

## MAGNETISMO EN SISTEMAS DE BAJA DIMENSIÓN

*Mariana D. Weissmann*

Departamento de Física, Comisión Nacional de Energía Atómica.  
Av. del Libertador 8250, (1429) Buenos Aires, Argentina.

### Resumen

En este trabajo se estudian algunos sistemas de baja dimensión, como por ejemplo superficies, multicapas, films delgados y cúmulos, con el fin de conocer sus propiedades electrónicas, el momento magnético y la resistencia eléctrica en presencia de un campo magnético. Se encuentra que materiales no magnéticos en volumen, como los metales de transición de la serie 4d, lo son en estructuras de baja dimensión. También se encuentra que la resistencia eléctrica, calculada con la ecuación semiclásica de Boltzmann, presenta el fenómeno de magnetorresistencia gigante. Por lo tanto se concluye que la estructura de bandas electrónicas determina comportamientos magnéticos novedosos en sistemas de baja dimensión formados por metales de transición.

### Abstract

In this paper we study low dimensional systems, such as surfaces, multilayers, thin films and clusters, so as to obtain their electronic properties, magnetic moments and resistivity in a magnetic field. We find that materials which are not magnetic in bulk, as the 4d transition metals, become magnetic in low dimensional structures. We also find that the electrical resistivity, calculated in the semiclassical approximation with Boltzmann's equation, presents the giant magnetoresistance effect. We therefore conclude that the electronic band structure is responsible for the novel magnetic behaviour of low dimensional systems made of transition metals.

### 1. Introducción

El magnetismo es un tema con grandes contradicciones, si bien se conoce y se aplica desde hace siglos todavía hoy no se entien-

de del todo y sigue dando lugar a investigaciones de punta. Los antiguos chinos ya conocían la brújula hace 4000 años, se trata de una propiedad del óxido de hierro llamado magnetita. Esta fue introducida en Europa en el siglo XII y allí se comenzó el estudio de las líneas de fuerza tal como nos enseñaron en la escuela. Por otro lado, el magnetismo sigue siendo un tema de investigación de gran actualidad y sus orígenes están en lo más pro-

*Conferencia pronunciada en su incorporación como Académica Titular, el 29 de agosto de 1997.*

fundo de la mecánica cuántica.

Resulta curioso que habiendo tantas aplicaciones industriales importantísimas la comprensión profunda de este fenómeno sea todavía pobre y su estudio cuántico muy reciente. Entre las aplicaciones mencionemos que para la revolución industrial del siglo XIX fueron fundamentales los materiales magnéticos en los motores, que las primeras memorias de computadoras fueron ferritas, que las bases de datos son todas de cintas y discos magnéticos y que las tarjetas bancarias y de crédito son magnéticas.

Uno se pregunta porqué la investigación en materiales magnéticos comenzó después que la de semiconductores, típico tema de la física del estado sólido de los años 50 y 60. La respuesta está en las diferentes escalas o tamaños en que se manifiestan esos fenómenos físicos. El magnetismo, a nivel microscópico, depende del intercambio de electrones y las distancias involucradas son del orden de las distancias interatómicas, o sea de Angstroms. En cambio, la fenomenología interesante y novedosa de los semiconductores, apareció para distancias 10 veces mayores. Recién en los años 80 y 90 se pudo controlar experimentalmente el crecimiento de materiales a nivel de un átomo por vez, o de una monocapa atómica por vez, y así fue como se descubrieron nuevos y fascinantes fenómenos magnéticos. El conjunto de estos efectos, que deben ser estudiados, explicados y combinados con la electrónica tradicional para producir nuevos dispositivos se llama "magneto-electrónica".

En este trabajo estudiamos teóricamente diferentes sistemas caracterizados por la pequeñez de alguna dimensión, ya que eso da lugar a propiedades magnéticas interesantes, por ejemplo, films delgados, monocapas adsorbidas, multicapas, interfaces, superficies y cúmulos.

## **2. Algunas consideraciones sencillas sobre el magnetismo**

En un átomo libre hay dos contribuciones al momento magnético, la intrínseca de cada electrón o spin y la asociada al momento angular de los electrones al moverse alrededor del núcleo. Ambas contribuciones

son de tamaños comparables y se suman según las reglas de Hund. Se pueden calcular exactamente con la mecánica cuántica para los átomos livianos y para los más pesados hay muy buenas aproximaciones. Por lo tanto, la formación de los momentos magnéticos atómicos a partir de la contribución individual de cada uno de sus electrones se entiende bien cuando el número de electrones involucrados es del orden de 100. El alineamiento, o sea, el hecho de que los átomos tengan un momento magnético total no nulo, se debe principalmente al principio de Pauli.

En los sólidos, aunque sean de baja dimensión, el número de electrones involucrados es muchísimo mayor y se debe recurrir al uso de modelos. Estos modelos no son únicos, siempre puede encontrarse otro modelo que explique los mismos resultados experimentales y por lo tanto sea igualmente válido. La única teoría subyacente es la mecánica cuántica.

Si uno piensa en un sólido como un conjunto de átomos, cada uno con su momento magnético, y admite la posibilidad de que los electrones salten de un átomo al vecino pero tengan tendencia a volver al sitio original, está describiendo el magnetismo de algunos sistemas reales que contienen tierras raras. Este se llama el modelo de magnetismo localizado, y lo describe cuánticamente el Hamiltoniano de Heisenberg.

El magnetismo de los metales es diferente, los electrones de valencia no están ligados a ningún átomo en particular sino que se comportan como un gas de electrones, y el modelo adecuado se llama de magnetismo itinerante. La única contribución al magnetismo en este caso proviene del spin, ya que los momentos orbitales no se suman sino que se anulan al promediarse. El ordenamiento espontáneo de los spines que da lugar al ferromagnetismo, por ejemplo en el hierro, se debe al principio de Pauli de la misma manera que la formación del momento magnético en los átomos aislados.

Los átomos de hierro tienen dos tipos de electrones: los internos, localizados, en capas completas y por lo tanto con todos los spines apareados, no contribuyen a las propiedades metálicas. Los electrones de valencia (3d y 4s) son los portadores de la corriente

y son ellos los que están polarizados magnéticamente, o sea que los hay con spin mayoritario y minoritario. Esto se muestra en la Figura 1, que compara la densidad de estados electrónicos del cobre, material no magnético con el mismo número de electrones de cada tipo de spin, con las densidades de estados del hierro para los dos spines, corrida una con respecto a la otra. Como los electrones que conducen la corriente son los que tienen la energía de Fermi ( $E_f$ ), resulta que en el hierro habrá más de un tipo que del otro y a eso se llama "transporte polarizado en spin", uno de los temas de la nueva "magnetoeléctrica".

### 3. Cálculo de la estructura electrónica de sistemas magnéticos

Para el estudio de los metales es adecuada la aproximación de electrones independientes, cada uno moviéndose en un potencial promedio producido por los núcleos y los otros electrones. Los cálculos pueden hacerse de primeros principios (ab-initio) o parametrizados. Para los primeros existen varios códigos grandes de computación que circulan entre los diferentes laboratorios. La mayoría usan la aproximación local para la densidad de electrones cercana a cada núcleo y obtienen la energía total de un sistema cristalino en su estado fundamental, además de las densidades de carga para cada spin. Nosotros hemos usado uno de estos códigos [BSL1997] pero también hemos trabajado con métodos semiempíricos y códigos desarrollados por nuestro grupo [FLWK1994]. Técnicamente lo que hacemos en los casos magnéticos es resolver un Hamiltoniano tipo Hubbard en la aproximación de Hartree-Fock no restringida, que consiste en reemplazar el problema de muchos electrones por dos problemas de un electrón cada uno, que no son independientes porque el nivel de Fermi debe ser único. La solución autoconsistente se obtiene con un método iterativo. Los detalles del cálculo pueden verse en la bibliografía, pero conviene remarcar las aproximaciones fundamentales:

- Es suficiente conocer bien la estructura electrónica de los materiales en volumen para hacer cálculos en baja dimensión y para estudiar aleaciones de dos o más metales.

- Es necesario tener en cuenta la hibridación de los electrones d con los sp, no alcanza con considerar solamente los electrones d aunque sean ellos los responsables del magnetismo.

- Para estudiar superficies, films delgados y cúmulos hay que agrandar la base de orbitales atómicos con funciones centradas fuera del sistema, que permitan a los electrones derramarse fuera de las superficies.

- Los elementos no diagonales de la matriz hamiltoniana pueden considerarse independientes del spin.

Los elementos diagonales de la matriz hamiltoniana son los que incorporan los efectos de muchos cuerpos. Consideramos un término proporcional al momento magnético local y otro proporcional a la transferencia de carga local. Este último es particularmente importante en superficies y en aleaciones, ya que una primera diagonalización produce transferencias de carga exageradas entre átomos de distinto tipo. Los átomos de superficie, al tener menos vecinos, son a estos efectos como otra especie química.

### 4. Ejemplos

#### a) Monocapa en el vacío

Este es un ejemplo muy simple, que nos permite explicar cómo se interpretan los resultados de los cálculos [FLWK]. En lugar de una red tridimensional, como por ejemplo sería el hierro bcc, elegimos una red bidimensional y le calculamos el momento magnético del estado fundamental para saber si aumenta o disminuye con respecto al de volumen. Encontramos que siempre aumenta, cualquiera sea el metal de transición o la superficie considerada, ya que la falta de vecinos hace que las densidades de estados se angosten y que el corrimiento resulte entonces mayor en proporción al ancho de banda (Figura 1). La cantidad de electrones que se derrama fuera de la monocapa es grande y ellos provienen de los orbitales sp. Tenerla en cuenta es indispensable para que los resultados coincidan con los de otros métodos teóricos y con los experimentos. La ocupación de los orbitales d, en cambio, casi no se modifica con respecto a

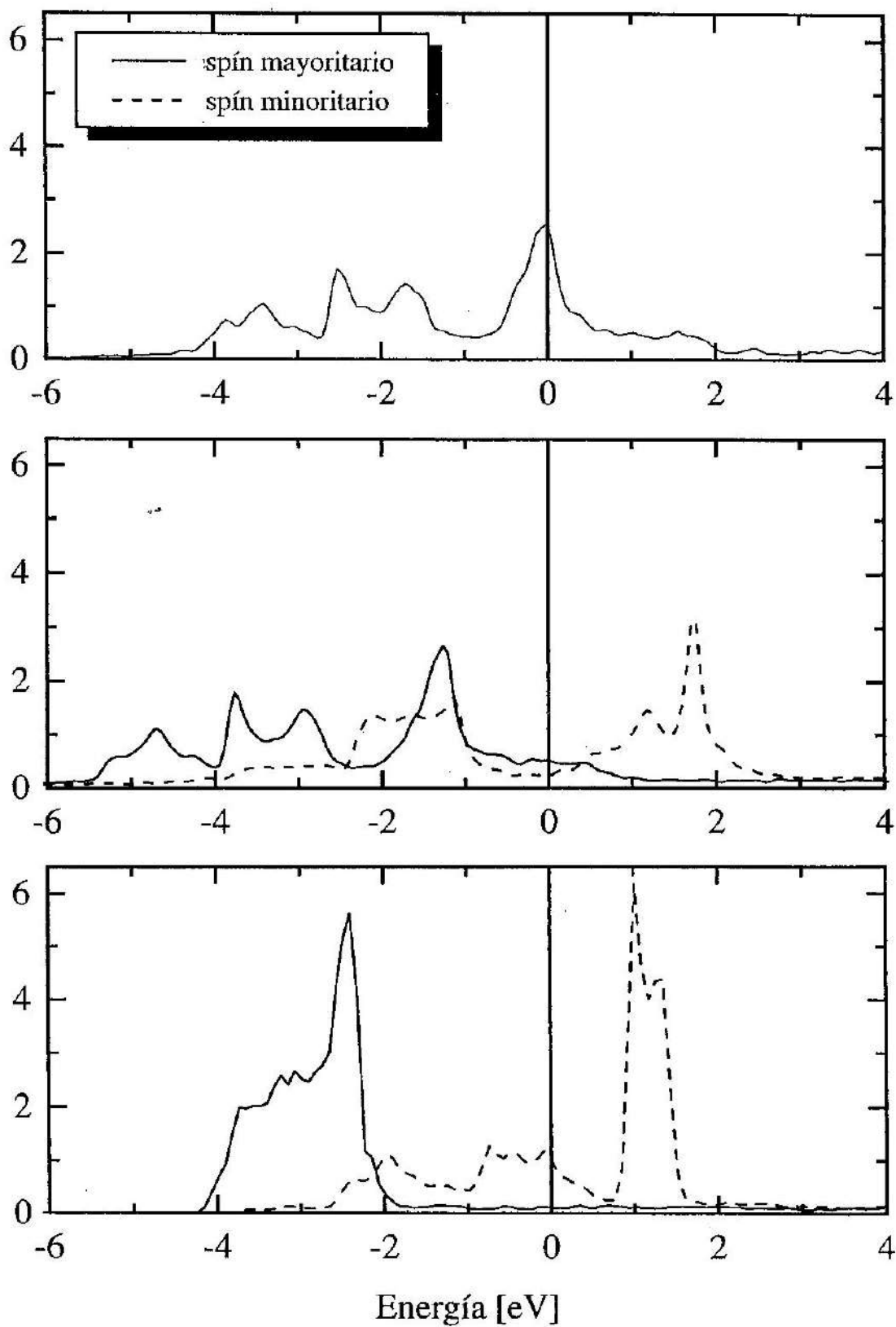


Fig. 1: Densidades de estados electrónicos para los siguientes casos: - La figura superior es para el cobre, estructura fcc, no magnético. El cero de energías representa el nivel de Fermi, límite entre los estados ocupados y vacíos. - La figura central es para el hierro, estructura bcc, con momento magnético 2.2 magnetones de Bohr. - La figura inferior es para la monocapa de hierro en el vacío. El momento magnético es de 3.2 magnetones de Bohr.



la del volumen.

Para los metales de la fila siguiente al hierro en la tabla periódica, los que tienen electrones 4d, también encontramos magnetismo en las monocapas (sistemas de dos dimensiones) aunque ellos no son magnéticos en volumen (o en tres dimensiones). Estos cálculos tan simplificados pueden, sin embargo, relacionarse con experimentos muy recientes y complicados. En *Phys. Rev. Lett.* 74 pag. 3467 (1995) se comunica que una monocapa de rutenio (metal 4d) apoyada sobre grafito, a estos efectos un material inerte, tiene los spines polarizados y orientados según el plano de la monocapa.

#### b) *Monocapas de metales 4d sobre la superficie de Fe(001)*

Experimentalmente se encontró que tanto Ru como Rh y Pd adquieren un momento magnético cuando se depositan sobre Fe. La pregunta que nos formulamos es cuánto de este efecto se debe a la interacción con el Fe y cuanto a la baja dimensionalidad [RLW1996].

Con este objetivo calculamos la estructura electrónica de films de 5 capas de Fe con monocapas epitaxiales de todos los metales 4d a cada lado. Encontramos que los primeros (Mo y Tc) se acoplan antiferromagnéticamente con el Fe mientras que Ru, Rh y Pd lo hacen ferromagnéticamente. El Rh es el que tiene mayor momento magnético. Comparando con los mismos cálculos hechos sobre Ag en lugar de Fe, donde también aparece magnetismo en los 4d, se puede ver que ambos efectos coexisten. Las bandas son más anchas cuando se depositan sobre Fe, o sea que existe una fuerte interacción, pero también existe el efecto de la bidimensionalidad. La Figura 2 muestra las densidades de estados locales, en los metales 4d y en el Fe más cercano a ellos.

Otro tema interesante de este ejemplo es estudiar la simetría de los orbitales que más contribuyen al momento magnético, ya que a través de la interacción spin-orbita ellos van a determinar la dirección del vector momento magnético. Los ingenieros que diseñan cintas magnéticas para guardar información buscan especialmente aquellos sistemas don-

de el momento magnético se alinee perpendicular a la superficie. Con este tipo de cálculos, introduciendo también la interacción spin-orbita esperamos poder predecir esas raras situaciones.

#### c) *Aleaciones magnéticas bidimensionales*

Cuando se deposita Mn sobre Cu o Ni se forma una estructura  $c(2 \times 2)$  que debajo de cierta temperatura se ordena. Como los átomos de Mn tienen un momento magnético grande uno se pregunta si se trata o no de magnetismo itinerante [FLWKD1995].

Para estudiar este problema calculamos films ordenados como los del ejemplo anterior, 5 capas de Ni con depósitos epitaxiales según las dos situaciones experimentales: una monocapa de Mn con concentración 50% y la aleación bidimensional de Mn y Ni (Figura 3). En ambos casos encontramos que existe una solución ferromagnética y otra antiferromagnética casi degeneradas. El efecto de la baja dimensionalidad debe ser importante ya que en volumen la aleación ordenada de NiMn no es magnética. También, si la monocapa de Mn depositada sobre el sustrato de Ni cubre más del 50% de la superficie el momento magnético de la misma rápidamente tiende a cero.

La Figura 4 muestra las densidades de estados locales en dos casos, uno ferromagnético y el otro antiferromagnético. Se pueden observar los efectos opuestos de la hibridización, que ensancha las bandas de energía, y de la baja dimensionalidad, que las angosta.

#### d) *Cúmulos de átomos magnéticos en el vacío*

Se ha medido el momento magnético de cúmulos, por ejemplo de 5 a 700 átomos de Ni, y el momento magnético por átomo resulta mayor que el del mismo material en volumen. Este experimento se hizo mediante espectroscopía de masas y deflexión tipo Stern-Gerlach, *Phys. Rev. Lett.* 76 pag. 1441 (1996). Al aumentar el tamaño de los cúmulos el momento magnético por átomo va decreciendo hasta el valor de volumen pero no lo hace en forma continua. Esas oscilaciones

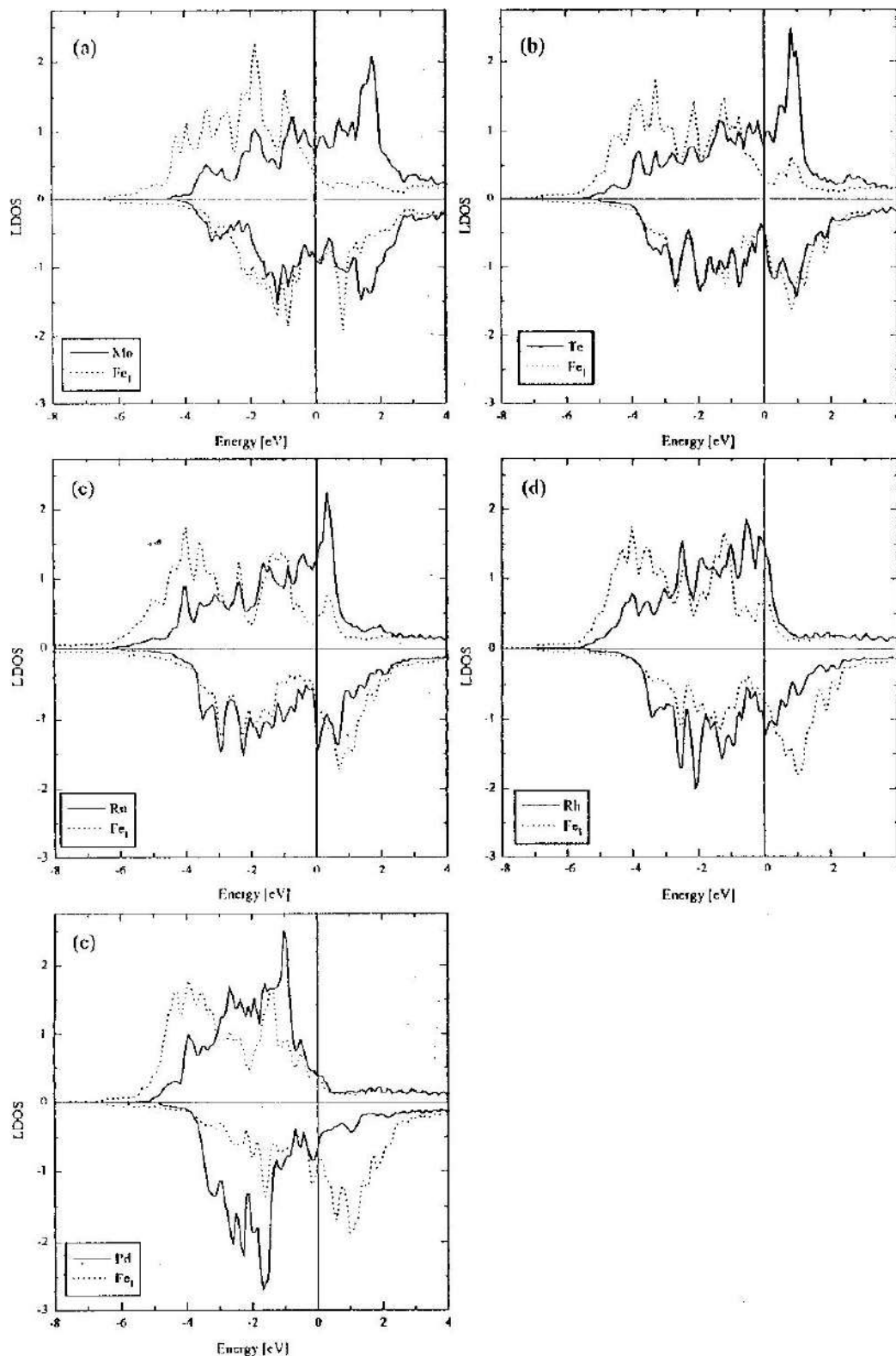


Fig. 2: Densidades locales de estados electrónicos para monocapas de metales 4d apoyados sobre un film de hierro (001). El cero de energías indica el nivel de Fermi, los spines mayoritarios se representan como valores positivos y los minoritarios como negativos. El acoplamiento ferro o antiferromagnético puede verse por los desplazamientos relativos de las curvas del metal 4d y del hierro. Los valores correspondientes del momento magnético son: Mo -0.23, Tc -0.21, Ru 0.06, Rh 0.53, Pd 0.23 y los de la primera capa de Fe, en contacto con los 4d, aumentan monótonamente 1.50, 1.68, 1.89, 2.25, 2.69.

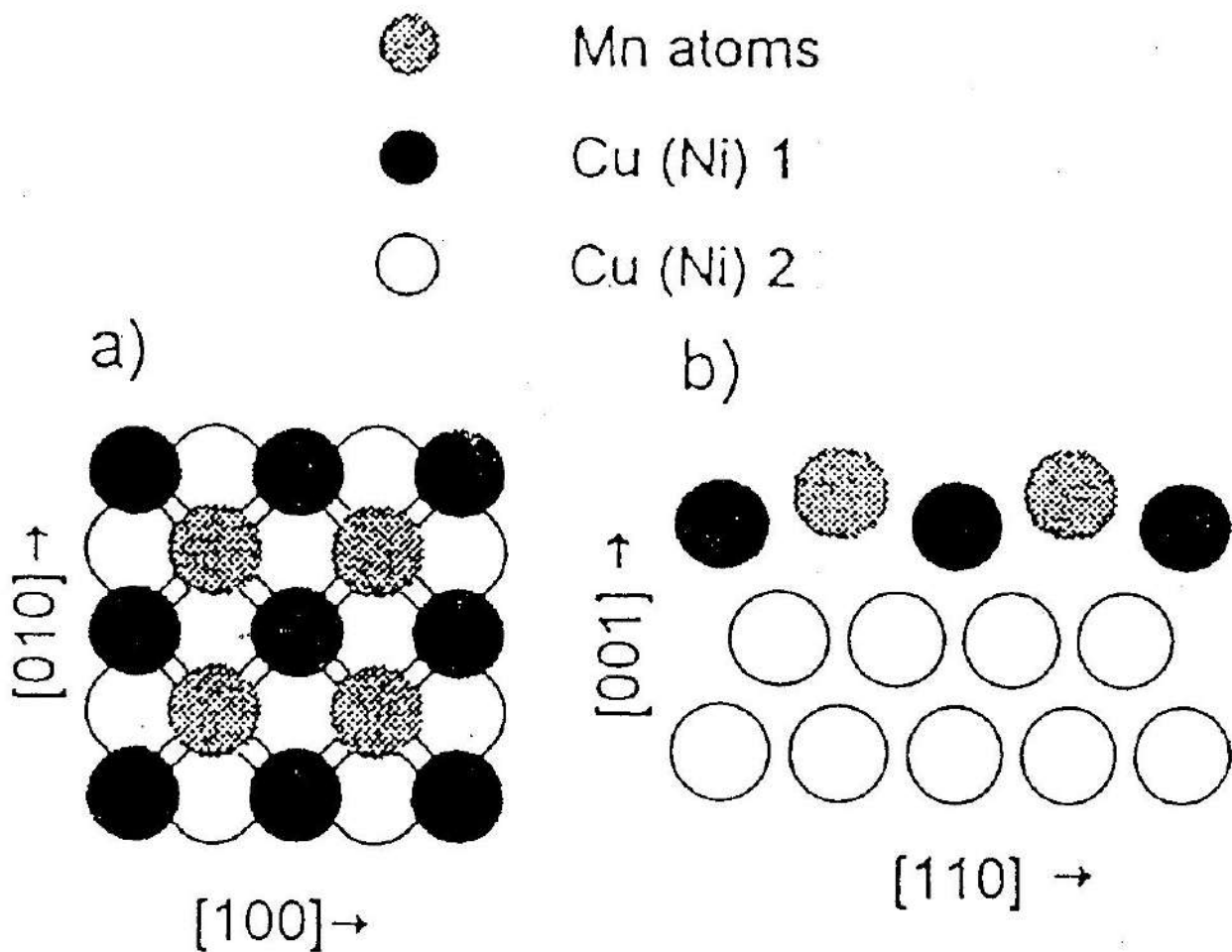


Fig. 3: Modelo estructural de la aleación superficial  $c(2 \times 2)$ . (a) vista desde arriba, (b) vista lateral.

las hemos podido reproducir con nuestros cálculos [GPLW1997], comprobando que es la forma en que los electrones se derraman fuera del cúmulo lo que las determina.

En la Figura 5 se comparan los resultados de los cálculos con los valores experimentales.

### 5. Magnetoresistencia gigante

Los ejemplos anteriores estudiaban el estado fundamental de los sistemas considerados, donde el magnetismo aparece o aumenta por efecto de la baja dimensionalidad. Este nuevo ejemplo se refiere a una propiedad de transporte que es característica de los sistemas de baja dimensión.

En 1988 se descubrió en la Universidad de París que la resistencia eléctrica de multicapas de Fe y Cr cambiaba muchísimo en presencia de un campo magnético (Figura 6). A ese fenómeno se lo llamó magnetoresistencia gigante y el primer trabajo, que ha sido citado miles de veces Phys. Rev. Lett. 61 pag. 2472 (1988) tiene como primer autor al físico argentino Dr. M. Baibich. Para explicar esto se suponen dos corrientes independientes, una de spin mayoritario y otra de spin minoritario. En el estado fundamental el sistema tendría los spines desordenados y por ese motivo la resistencia sería grande, ya que los electrones no encontrarían estados del mismo spin para pasar de un material a otro. Al aplicar el campo magnético todos los spines se alinean

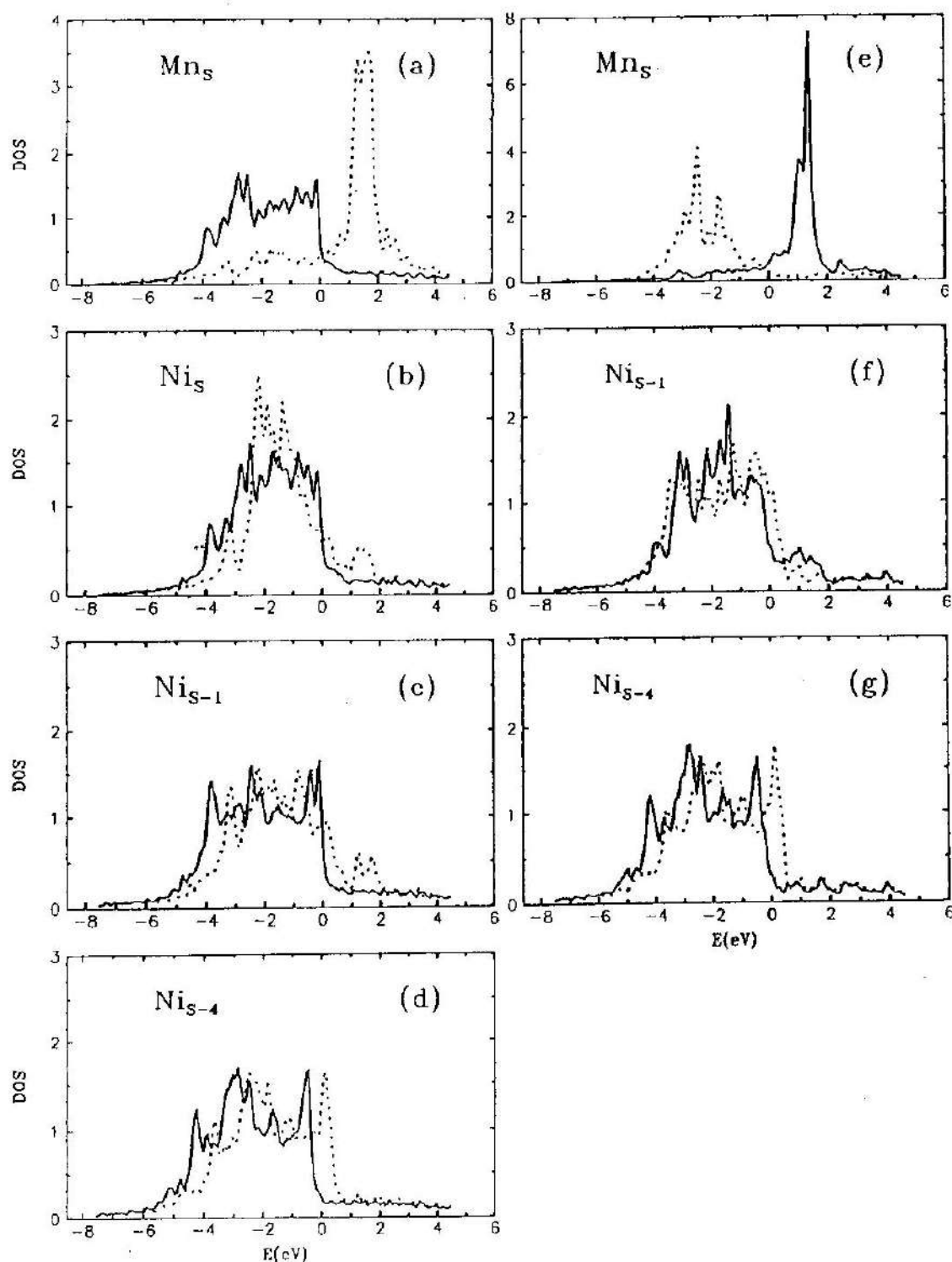


Fig. 4: Densidades locales de estados electrónicos para aleaciones bidimensionales de Mn apoyadas sobre Ni(001). El cero de energías indica el nivel de Fermi, los spines mayoritarios se representan con línea llena y los minoritarios con línea punteada. Los casos (a)-(d) son para una aleación bidimensional NiMn ferromagnéticamente acoplada con el Ni del sustrato. Los casos (e)-(g) son para un depósito de Mn de concentración 50%, acoplado antiferromagnéticamente con el Ni del sustrato. Los átomos de Ni directamente debajo del átomo de Mn son bien diferentes en los dos ejemplos, figuras (b) y (f), con momentos magnéticos de 0.4 y 0.1 magnetones de Bohr respectivamente. Los átomos de Mn de las figuras (a) y (e) tienen momentos magnéticos de 3.6 y -4.1 magnetones de Bohr.



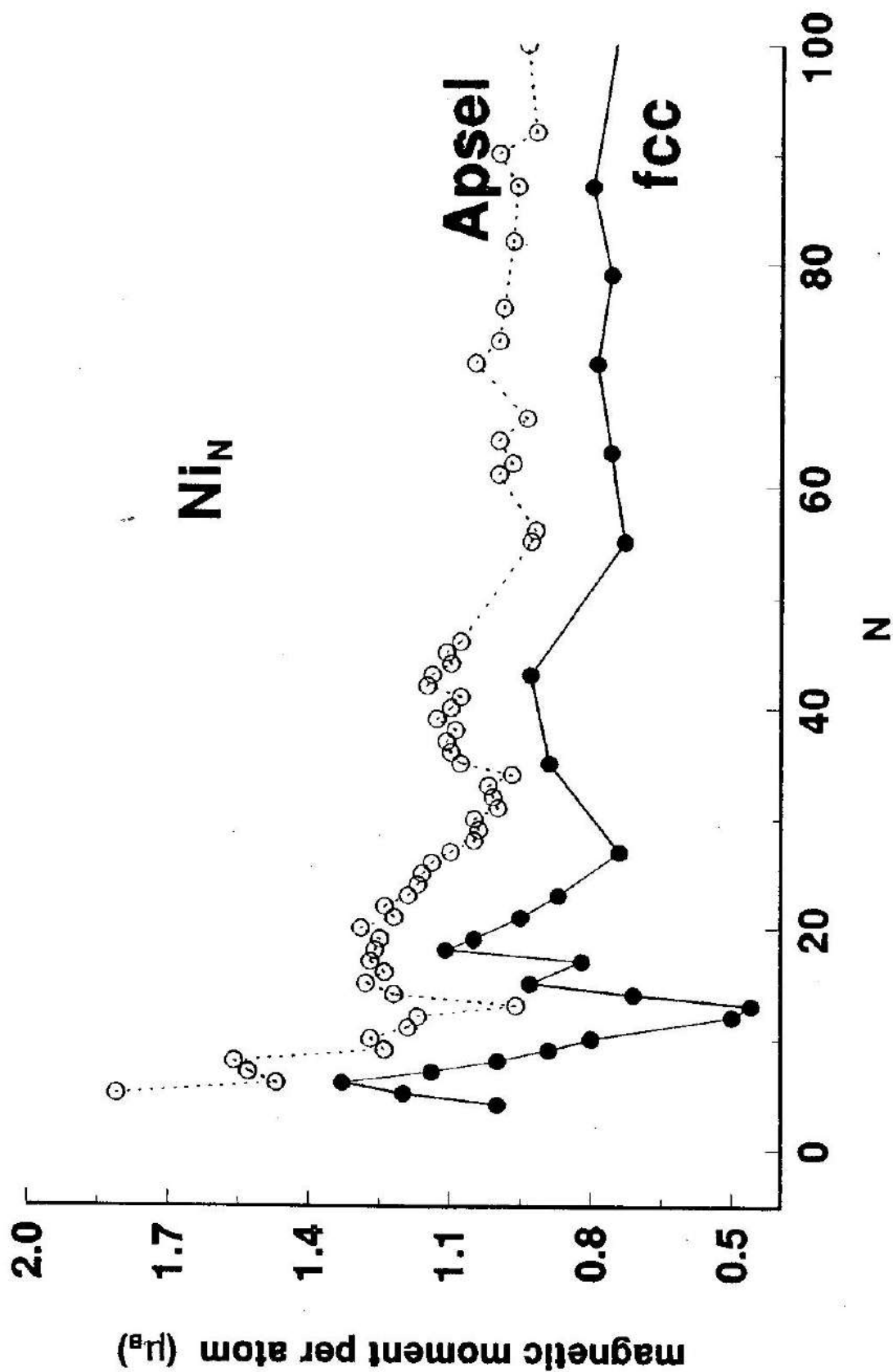


Fig. 5: Momento magnético por átomo para cúmulos de Ni en el vacío. La curva indicada con Apsel se refiere al resultado experimental de Phys. Rev. Lett. 76, 1441, (1996), y la indicada con fcc a nuestros cálculos, cuando los cúmulos son parte de una estructura fcc perfecta.

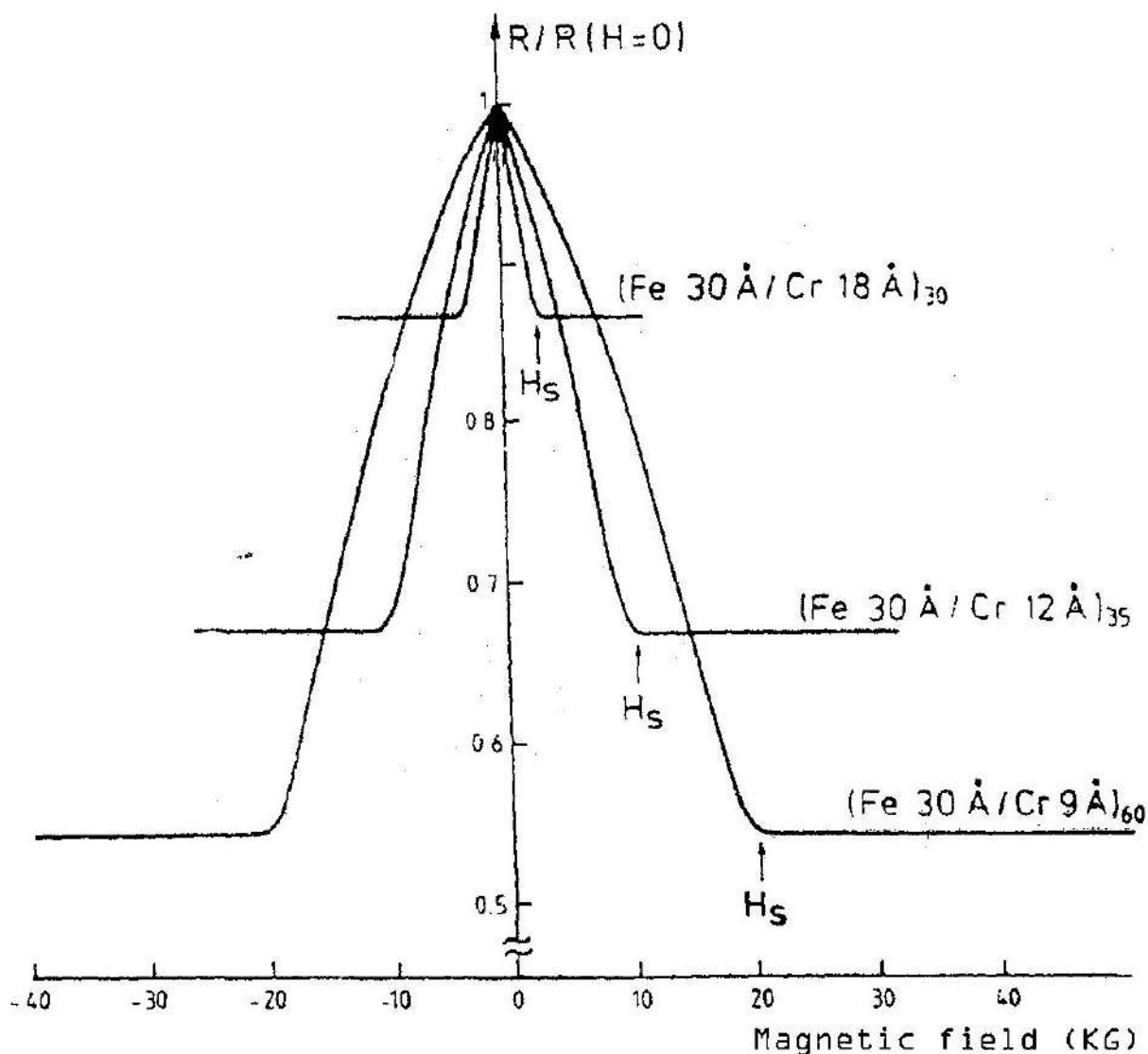


Fig. 6: Resistencia eléctrica de superredes de Fe y Cr en función del campo magnético aplicado.

rían, los electrones encontrarían estados del mismo spin en el otro material con lo cual la resistencia disminuiría.

Nos preguntamos cuánto de este efecto se debe a la estructura electrónica y cuánto influyen las imperfecciones de las interfaces. Para estudiar este problema, en lugar de comenzar con las multicapas de Fe y Cr buscamos un ejemplo más simple [GLW]. Existe un material natural, la aleación RhFe, que se parece a una multicapa pero en lugar de varias capas atómicas de cada material tiene

una sola monocapa de cada uno (Figura 7). Eso implica que la celda unidad en los cálculos tiene 2 o tal vez 4 átomos únicamente. Es una estructura tipo CICs, donde cada Fe está rodeado de 8 Rh y cada Rh de 8 Fe. Si uno lo mira según la dirección (001) ve capas de puro Fe y de puro Rh alternadas. El estado fundamental es antiferromagnético y los Rh no tienen momento magnético, pero al aplicar un campo magnético los Fe se alinean y el Rh adquiere un momento magnético bastante grande, como 1 magneton de bohr frente a 2.5

Estructuras magnéticas de la aleación RhFe.

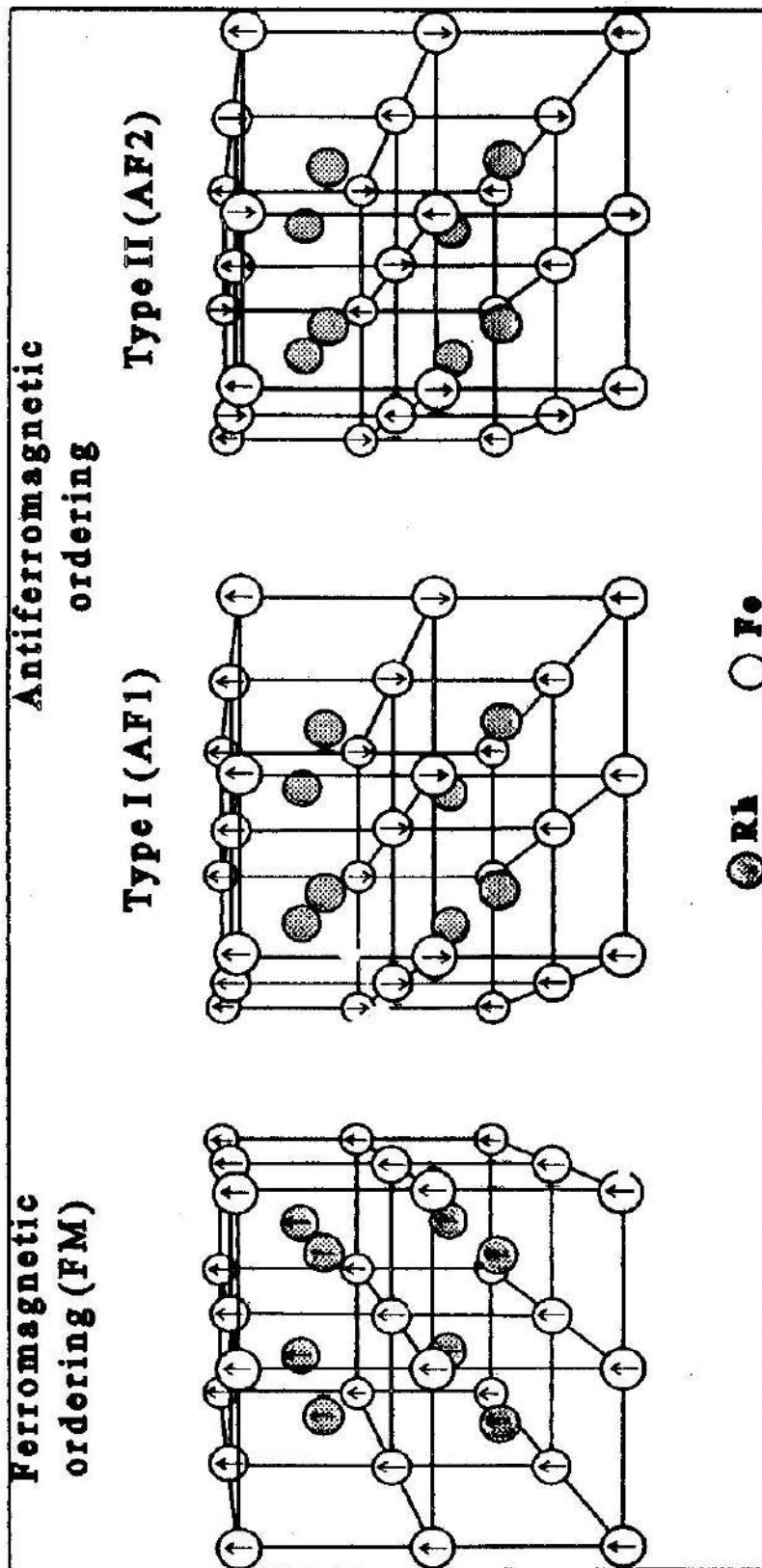


Fig. 7: Estructuras magnéticas de la aleación RhFe.

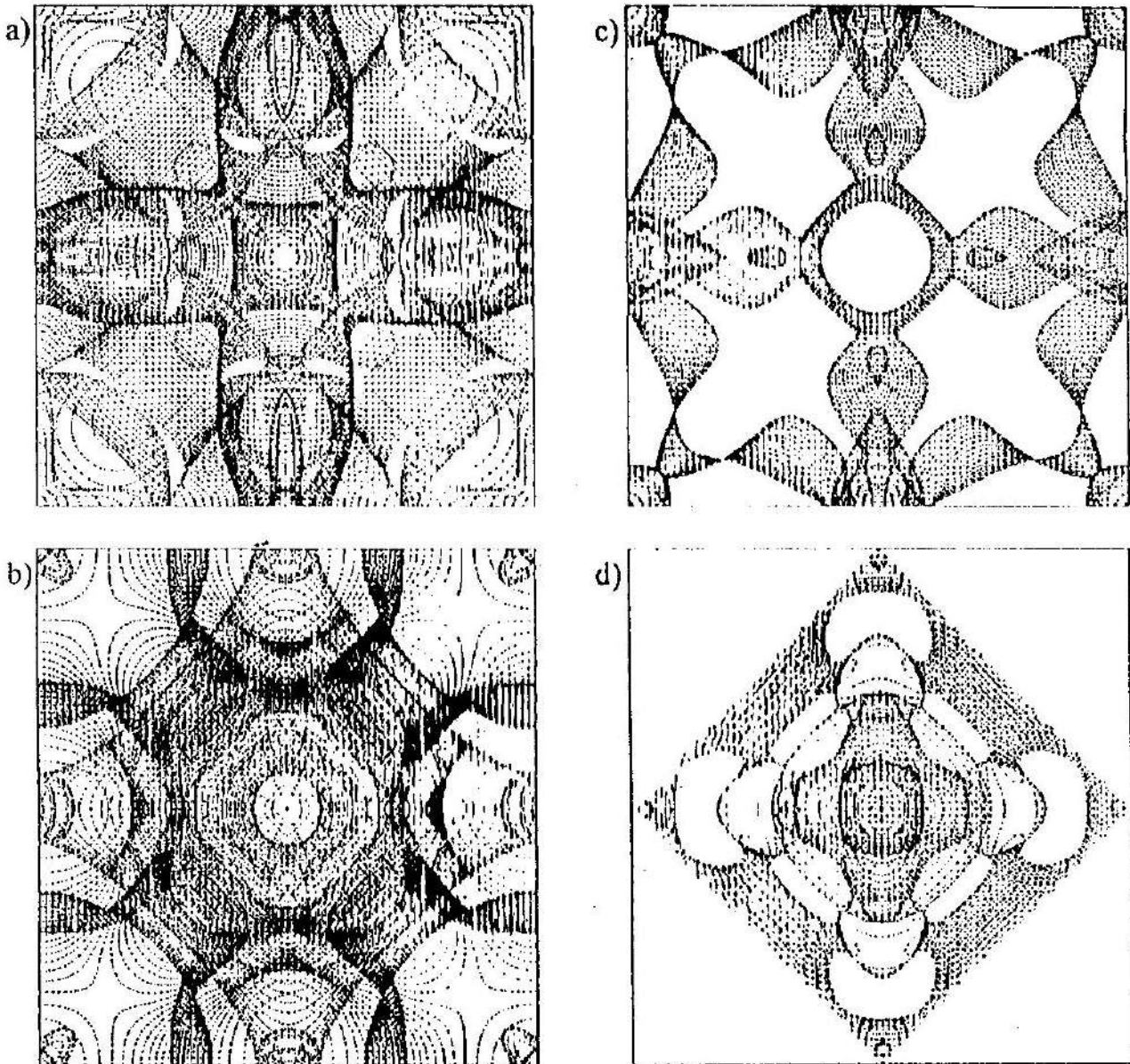


Fig. 8: Proyección de la superficie de Fermi del sistema RhFe en el plano normal a la superficie (001). (a) Spin mayoritario del caso ferromagnético, (b) Spin minoritario del caso ferromagnético, (c) Caso antiferromagnético I, (d) Caso antiferromagnético II. Es muy evidente el menor número de estados con energía  $E_f$ , cruces de la superficie de Fermi con el plano del papel, en los casos antiferromagnéticos, lo que resulta en una menor conductividad eléctrica o en una mayor resistencia.

del Fe.

Calculamos la estructura electrónica de estos sistemas, que tienen energías totales casi degeneradas, y luego la conductividad de cada uno. Para esto usamos la aproximación semiclasica (ecuación de Boltzmann), con la hipótesis de tiempo de relajación constante. Las integrales sobre la complicada super-

ficie de Fermi se evalúan con una grilla numérica tridimensional y por eso mismo se necesita un número muy grande de puntos  $k$  (del orden de 50000 en la zona de Brillouin reducida). La Figura 8 muestra la proyección de las superficies de Fermi calculadas.

La conductividad calculada para el caso antiferromagnético II resulta solo el 14%

de la del sistema ferromagnético, dando lugar por eso a una magnetorresistencia gigante debida únicamente a la estructura de bandas, ya que en este caso no hay interfaces a considerar. Repitiendo estos cálculos para sistemas de multicapas artificiales se pueden predecir sus propiedades y colaborar así en el diseño de nuevos materiales.

## 6. Conclusiones

Como puede verse de estos ejemplos, la baja dimensionalidad produce nuevos materiales magnéticos partiendo de elementos que no son magnéticos en volumen, como los metales de transición de la serie 4d. También aparecen nuevos fenómenos de transporte, como la magnetorresistencia gigante, que están siendo utilizados en modernos dispositivos de bases de datos.

## Agradecimientos

Este trabajo ha contado con apoyo económico de CONICET a través de subsidios, becas de estudiantes, miembros de la Carre-

ra del Investigador Científico, y convenio con el CNRS (Francia).

## Referencias

- [BSL1997] P. BLAHA, K. SCHWARTZ Y J. LUITZ. Wien97, Vienna University of Technology, Vienna, 1997.
- [FLWK1994] G. FABRICIUS, A.M. LLOIS, M. WEISSMANN Y A. KHAN. Phys. Rev. B 49, 2121 (1994).
- [RLW1996] R. GOMEZ ABAL, A.M. LLOIS Y M. WEISSMANN. J. Phys.: Condens. Matter 8, 6607 (1996).
- [FLWKD1995] G. FABRICIUS, A.M. LLOIS, M. WEISSMANN, A. KHAN Y H. DREYSEE. Surface Science 331-333, 1377 (1995).
- [GPLW1997] J. GUEVARA, F. PARISI, A.M. LLOIS Y M. WEISSMANN. Phys. Rev. B 55, 13283 (1997).
- [GLW1996] R. GOMEZ ABAL, A.M. LLOIS Y M. WEISSMANN. Phys. Rev. B 53, R8844 (1996).

*Manuscrito recibido en febrero de 1999.*