conductividad de los distintos sistemas ya que al tomar el cociente entre los sistemas con Co y los que sólo tienen Ag, la expresión nos queda independiente del tiempo de relajación. Por lo tanto, la conductividad estará dada tanto por la cantidad de estados sobre la superficie de Fermi como por la velocidad semiclásica de los mismos.

En la tabla 5.2 mostramos el área relativa de superficie de Fermi y la conductividad relativa por canal de *espín* para cada uno de los sistemas estudiados, normalizados a los sistemas en los cuales los Co son reemplazados por Ag. Para el canal *up* en CIP podemos ver que los cocientes, $\tilde{S}^{\uparrow i}_{F,N}$, son mayores que 1, salvo para el sistema (b). Lo mismo sucede con la conductividad para este canal y geometría. Esto muestra que aparecen estados de Co en el nivel de Fermi que, salvo en (b), presentan una mayor velocidad semiclásica que los estados de Ag indicando que tienen una fuerte simetría *s*. Sin embargo (b), muestra una velocidad semiclásica menor indicando una mayor hibridización con estados *d* del Co. Por otro lado el canal *down* muestra una fuerte hibridización con la banda semillena *d* del Co, que se manifiesta, en menor contribución de la superficie de Fermi y en una baja velocidad semiclásica. En lo que respecta al transporte en CPP, vemos que tiene un comportamiento parecido al de CIP, pero en esta geometría es más apreciable la hibridización en el canal *down* con los estados *d* del cobalto, ya que los cocientes de velocidades semiclásicas son menores que para la geometría CIP. Esto se debe a que los agregados presentan mayor superficie según la dirección z por lo tanto la hibridización de los orbitales será mayor en esta geometría.

En la figura 5.3 podemos ver que para ambas geometrías de medición (CIP y CPP) la

	(a)	(b)	(c)	(d)
$\tilde{S}_{F,N}^{\uparrow x}$	1,24	0,96	1,17	1,10
$\tilde{S}_{F,N}^{\downarrow x}$	0,98	0,81	0,75	0,67
$\tilde{S}_{F,N}^{\uparrow z}$	1,24	1,18	1,09	1,10
$\tilde{S}_{F,N}^{\downarrow z}$	0,78	0,66	0,68	0,47
$\tilde{\sigma}_{N}^{\uparrow xx}$	1,45	0,73	1,44	1,35
$\tilde{\sigma}_{N}^{\downarrow xx}$	0,78	0,27	0,20	0,28
$\tilde{\sigma}_{N}^{\uparrow zz}$	1,49	1,03	1,37	1,18
$\tilde{\sigma}_{N}^{\downarrow zz}$	0,50	0,16	0,08	0,20

Tabla 5.2: En la primera parte de la tabla mostramos el cociente entre las áreas de la superficie de Fermi proyectada sobre *x* e *y* de los sistemas con Co y de los mismos sistemas en los cuales los Co son reemplazados por Ag para ambas polarizaciones de *espín*. En la segunda parte mostramos los cocientes de conductividades para ambas polarizaciones de *espín* respecto, también, a los mismos sistemas con Ag.

curva muestra un valor mínimo para el sistema (b). Por un lado, esto parece ser razonable ya que este sistema tiene agregados más grandes que (a) y por lo tanto la cantidad de estados localizados es mayor.

Por otro lado, en (b) los agregados no están conectados entre ellos como sí lo están en (c) y (d) y ésto, como observamos experimentalmente en la sección 4, conduce a esperar que la conductividad en (b) sea menor. En este sentido, se espera que este comportamiento sólo se produzca para el transporte en la dirección de coalescencia, sin embargo, vemos que en nuestros cálculos ocurre en ambas geometrías[2]. También como pudimos corroborar experimentalmente (sección 4.3.3.2), las conductividades de los sistemas coalescidos presentan un valor aproximadamente constante. Es importante notar esta manifestación de la coalescencia en ambas geometrías. El hecho de que en el sistema (a) la conductividad sea mayor que uno, también muestra que para poder reproducir los resultados experimentales no es suficiente con tener en cuenta solamente la estructura de bandas.

En la próxima sección estudiamos como la introducción explícita del tiempo de relajación en el cálculo de la conductividad aporta lo necesario para describir la mediciones más ajustadamente.

[2]Este efecto ya lo hemos observado en el capítulo 3 para las multicapas Fe/Cu.

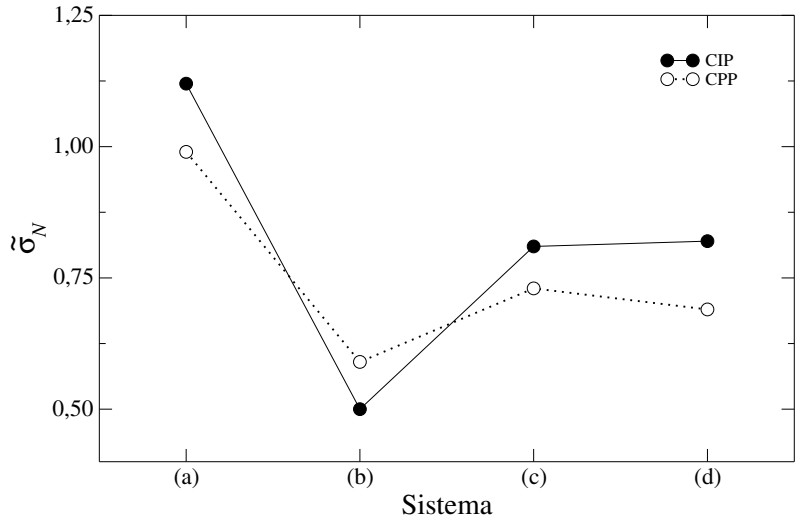

Figura 5.3: Cociente de las conductividades de los sistemas con Co y de los mismos sistemas en los cuales los Co son reemplazados por Ag para ambas polarizaciones de *espín*.

5.3.2. Contribución del tiempo de relajación

En esta subsección introducimos explícitamente el tiempo de relajación en la ecuación 5.1. Ahora, τ depende de $\mathbf{k}$ y de la polarización de *espín*. En la tabla 5.3 mostramos los valores de ℓ calculados a partir de la ecuación (5.3) en unidades del espesor de la capa de Ag, t_{Ag}. Podemos ver que en todos los sistemas $\ell^{\downarrow}$ es menor que $\ell^{\uparrow}$, lo que indica que la distancia transversal recorrida por los electrones *down* antes de dispersarse a un estado localizado es menor que la de los electrones *up* debido a que el nivel de Fermi *down* tiene una mayor cantidad de estados localizados *d* disponibles hacia los cuales los electrones pueden ser dispersados.

	(a)	(b)	(c)	(d)
ℓ_{Ag}	74,95	31,22	23,25	17,31
$\ell^{\uparrow}$	13,55	6,674	5,879	4,370
$\ell^{\downarrow}$	2,460	1,742	1,633	1,490

Tabla 5.3: Distancias media recorridas por los electrones para ambas polarizaciones y para el sistema en el cual los Co fueron reemplazados por Ag (ℓ_{Ag}). Las distancias están dadas en unidades del espesor de las capas de Ag.

En la figura 5.4 presentamos la razón entre la conductividad de los sistemas con Co estudiados y los mismos sistemas pero con Ag en lugar de Co. Vemos que al introducir el tiempo de relajación, calculado según la expresión 5.4, los resultados en ambas geometrías ya no presentan el mismo comportamiento. En la geometría CIP la curva es similar a la obtenida con tiempo de relajación constante, mientras que en CPP el cambio es cualitativo.

En particular en la geometría CIP, tener en cuenta el tiempo de relajación sólo produce una reducción en los valores relativos de la conductividad hacia valores experimentalmente, como los valores que medimos y mostramos en la sección 4, pero las tendencias no se modifican (ver gráfico 5.3). La disminución en el valor del cociente de conductividades tiene sentido ya que estamos teniendo en cuenta explícitamente, además de la contribución de la superficie de Fermi, la dispersión a estados localizados *d* del Co.

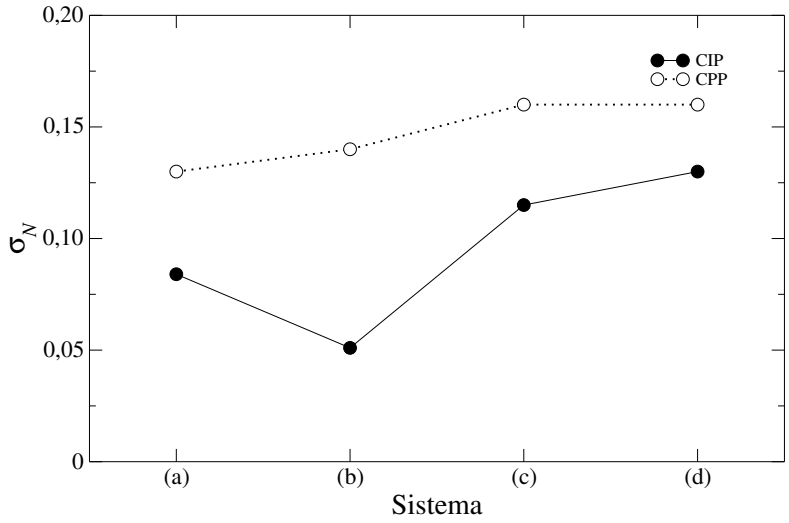

Figura 5.4: Razón de conductividades para los distintos sistemas. Notar que σ_N difiere de $\tilde{\sigma}_N$ en que ahora estamos teniendo en cuenta un tiempo de relajación dependiente del *espín* y de **k**.

En CPP, vemos un cambio notable de comportamiento ya que no se observa el mínimo en el sistema (b) como se observaba en la razón de la subsección anterior (figura 5.3). Vemos que en esta geometría la razón de conductividades está acotada entre 0,13 y 0,16. Experimentalmente se espera que en esta geometría la conductividad sea sistemáticamente menor que en CIP y que disminuya a medida que la capa de aleación adquiere una mayor proporción de átomos de Co. Sin embargo estos comportamientos no los observamos, y es razonable que así sea ya que en CPP los electrones conductores son dispersados

con ángulos grandes que serán tenidos en cuenta en términos de dispersión tipo $s-s$ que lleva al *backscattering* que no hemos tenido en cuenta y que no es despreciable en esta geometría.

5.4. Conclusiones

Hemos estudiado cómo el transporte eléctrico refleja la coalescencia topológica en multicapas granulares Ag/Co. Para obtener la conductividad eléctrica hemos tenido en cuenta la estructura de bandas electrónicas a través de las velocidades semiclásicas en el marco de la ecuación de Boltzmann y en la aproximación de tiempo de relajación. Hemos calculado la conductividad de las multicapas CoAg/Ag incluyendo a través del tiempo de relajación la dispersión hacia estados localizados de los agregados de Co en el nivel de Fermi. Los efectos de percolación se ponen de manifiesto a través de la consideración de la estructura de bandas, o sea de las velocidades semiclásicas en el nivel de Fermi y de la topología de dicha superficie. En ambas geometrías de medición, CPP y CIP, aparecen efectos de coalescencia y ésto no es esperable físicamente.

Para que los cálculos reflejen la situación experimental hemos tenido que incorporar un tiempo de relajación dependiente del *espín* y de $\mathbf{k}$. Haciendo ésto los resultados para ambas geometrías presentan comportamientos distintos lo cual está de acuerdo con lo que se espera experimentalmente. En CIP se sigue observando la *percolación*, debido a que en esta geometría es en la cual los agregados se conectan entre ellos. Mientras que en CPP la razón de conductividad obtenida se mantiene constante, ya que en la dirección z no tienen que observarse efectos de coalescencia.

Resumiendo, hemos dado cuenta de lo observado experimentalmente, en lo que respecta al comportamiento del transporte eléctrico, de lo que ocurre en el umbral de coalescencia topológica en multicapas granulares Ag/Co. Más allá del esquema semiclásico utilizado, propusimos un modelo para el tiempo de relajación en este tipo de nanoestructuras. Éste se comporta de manera adecuada en la geometría CIP, mientras que en CPP sería necesario considerar además la dispersión $s-s$ que da lugar al *backscattering*.

Conclusiones finales

A lo largo de esta tesis hemos estudiado las propiedades magnéticas y esencialmente de magnetotransporte de dos tipos de sistemas nanoestructurados que presentan características particulares.

En el caso de sistemas metálicos crecidos en multicapas nos hemos detenido en el estudio de un sistema que presenta un tipo de magnetorresistencia poco usual: magnetorresistencia inversa. Hemos mostrado usando la aproximación semiclásica de la ecuación de Boltzmann para la conductividad eléctrica que la contribución de las bandas, a través de las cuales se pone de manifiesto la hibridización entre los tres componentes de las multicapas de Fe/Cu con Cr, es imprescindible para reproducir el comportamiento experimental de estas últimas.

En el caso de aleaciones de gránulos de Co embebidos en Ag hemos mostrado tanto experimental como teóricamente que el comportamiento de aleaciones granulares homogéneas es distinto al de aleaciones granulares crecidas en multicapas. Para poner de manifiesto las diferencias entre ambos tipos de aleación hemos realizado mediciones de magnetización, de resonancia ferromagnética y de transporte eléctrico. Las condiciones de deposición, en particular la presencia de campo magnético, pueden dar lugar a fenómenos de coalescencia (*percolación*) de los agregados de Co que se ponen en evidencia en las propiedades de transporte y magnetización. Desde el punto de vista teórico hemos logrado modelizar adecuadamente estos sistemas usando el mismo marco semiclásico de aproximación que en el caso anterior. El comportamiento experimental del magnetotransporte en este caso nuevamente se ha podido reproducir teniendo en cuenta los efectos de hibridización (a través de las bandas, o sea de las velocidades semiclásicas) y la dependencia del tiempo de relajación con el *espín*. Esto último se hizo proponiendo un modelo para el tiempo de relajación que se comporta particularmente bien para una de las geometrías de medición del tranporte (CIP).

Este trabajo que ha tenido una componente experimental y otra teórica, ha perseguido como uno de sus objetivos lograr vincular la tarea de investigación que en este área, de intenso desarrollo actual, se realiza en distintos grupos de trabajo del país.

Apéndice A

Regla de Matthiessen

Se considera que los procesos de dispersión electrónica no están correlacionados cuando entre éstos no hay interferencia cuántica. En particular, en las colisiones con impurezas, que éstas sean no correlacionadas dependerá de la concentración y disposición espacial de las mismas. Si la distancia media entre impurezas es mayor que la longitud de coherencia de los electrones, éstos perderán su memoria de fase entre colisiones y sus funciones de onda no podrán interferir. Otra fuente de pérdida de coherencia es la disposición al azar de los centros dispersores. En estas condiciones el mar de conducción interfiere con fases aleatorias ya que las distancias entre los centros no está determinada.

Generalizando esta idea, las probabilidades de transición que provengan de procesos físicos que son distinguibles se podrán sumar directamente. En los metales podremos sumar efectos de dispersión debido a impurezas y a interacciones electrón-electrón. Entonces, si tenemos N fuentes de dispersión distinguibles la probabilidad total de transición será

$$W = \sum_{i}^{N} W_i. \tag{A.1}$$

Esto conduce a que el tiempo de relajación del sistema se relacione con los tiempos de relajación de los diferentes procesos de dispersión de la siguiente forma

$$\frac{1}{\tau} = \sum_{i}^{N} \frac{1}{\tau_i}, \tag{A.2}$$

lo cual lleva a que la resistividad total sea la suma de las resistividades efectivas de cada proceso de dispersión, $\rho = \sum \rho_i$. Esta última relación es conocida como regla de Matthiessen. Desde el punto de vista formal el uso de esta ley es restringido ya que es válida solamente para sistemas donde τ es independiente de $\mathbf{k}$ [85]. Pero más allá de su estricta validez es útil para estimar una cota inferior para la resistividad de un sistema con fuentes de dispersión complejo [21].

Esta teoría de fuentes distinguibles de dispersión se puede generalizar un poco más a sistemas donde las impurezas provoquen un cambio considerable en la estructura electrónica de su entorno [86] y que también permita tratar impurezas complejas en el sentido de que dentro de ellas puede haber múltiples mecanismos de dispersión coherentes.

La aplicación de esta regla en esta tesis es fundamental para comprender la contribución a la resistencia eléctrica de la dispersión en impurezas diluidas (capítulo 3) y en las superficies de agregados magnéticos (capítulo 4).

Apéndice B

Autoconsistencia en el código WIEN97

En la figura B.1 mostramos el proceso autoconsistente que se lleva a cabo en este programa con el objetivo de encontrar la densidad electrónica. En esta podemos ver que separamos el proceso iterativo en cuatro zonas que pasamos a enumerar:

Zona 1 Ésta es la parte del código de inicialización. Solamente ingresando la estructura cristalina y los tipos de átomos el programa calcula la densidad electrónica inicial que usará para comenzar el ciclo autoconsistente. Esta densidad electrónica será una simple superposición de las densidades atómicas ya que todavía no se realizó ningún cálculo que involucre al sólido.

También se inicializan los dos únicos parámetros que utiliza el código: el radio de *Muffin tin* (como vimos en el apartado 2.1.1.2) y el K_{max} que está relacionada con la cantidad de ondas planas que tendrá la base en la cual expandiremos la densidad electrónica en las zonas intersticiales.

Zona 2 Aquí se genera el potencial *Coulombiano* a partir de la densidad electrónica a través de la ecuación de Poisson y dentro de la aproximación de densidad local de *espín* (LDA) se calcula el potencial de intercambio y correlación.

Zona 3 Teniendo el potencial del sistema podemos calcular, vía la ecuación de Kohn-Sham (subsección 2.1.1.1), la nueva densidad electrónica del sistema. Para hacer ésto, el cálculo se divide en dos. Por un lado se computa la densidad en el intersticio con un *Hamiltoniano* cuya base está expandida en ondas planas y por otro, la densidad dentro del *muffin tin* que se calcula en base a funciones que surgen de resolver el problema atómico dentro del *muffin tin*.

Zona 4 En el final de ciclo autoconsistente, se suman las densidades electrónicas del intersticio y del *Muffin tin* y se verifica si ésta es la misma que la de entrada (dentro de un error determinado por el usuario). Si ésto es así hemos encontrado la estructura electrónica del sistema. Si no es así, el código realiza una nueva iteración a partir

de la zona 2 poniendo como densidad de entrada una que será promedio pesado de densidades obtenidas en iteraciones anteriores.

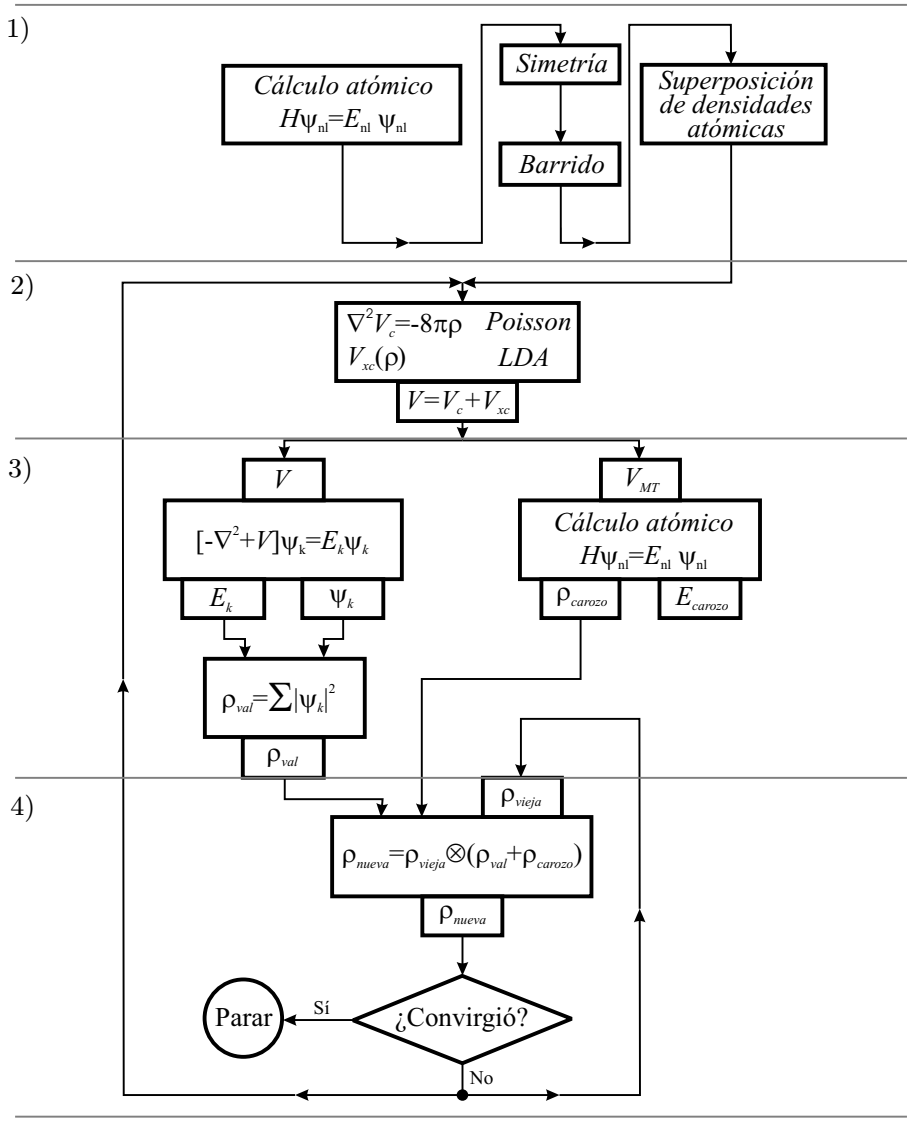

Figura B.1: Diagrama de flujo del proceso autoconsistente del código WIEN97.

Apéndice C

Método de enlaces fuertes

C.1. Determinación de los parámetros

En este método t_{ij}, ε_i^0, $U_{i\mu\nu}$, $J_{i\mu\nu}$ son parámetros que se ajustan a partir de cálculos de primeros principios. Los elementos de salto t_{ij} son, como sugieren Slater y Koster [87], una combinación lineal de integrales de uno y dos centros. Para éstas, así como para las energías de sitio, ε_i^0, se utilizó la parametrización de Andersen [88] que ajusta dichos parámetros de forma tal que reproduzcan las bandas de volumen paramagnéticas calculadas por el método de primeros principios LMTO-ASA [89]. En las interfases, tomamos en primera aproximación la media geométrica de los valores correspondientes a los materiales puros [84].

Los parámetros $U_{i\mu\nu}$ y $J_{i\mu\nu}$ son de gran importancia en materiales magnéticos, dado que el primero determina la transferencia de carga entre sitios y orbitales, y el segundo la magnetización [90]. El parámetro U_{idd} consiste en una integral de *Coulomb* apantallada que en nuestro caso, para los distintos metales de transición, se obtiene de un trabajo de Bandyopadhyay y Sarma [91]. Los restantes $U_{i\mu\nu}$ fueron elegidos de forma tal que se cumplan relaciones atómicas entre éstos y U_{idd} [92].

En los metales de transición la magnetización se origina en bandas d, por lo tanto el parámetro $J_{i\mu\nu}$ relevante es el J_{idd}. Para sistemas magnéticos en volumen, éste se determina exigiendo que la magnetización calculada para estos materiales reproduzca la experimental.

C.2. Proceso autoconsistente

Para la primera iteración se proponen las ocupaciones y magnetizaciones iniciales, η_i^0 y m_i^0, por sitio y orbital. Se diagonaliza la matriz del *Hamiltoniano* en la base de uniones fuertes para cada uno de los valores $\mathbf{k}$ del barrido y se obtienen las energías para cada banda. De aquí se hallan las densidades de estado, la energía de Fermi, las ocupaciones y

magnetizaciones de salida. Con estas magnitudes de salida y con las de la entrada del ciclo anterior se crea una nueva entrada, que depende del esquema de convergencia utilizado. El proceso autoconsistente se repite nuevamente hasta que la ocupación y magnetización de salida coincida con la de entrada con la precisión exigida. Este programa original fue desarrollado por G. Fabricius [92].

C.3. Parámetros utilizados en esta tesis

Tabla C.1: Parámetros de *Coulomb* y de intercambio en eV.

	Ag	Co
U_{ss}	2,00	1,00
U_{pd}	2,40	1,20
U_{dd}	3,29	2,63
J_{dd}	0	1,20

Tabla C.2: Energías de sitio en mRy.

	Ag	Co
ε_s	-88,5501175	157,609
ε_p	202,995865	510,150
$\varepsilon_{d_{T2g}}$	-482,973999	-186,714
$\varepsilon_{d_{Eg}}$	-490,585999	-196,483

Tabla C.3: Parámetros de salto (integrales de dos centros) en mRy.

	Ag	Co
$ss\sigma$	-58,9638405	-78,3051
$pp\sigma$	95,5914993	137,412
$pp\pi$	-11,9489374	-17,1765
$dd\sigma$	-36,5200005	-46,3353
$dd\pi$	15,6200008	19,8181
$dd\delta$	-1,43000007	-1,81433
$sp\sigma$	74,7809372	103,323
$sd\sigma$	-44,6607895	-57,9721
$pd\sigma$	-57,7818604	-78,0341
$pd\pi$	13,7575865	18,5796

Apéndice D

Métodos de cálculo de la conductividad

D.1. Método de las áreas orientadas

Supongamos por simplicidad que tenemos un cristal cuya celda unidad está descripta por una terna de ejes perpendiculares entre sí, lo cual permite que los ejes primitivos del espacio recíproco sean también perpendiculares y coplanares con los del espacio real. Si elegimos a z como dirección del transporte estaremos interesados en la componente σ_{zz} del tensor de conductividad. Entonces la ecuación 2.21 la escribimos de la siguiente forma:

$$\sigma_{zz} = \frac{-e^2}{4\pi^3}\tau \iint dS_{F,z}\, \tau(k)\, v_z(k). \tag{D.1}$$

La contribución de las bandas electrónicas está dada entonces por la velocidad semiclásica en la dirección z, $v_z(k) = \frac{1}{\hbar}\frac{\partial \varepsilon}{\partial k_z}$ y por la proyección de la superficie de Fermi perpendicular a k_z, o sea en el plano k_{xy}.

Dado que nuestro espacio recíproco está discretizado a través del mallado homogéneo, evaluar la conductividad significa lo siguiente: para cada punto (k_x,k_y), que pertenece al plano perpendicular a k_z, tenemos que determinar si alguna banda cruza o no el nivel de Fermi, o sea si alguna de las bandas electrónicas tiene una energía igual a la de Fermi para ese punto (k_x,k_y). Para ésto evaluamos las energías de las distintas bandas para puntos que tienen diferentes k_z pero un dado (k_x,k_y). Dados un par de puntos: si la energía de una banda es menor (mayor) que la de Fermi para alguno de ellos y para el otro es mayor (menor), significa que el nivel de Fermi está entre esos dos puntos. El algoritmo implementado está esquematizado en la figura D.1. Una vez que identificamos qué bandas cruzan el nivel de Fermi calculamos la velocidad semiclásica por diferencias finitas.

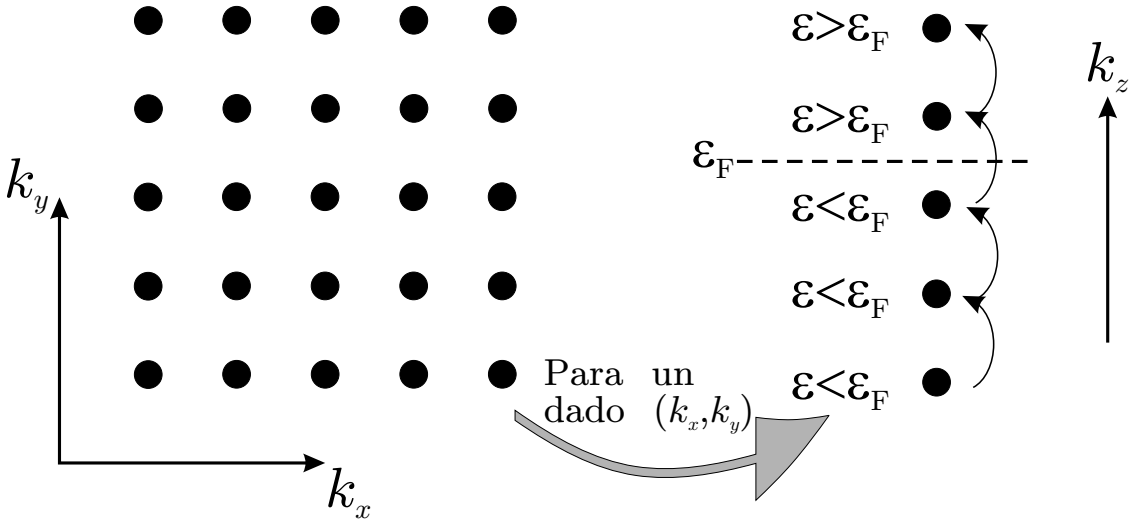

Figura D.1: Esquema ilustrativo del algoritmo utilizado en este método numérico.

D.2. Método de los tetraedros

Para saber qué tetraedros son intersectados por la superficie de Fermi se procede de la siguiente forma. Para una determinada banda electrónica, cada vértice o punto $\mathbf{k}_i$ tiene una energía ε_i. Una forma cómoda de etiquetar los vértices de cada tetraedro es de forma creciente en energía, o sea $\varepsilon_0 \leq \varepsilon_1 \leq \varepsilon_2 \leq \varepsilon_3$. En la figura D.2 mostramos esquemáticamente como se etiqueta cada uno de los vértices. Supongamos que la energía de Fermi tiene un valor intermedio entre ε_2 y ε_3, o sea $\varepsilon_2 < \varepsilon_F < \varepsilon_3$, entonces podemos interpolar linealmente un valor para el $\mathbf{k}$ de Fermi, $\mathbf{k}_{F,i}$, de la siguiente forma

$$\mathbf{k}_{F,i} = \mathbf{k}_3 + \frac{\varepsilon_3 - \varepsilon_F}{\varepsilon_3 - \varepsilon_i}(\mathbf{k}_i - \mathbf{k}_3) \tag{D.2}$$

donde $\mathbf{k}_i$ son las componentes de $\mathbf{k}_F$ sobre las aristas de los tetraedros. Una vez encontrados los puntos para los cuales la superficie de Fermi intersecta a las aristas de los tetraedros, podemos definir una superficie dentro de cada uno de ellos que será la superficie de Fermi interpolada, o sea la discretización del dominio de integración de la ecuación (2.19) quedando de la siguiente forma

$$\sigma_{ij} = \frac{-e^2}{4\pi^3} \sum_t S_t \, \tau_t \, v_{i,t} \, v_{j,t} \frac{1}{|\nabla_{\mathbf{k}} \varepsilon|}, \tag{D.3}$$

donde t etiqueta a los tetraedros que son atravesados por la superficie de Fermi, S_t es la superficie interpolada en el t-ésimo tetraedro, los subíndices t en el tiempo de relajación como en las velocidades también indican a que tetraedro pertenecen. No solo obtenemos

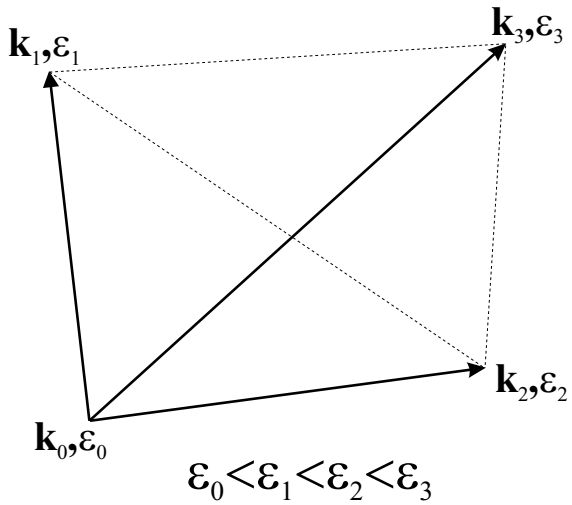

Figura D.2: Modo de etiquetar los vértices de los tetraedros.

la forma de la superficie de Fermi sino que también podemos obtener la velocidades semiclásicas y el factor $|\nabla_{\mathbf{k}}\varepsilon|$ ya que éste viene dado por la siguiente expresión dentro de este esquema de interpolación lineal

$$\nabla_k \varepsilon = \sum_{i=1}^{3} (\varepsilon_i - \varepsilon_0) \frac{\mathbf{k}_j \times \mathbf{k}_k}{\mathrm{v}}, \tag{D.4}$$

donde v es el volumen de cada tetraedro. Finalmente el gradiente de la energía se relaciona con la velocidad semiclásica de la siguiente forma:

$$v_i = \nabla_k \varepsilon . \hat{n}_i. \tag{D.5}$$

Apéndice E

Resonancia ferromagnética

E.1. Anisotropía magnetocristalina

La estructura cristalina da lugar a direcciones privilegiadas dentro del cristal según las cuales tienden a alinearse los momentos magnéticos. En general, existen ejes en los cuales alinear la magnetización en alguno de ellos requiere más o menos campo aplicado. O sea, existe una dirección en la cual se necesita menos campo que en cualquier otra (eje fácil) para alinear a **M** y otra dirección donde se necesita el mayor campo (eje difícil). En los cristales cúbicos, las direcciones a tener en cuenta para definir la anisotropía magnetocristalina son las [100], [110] y [111].

En la figura E.1, graficamos la frecuencia de resonancia, ν, en función de H para el Fe BCC. Podemos observar que la dependencia con H es diferente dependiendo de la dirección en la cual queremos alinear a **M**. En esta figura mostramos ν para el eje fácil, medio y difícil para una red cúbica BCC. Es interesante notar el comportamiento del eje difícil que, para campos pequeños, ν disminuye hasta alcanzar un mínimo y luego muestra un comportamiento monótono creciente como en las otras direcciones. Para comprender este comportamiento tenemos que notar que en la ecuación (2.22) la frecuencia de resonancia es proporcional a la magnetización. A $H = 0$, **M** se encuentra en su posición de equilibrio, en este caso en la dirección [100]. Al aplicarle campo en el eje difícil, este compite con el campo de anisotropía que tiende a alinearla según el eje fácil. Mientras el campo aplicado no sea lo suficientemente intenso, la componente **M** perpendicular (la que importa, ya que en la ecuación (2.22) el producto vectorial origina el movimiento) al campo efectivo se irá reduciendo y por lo tanto también la frecuencia de resonancia. A un dado campo, lo suficientemente intenso, **M** vence al potencial generado por el campo cristalino, y se alinea con el campo externo. El comportamiento es similar al de las otras direcciones que se muestran en la figura.

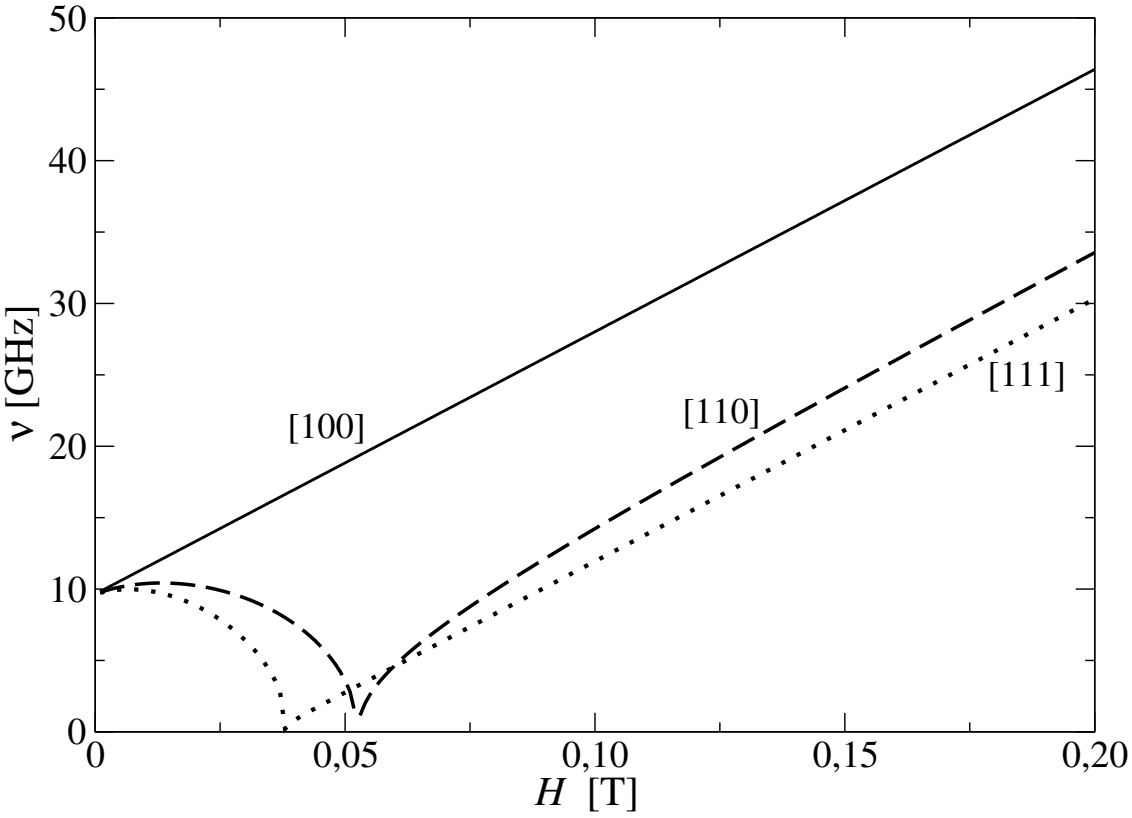

Figura E.1: Frecuencia de resonancia en función del campo aplicado para las direcciones [1,0,0], [1,1,0] y [1,1,1] para el Fe BCC.

E.2. Campo demagnetizante

En las superficies de los materiales magnéticos, aparecen dipolos asociados con la falta de continuidad del material. La dirección de esto dipolos está asociada a $\mathbf{M}.\hat{n}$. Esto indica que dentro del material aparece un campo magnético creado por los dipolos superficiales que reduce el campo total aplicado a la muestra como mostramos esquemáticamente en la figura E.2. A este campo se lo llama demagnetizante y es proporcional a la magnetización de la muestra, o sea

$$H_{d,i} = N_{d,i}\, M_i \tag{E.1}$$

donde H_d es el campo demagnetizante y N_d es el factor de magnetizante que depende únicamente de la geometría de la muestra.

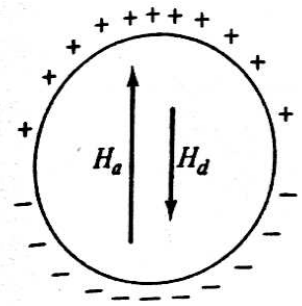

Figura E.2: campo demagnetizante, H_d, de una muestra esférica.

El caso más simple para analizar es el de una muestra magnética esférica, ya que como no hay ninguna dirección privilegiada el campo demagnetizante siempre es antiparalelo al sentido del vector **M**. Por lo tanto el único efecto que produce es que en presencia de un campo externo, H, la partícula siente un campo efectivo, $\mathbf{H}_{ef} = \mathbf{H} - N_d\,\mathbf{M}$, donde N_d es isotrópico y tiene un valor de $4\pi/3$ en este caso.

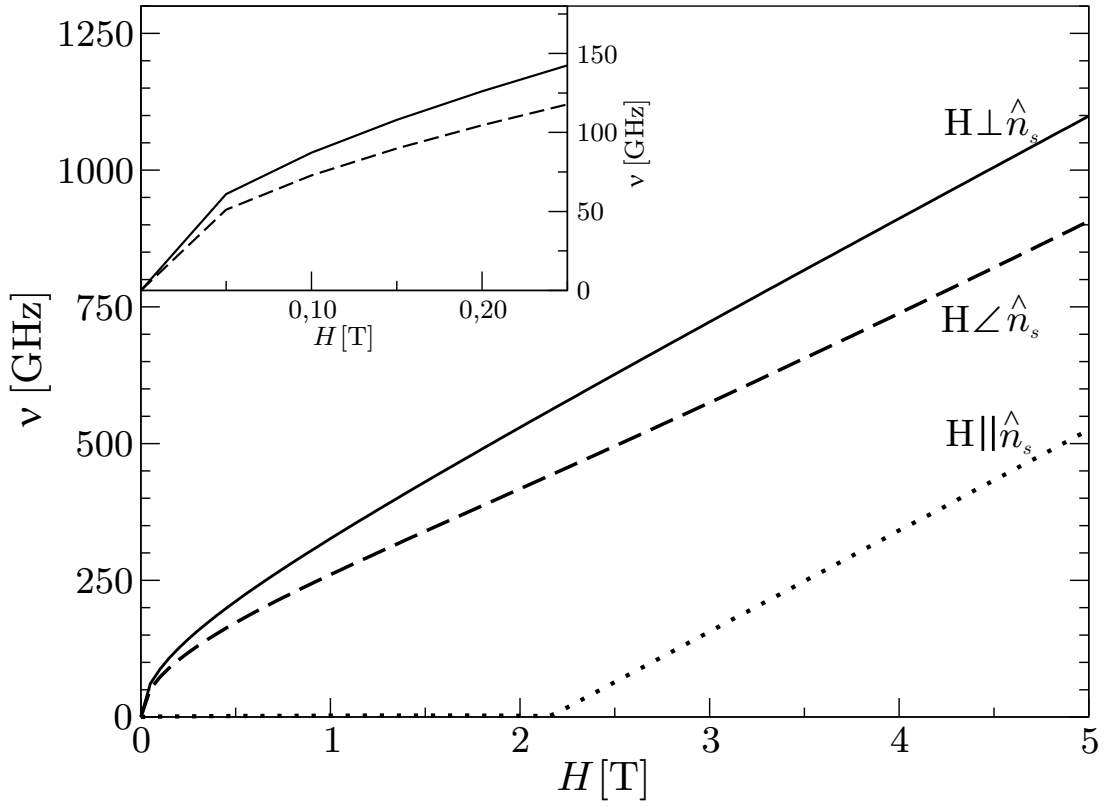

Figura E.3: Frecuencia de resonancia en función del campo aplicado para una película delgada. Estas curvas están calculadas para diferentes direcciones del campo respecto del plano de la película, cuya normal la indicamos como $\hat{n}_s$. El caso $\mathbf{H}\angle\hat{n}_s$ denota un ángulo de 45° respecto a la normal.

En las películas delgadas la situación es distinta. Si la magnetización es perpendicular a las interfaces, el campo demagnetizante vale -4πM. Esta alineación antiparalela de H_d provoca que **M** esté en una posición de equilibrio inestable, o sea que tienda a revertir su sentido. Se puede mostrar que la dirección de equilibrio de **M** es paralela a las interfaces, ya que en esta dirección la muestra no tiene superficies interfaciales (se considera infinita) y por ende $H_d = 0$ (no hay dipolos superficiales). En la figura E.3 mostramos la frecuencia de resonancia en función del campo aplicado para una película delgada. Mostramos la curva para diferentes direcciones del campo respecto del plano de la película.

Referencias

[1] B. Abeles, R.W. Cohen, W.R. Stowell, Phys. Rev. Lett. **21**, 902 (1967).

[2] J.I. Gittleman, Y. Goldstein, and S. Bozowski, Phys. Rev. B **5**, 1309 (1972)

[3] J.S. Helman, B. Abeles, Phys. Rev. Lett. **21**, 1429 (1976).

[4] L.L. Chang, L. Esaki, W.E. Howard, R. Ludeke, G. Schul, J. Vac. Sci. Technol. **10**, 655 (1973).

[5] L. Esaki, L.L. Chang, Phys. Rev. Lett **33**, 495 (1974).

[6] C. Kittel, in *Solid State Physics* **22**, 1 (1968).

[7] M.N. Baibich, J.M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, J. Chazelas, Phys. Rev. Lett. **61**, 2472 (1988).

[8] A.E. Berkowitz, J.R. Mitchell, M.J. Carey, A.P. Young, S. Zhang, F.E. Spada, F.T. Parker, A. Hutten and G. Thomas, Phys. Rev. Lett. **68**, 3745 (1992)

[9] J.Q. Xiao, J.S. Jiang, C.L. Chien, Phys. Rev. Lett. **68**, 3749 (1992).

[10] T. Valet, A. Fert, Phys. Rev. B **48**, 7099 (1993).

[11] S. Zhang, P. Levy, J. Appl. Phys. **73** 5315 (1993).

[12] J. Barnás, A. Fuss, R.E. Camley, P. Grünberg, W. Zinn, Phys. Rev. B **42**, 8110 (1990).

[13] P. Zahn, I. Mertig, M. Richter, and H. Eschrig, Phys. Rev. Lett. **75**, 2996 (1995).

[14] R. kubo, J. Phys. Soc. Jap. **12** 570 (1957).

[15] R. Landauer, M. Büttiker, Phys. Rev. Lett. **54**, 2049 (1985).

[16] P. Drude, Annalen der Physik **1**, 566; y **3**, 369 (1900).

[17] J.M. Ziman, Adv. Phys. **1**, 1 (1961).

[18] I. Mertig, R. Zeller, P.H. Dederichs, Phys. Rev. B **47**, 16178 (1993).

[19] J.M. Ziman, *Electrons and Phonons* (Oxford University Press, London, 1967). Cap. II, pág. 96.

[20] N.W. Ashcroft, N.D. Mermin, *Solid state physics* (Saunders College Publishing, Fort Worth, 1976). Cap. 16, pág. 319.

[21] J.M. Ziman, *Electrons and Phonons* (Oxford University Press, London, 1967). Cap. VII, pág. 268.

[22] P.L. Taylor, Proc. R. Soc. Lon. A **275**, 200 (1963).

[23] P.T. Coleridge, J. Phys. F: Met. Phys. **2**, 1016 (1972).

[24] N. Mott, Adv. Phys. **13**, 325 (1964).

[25] A. Fert, I.A. Campbell, Phys. Rev. Lett **21**, 1190 (1968).

[26] I.A. Campbell, A. Fert, A.R. Pomeroy, Phil. Mag. **15**, 977 (1967).

[27] A. Fert, I.A. Campbell, J. Phys. F: Metal Phys. **6**, 849 (1976).

[28] I. Mertig, R. Zeller, P.H. Dederichs, Phys. Rev. B **49**, 11767 (1994).

[29] N.F. Mott, H. Jones, Proc. Roy. Soc. (London) **153**, 699 (1936).

[30] B.R. Coles, Proc. Phys. Soc. B **65**, 221 (1951).

[31] D.J. Singh, *Planes waves, pseudopotentials and the LAPW method* (Kuwler Academic Publishers, Boston, 1994).

[32] V.L. Moruzzi, J.F. Janak, A.R. Williams, *Calculated Electronic Properties of Metals* (Pergamon Press, New York, 1978).

[33] "The Fermi Surface Database", http://www.phys.ufl.edu/fermisurface.

[34] K.M. Schep, P.J. Kelly, G.E.W. Bauer, Phys. Rev. Lett. **74**, 586 (1995).

[35] R. Gómez Abal, A.M. Llois, M. Weissmann, Phys. Rev. B **53**, R8844 (1996).

[36] W.P. Pratt, S.-F. Lee, J.M. Slaughter, R. Loloee, P.A. Schroeder, J. Bass, Phys. Rev. Lett. **66**, 3060 (1991).

[37] B. Dieny, P. Humbert, V. S. Speriosu, S. Metin, B. A. Gurney, P. Baumgart, H. Lefakis, Phys. Rev. B **45**, 806 (1992).

[38] S. S. P. Parkin, N. More, and K. P. Roche, Phys. Rev. Lett. **64**, 2304 (1990).

[39] E.H. Sondheimer, Adv. Phys. **1**, 1 (1952).

[40] R.E. Camley, J. Barnás, Phys. Rev. B **63**, 664 (1989).

[41] H.E. Camblong, P.M. Levy, S. Zhang, Phys. Rev. B **51**, 16052 (1995).

[42] L. Piraux, J.M. George, J.F. Despres, C. Leroy, E. Ferain, R. Legras, K. Ounadjela, A. Fert, Appl. Phys. Lett. **65**, 2484 (1994).

[43] M. Johnson, R.H. Silsbee, Phys. Rev. B **35**, 4959 (1987).

[44] D. Bozec, M.A. Howson, B.J. Hickey, S. Shatz, N. Wiser, E.Y. Tsymbal, D.G. Pettifor, Phys. Rev. Lett. **85**, 1314 (2000).

[45] J.M. George, L.G. Pereira, A. Barthélémy, F. Petroff, L. Steren, J.L. Duvail, A. Fert, R. Loloee, P. Holody, P.A. Schroeder, Phys. Rev. Lett. **72**, 408 (1994).

[46] S.Y. Hsu, A. Barthélémy, P. Holody, R. Loloee, P.A. Schroeder, A. Fert, Phys. Rev. Lett. **78**, 2652 (1997).

[47] K. Rahmouni, A. Dinia, D. Stoeffler, K. Ounadjela, H.A.M. Van den Berg, H. Rakoto, Phys. Rev. B **59**, 9475 (1999).

[48] B.D. Cullity, *Introduction to magnetic materials*, (Addison-Wesley Publishing Company, Massachusetts, 1972).

[49] C. Kittel, J.K. Galt, W.E. Campbell, Phys. Rev. **77**, 725 (1950).

[50] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, F. Laloë, *Quantum Mechanics*, (Wiley, New York, 1977). Pág. 1299.

[51] E.A.M. van Alphen, W.J.M. de Jonge, Phys. Rev. B **51** 8182 (1995).

[52] E.F. Ferrari. F.C.S. da Silva, M. Knobel, Phys. Rev. B **59** 8412 (1999).

[53] L. Sheng, Z.D. Wang, D.Y. Xing, Jian-Xu Zhu, Phys. Rev. B **53** 8203 (1996).

[54] R.Y. Gu, L. Sheng, D.Y. Xing, Z.D. Wang, J.M. Dong **53** 11685 (1996).

[55] H. Hohenberg, W. Kohn, Phys. Rev. B **136**, 864 (1964).

[56] J. Slater, Phys. Rev. **81**, 385 (1951).

[57] W. Kohn, L.J. Sham, Phys. Rev. **140**, A1133 (1965).

[58] J. Slater, Phys. Rev. **51**, 846 (1937).

[59] P. Blaha, K. Schwarz, J. Luitz, WIEN97, Vienna University of Technology, Vienna 1997. (Improved and updated Unix version of the original copyrighted WIEN-code, which was published by P. Blaha, K. Schwarz, P. Sorantin, S. B. Trickey, in Comput. Phys. Commun. **59**, 399 (1990).

[60] G. Lehman, M. Taut, Phys. Stat. Sol. **54**, 469 (1972).

[61] D.J. Singh, J. Vac. Sci. Tech. A **15**, 1770 (1997).

[62] J.P. Perdew, Y. Wang, Phys. Rev. B **45**, 13244 (1992).

[63] P. Zahn, J. Binder, I. Mertig, R. Zeller, P.H. Dederichs, Phys. Rev. Lett. **80**, 4309 (1998).

[64] I. Mertig, P. Zahn, M. Richter, H. Eschrig, R. Zeller, and P.H. Dederichs, J. Magn. Magn. Mater. **151**, 363 (1995).

[65] S. Pizzini, F. Baudelet, D. Chandesris, A. Fontaine, H. Magnan, J.M. George, F. Petroff, A. Barthélémy, A. Fert, R. Loloee, P.A. Schroeder, Phys. Rev. B **46**, 1253 (1992).

[66] P. Holody, L.B. Steren, R. Morel, A. Fert, R. Loloee, P.A. Schroeder, Phys. Rev. B **50**, 12999 (1994).

[67] R. Loloee, P.A. Schroeder, W.P. Pratt Jr., J. Bass, A. Fert, Physica B **204**, 274 (1995).

[68] F. Fettar, L.B. Steren, A. Barthélémy, R. Morel, A. Fert, J.A. Barnard, J.D. Jarratt, J. Magn. Magn. Mater. **165**, 316 (1997).

[69] J.R. Mitchell and A. E. Berkowitz, J. Appl. Phys. **75**, 6912 (1994).

[70] J.L. Dormann, D. Fiorani, E. Tronc, Adv. Chem. Phys. **98**, 341 (1997).

[71] M. El-Hilo, K. O'Grady, R.W. Chantrell, J. Magn. Magn. Mater. **117**, 21 (1992).

[72] R. Bozorth, *Ferromagnetism* (D. Van Nostrand Company, Inc., Canada, 1953), page 441.

[73] Y. Saito and K. Inomata, Jap. J. Appl.Phys. **30**, L1733 (1991).

[74] J. Dubowik, Phys. Rev. B **54**, 1088 (1996).

[75] J. Smit, H.G. Beljers, Philips Res. Rep. **10**, 113 (1955).

[76] L.B. Steren, J. Milano, A. Butera, J. Barnard. To be published elsewhere.

[77] J. Duvail, Ph.D Thesis, Universite Paris-Sud.

[78] B. Abeles, in *Applied Solid State Science: Advances in Materials and Device Research*, edited by R. Wolfe (Academic, New York, 1976), pág. 1.

[79] F. Parent, J. Tuaillon, L.B. Steren, V. Dupuis, B. Prevel, A. Perez, P. Melinon, G. Guiraud, R. Morel, A. Berthélémy, A. Fert, Phys. Rev. B **55**, 3683 (1997).

[80] V.G. Kravets, D. Bozec, J.A.D. Matthew, S.M. Thompson, H. Menard, A.B. Horn, A.F. Kravets, Phys. Rev. B **65**, 054415 (2002).

[81] C.L. Chien, J.Q. Xiao, S. Jiang, J. Appl. Phys. **73**, 5309 (1993); Jian-Qing Wang, Gang Xiao, Phys. Rev. B **49**, 3982 (1994); A.E. Berkowitz, J.R. Mitchell, M.J. Carey, A.P. Young, J. Appl. Phys. **73**, 5320 (1993); A. Gerber, A. Milner, B. Groisman, M. Karpovsky, A. Gladkikh, A. Sulpice, Phys. Rev. B **55**, 6446 (1997).

[82] P.F. Carcia, A. Suna, J. Appl. Phys. **54**, 2000 (1983).

[83] S. Araki, J. Appl. Phys. **73** 3910 (1993).

[84] H. Shiba, Prog. Theor. Phys. **46**, 77 (1971).

[85] N.W. Ashcroft, N.D. Mermin, *Solid state physics* (Saunders College Publishing, Fort Worth, 1976). Cap. 16, pág. 324.

[86] I. Mertig, Rep. Prog. Phys. **62**, 237 (1999).

[87] J. Slater, G. Koster, Phys. Rev. Lett. **91**, 1498 (1954).

[88] O.K. Andersen, O. Jepsen, Phys. Rev. Lett **53**, 2571 (1984).

[89] O.K. Andersen, O. Jepsen, D. Götzel, *Highlights of Condensed Matter Theory*, (North Holland, Amsterdam, 1985).

[90] R. Gómez Abal, Tesis Doctoral, Universidad Nacional de Buenos Aires (Julio de 1999).

[91] T. Bandyopadhyay, D. Sarma, Phys. Rev. B **39**, 3517 (1989).

[92] G. Fabricius, Tesis Doctoral, Universidad Nacional de La Plata (Septiembre de 1994).

Publicaciones

Relacionadas con la tesis

- *Comparison of the magnetic and transport properties of $Co_{90}Fe_{10}$-Ag based granular alloys and multilayers.*
  J. Milano, L.B. Steren, A. Butera, J. Barnard.
  Digest of the International Conference on Multilayers, Films and Surfaces (2000).

- *From direct to inverse magnetoresistance: introduction of Cr in Fe/Cr superlattice.*
  J. Milano, A.M. Llois.
  Journal of Magnetism and Magnetic Materials **226-230**, 1755 (2001).

- *Calculation of transport properties of Co-Ag based on multilayered granular alloys.*
  J. Milano, L.B. Steren, A.M. Llois.
  Physica B **320**, 146 (2002).

- *Combined impurity and band effects on the appearance of inverse giant magnetoresistance in Cu/Fe multilayers with Cr.*
  J. Milano, A.M. Llois, L.B. Steren.
  Physical Review B **66**, 134405 (2002) y Virtual Journal of Nanoscale Science and Technology **6** (2002).

- *Band contribution to electronic transport in Co/Ag based multilayered granular alloys.*
  J. Milano, L.B. Steren, A.M. Llois.
  Aceptado en Journal of Magnetism and Magnetic Materials.

- *Electrical conductivity around the topological percolation limit in Co-Ag multilayered granular alloys.*
  J. Milano, A.M. Llois, L.B. Steren.
  Aceptado en Revista Mexicana de Física.

- Comparison of the magnetic and transport properties of $Co_{90}Fe_{10}$-Ag based granular alloys and multilayers.
  J. Milano, A.M. Llois, L.B. Steren, A. Butera, J. Barnard.
  Enviado a Physical Review B.

- *The role of the scattering from localized states in the electrical conductivity around the percolation limit in Co/Ag granular multilayers.*
  J. Milano, L.B. Steren, A.M. Llois.
  En preparación.

No relacionadas con la tesis

- *Calculation of the magnetoresistance of YMn_2Ge_2 and $LaMn_2Ge_2$.*
  J. Milano, A.M. Llois.
  Physica Status Solidi B **220**, 409 (2000).

- *Inverse magnetoresistance in noncollinear systems.*
  S. Di Napoli, **J. Milano**, A.M. Llois, H. Dreysse.
  Journal of Magnetism and Magnetic Materials **240**, 203 (2002).

- *Magnetic Properties of Fe/ZnSe/Fe trilayers.*
  L.B. Steren, **J. Milano**, M. Eddrief, V.H. Etgens.
  Physica B **320**, 162 (2002).

- *Electronic and magnetic properties of the inverse magnetoresistant $Fe_{1-x}Co_xSi$ alloys.*
  J. Guevara, V.L. Vildosola, **J. Milano**, A.M. Llois.
  Physica B **320**, 388 (2002)

- *Antiferromagnetic resonance modes in NiO.*
  J. Milano, L.B. Steren, M. Grimsditch.
  Enviado a Physical Review B.

- *Half-metallic character and electronic properties of inverse magnetoresistant $Fe_{1-x}Co_xSi$ alloys.*
  J. Guevara, V.L. Vildosola, **J. Milano**, A.M. Llois.
  Enviado a Physical Review B.

Agradecimientos

A...

... mi directora, Ana María, por guiarme y enseñarme física durante todos esto años. Y también quiero agradecerle por mostrarme que en una comunidad tan chica como la nuestra, la mejor forma de crecer y que nuestra tarea tenga sentido es privilegiar los intereses del conjunto a los propios.

... mi codirectora, Laura, por haberme introducido en el mundo experimental y mostrarme el dinamismo necesario para desenvolverse en un laboratorio.

... Mariana por aportar siempre sus conocimientos y por su continua predisposición a ser consultada ante cualquier duda.

... Javier por su humor ácido, pero sobre todo por su siempre grata compañía y por tenernos al tanto de las novedades científicas.

... Andrea por ayudarme a entender partes del código que utilicé y también por recordarme montar a sol41.

... Ricky que, por allá, cuando comencé el doctorado me enseñó las primeras armas para defenderme en la física computacional.

... todo el personal de la Unidad Actividad Física y en especial a el del grupo Materia Condensada por la ayuda y facilidades brindadas.

... los becarios, técnicos y profesionales del Laboratorio de Resonancias Magnéticas del Centro Atómico Bariloche por hacerme sentir como en casa.

... la Comisión Nacional de Energía Atómica por haberme dado la oportunidad de hacer el doctorado.

... la Fundación Antorchas y la Fundación Sauberan por el apoyo económico.

En los siguientes agradecimientos se mezcla el compañerismo y la amistad:

... Vero, mi amiga y compañera de oficina, por estos cinco años de compartir todos los días las buenas y las malas, la física, las noticias del mundo externo y las discusiones.

... Yani por su buena onda y charlas compartidas.

... Sol por su eterna disposición a ayudarme en cualquier cosa.

... Claudio por todos estos años de física, computación y de intento de hacer un mundo mejor.

... Joaquín por su buen humor y sensibilidad.

... David por sacar al padre que todos tenemos dentro.

... Inés, Flavio, Nacho y Mariano por las pequeñeces de todo los días.

Haber llegado hasta acá no es sólo fruto de estos últimos cinco años por eso,

... mis amigos que no están tan cerca, pero están: Zulema y Darío, Paula, Hernán, Ale.

... mis amigos de toda la vida: Diego, Gonza, El negro, Larghe, Lobo, Geri, Santiago, Cris, Padi.

... mi familia por apoyarme siempre.

... mi mamá por todo.

... Flor por compartir mi vida y mis sueños.