



UNIVERSIDAD MICHOACANA DE SAN NICOLÁS DE HIDALGO

*Facultad de Ciencias Físico-Matemáticas
"Mat. Luis Manuel Rivera Gutiérrez"*

DOCTORADO EN CIENCIAS EN INGENIERÍA FÍSICA

ESTUDIO DE LA TERMODINÁMICA EN SISTEMAS
MEDIO-METÁLICOS Y DE TRANSPORTE EN SÓLIDOS
DE BAJA DIMENSIÓN.

TESIS

PARA OBTENER EL GRADO DE
DOCTOR EN CIENCIAS EN INGENIERÍA FÍSICA

PRESENTA
MCIF. ERIC JOVANI GUZMÁN ORTIZ

ASESORES DE TESIS
Dr. en Cs. ALBERTO MENDOZA SUAREZ
Dr. en Cs. ORACIO NAVARRO CHÁVEZ

Morelia, Michoacán, Agosto de 2019



Índice general

Resumen	III
Abstract	v
Introducción	1
1. Estudio de la termodinámica del compuesto $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$	5
1.1. Doble perovskita $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$	5
1.2. Modelo electrónico del compuesto SFMO	11
1.3. Resultados y discusión	18
1.4. Conclusiones	29
2. Efecto termoeléctrico en superredes construidas a base de Siliceno	31
2.1. Siliceno	32
2.2. Termoelectricidad	37
2.3. Modelo teórico del dispositivo termoeléctrico.	38
2.4. Resultados y discusión	43
2.5. Conclusiones	62
Bibliografía	63

Resumen

En 1998, Kobayashi y sus colaboradores descubrieron que el compuesto ferromagnético con estructura de doble perovskita $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ posee una alta temperatura de Curie (T_C) de aproximadamente 415 K, y que además exhibe magnetorresistencia colosal a campos magnéticos de baja intensidad ($H < 1\text{T}$). En este trabajo, proponemos un modelo electrónico basado en el hamiltoniano de *tight-binding* y el modelo de Hubbard para incluir la correlación electrónica. Las propiedades termodinámicas del compuesto se obtuvieron utilizando la teoría de las funciones de Green y la expansión de perturbaciones renormalizadas. En particular, calculamos la densidad de estados (DOS) y la T_C para el sistema ordenado $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ y para el sistema dopado con Lantano $\text{Sr}_{2-y}\text{La}_y\text{FeMoO}_6$. En nuestros resultados obtuvimos la DOS y analizamos la evolución del carácter medio-metálico dependiendo del grado de magnetización. Además, observamos que la T_C incrementa su valor a través del dopaje con La. Por otro lado, el siliceno es un material bidimensional con estructura hexagonal corrugada que ha mostrado teóricamente propiedades electrónicas excepcionales para aplicaciones en espintrónica. El siliceno es un semiconductor con *gap* de 1.55 meV que exhibe un intenso acoplamiento espín-órbita (SOC) de 3.9 meV, ideal para la manipulación del valle y el espín de los portadores. En este trabajo, investigamos teóricamente las propiedades del transporte balístico y el efecto termoeléctrico en una superred periódica de potenciales electrostáticos aplicada a una capa de siliceno. La transmisión y la conductancia fueron calculadas usando el método de la matriz de transferencia y el formalismo de Landauer-Büttiker, respectivamente. Adicionalmente, hemos analizado el efecto termoeléctrico mediante el cálculo del coeficiente de Seebeck y el factor de potencia usando la formula de Cutler-Mott. Los resultados muestran que los máximos

valores del coeficiente de Seebeck y del factor de potencia superan en dos y tres órdenes de magnitud los reportados en superredes de grafeno.

Palabras clave: Doble perovskita $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$, temperatura de Curie, siliceno, coeficiente de Seebeck, termoelectricidad.

Abstract

In 1998, Kobayashi et al. found that the ferromagnetic half-metallic compound $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$, which has double perovskite structure, shows a high Curie temperature (T_C 415K) and a substantial giant magnetoresistance at low magnetic field intensities ($H < 1\text{T}$). In this work, we consider an electronic model based in tight-binding Hamiltonian and the Hubbard model. In order to obtain the thermodynamic properties, we have used the Green's functions theory and the renormalized perturbation expansion technique. In particular, we have calculated the density of states (DOS) and the T_C both for ordered system $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ and for La-doped system $\text{Sr}_{2-y}\text{La}_y\text{FeMoO}_6$. In our results, we obtained the density of states for different values of the magnetization and we analyzed the half-metallic character. On the other hand, we have found that T_C rises considerably as band filling increases due to La-doping. On other hand, recently, silicene, another like-graphene material, has theoretically demonstrated outstanding electronic properties for possible applications in spintronics. Silicene is a semicondutor with a band-gap of 1.55 meV, which exhibits an intense spin-orbit coupling (SOC) of 3.9 meV, ideal for the manipulation of valley and spin of carriers. In this work, we explore this possibility in silicene by reducing its dimensionality through the so-called gated silicene superlattices. The transmission and conductance were obtained by the transfer matrix method and the Landauer-Büttiker formalism, respectively. Additionally, we have analyzed the thermoelectric effects through the calculation of the Seebeck coefficient and the power factor using the Cutler-Mott formula. In our results, we find that the Seebeck coefficient and the power factor reach values two and three orders of magnitude higher than those found in gated graphene superlattices.

Keywords: Double perovskite $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$, Curie temperature, silicene, Seebeck coefficient.

Parte de esta tesis se publico en los siguientes artículos:

1. *Transport properties and thermoelectric effects in gated silicene superlattices*, E.J. Guzmán, O. Navarro, O. Oubram and I. Rodríguez-Vargas, Journal of Applied Physics **124**, 144305-1(11) (2018).
ISSN: 02218979. <https://doi.org/10.1063/1.5045479>
2. *Curie Temperature behavior within the electronic correlation picture in half-metallic ferromagnetic double perovskites*. F. Estrada, E.J. Guzmán, B. Aguilar, O. Navarro and M. Avignon, Physical Review B **97**, 195155-1(6) (2018).
ISSN 24699969. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.97.195155>
3. *Asymmetrical external effects on transmission, conductance and giant tunneling magnetoresistance in silicene*, O. Oubram, O. Navarro, E.J. Guzmán and I. Rodríguez-Vargas, Superlattices and Microstructures **113**, 483-496 (2018).
ISSN: 07496036. <https://doi.org/10.1016/j.spmi.2017.11.027>
4. *Electronic correlation effects on the Curie temperature in double perovskites*, O Navarro, F. Estrada, E.J. Guzmán and M. Avignon, Materials Today: Proceedings **5**, 17431-17436 (2018).
ISSN: 22147853. <https://doi.org/10.1016/j.matpr.2018.06.045>
5. *Increase of Curie temperature with La doping in the double perovskite Sr₂FeMoO₆ within an electronic correlation approach*, E.J. Guzmán, F. Estrada, B. Aguilar, O. Navarro and M. Avignon, Revista Mexicana de Física **64**, 145-149 (2018).
ISSN: 0035001X. <https://doi.org/10.31349/RevMexFis.64.145>

Justificación

El propósito principal por el cual se realizó esta investigación se resume en los siguientes puntos:

- Desarrollar dispositivos eléctricos con mejores capacidades informáticas:

En las últimas décadas la electrónica ha sido una herramienta de gran utilidad, mejorando en muchos aspectos la calidad de vida de la sociedad moderna. Actualmente, la electrónica convencional basada en silicio está llegando a un punto límite de miniaturización impuesta por la escala nanométrica y los problemas de disipación de calor, por lo que se buscan nuevas alternativas para mejorar las capacidades informáticas de los dispositivos electrónicos. Una excelente opción es explotar la propiedad del espín para codificar la información y así poder aumentar las capacidades de almacenamiento, transmisión y procesamiento de la información. Actualmente, existe una amplia investigación de novedosos materiales con propiedades espintrónicas que podrían impulsar el desarrollo de una nueva clase de electrónica que sirva de base de la computación cuántica.

- Desarrollar materiales para la producción de energía limpia y renovable:

La mayoría de la energía producida el día de hoy proviene de fuentes no renovables, tales como los combustibles fósiles (carbón, petróleo) y el gas natural, los cuales contribuyen en gran medida en la contaminación del medio ambiente. Con el fin de combatir este problema, actualmente se dedica mucha investigación al desarrollo de nuevas formas de obtener energía limpia y renovable, o bien, a través del desarrollo de dispositivos energéticamente más eficientes. En particular, se puede recuperar energía de una fuente de calor mediante el efecto Seebeck dentro de la teoría de la termoelectricidad, el cual establece que a partir de una diferencia de temperatura es posible generar una corriente eléctrica. Para lograr este efecto, es necesario desarrollar materiales o dispositivos avanzados con una alta eficiencia termoelectrónica.

Objetivos

Los propósitos de esta investigación se enlistan a continuación:

1. $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ (SFMO):

- Estudiar las propiedades electrónicas de la doble perovskita $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$.
- Comprender la relación que hay entre el carácter medio-metálico y la magnetización del compuesto mediante el cálculo de la densidad de estados.
- Calcular la temperatura de Curie (T_C) considerando el efecto de la correlación electrónica del sistema SFMO ordenado. Además, de investigar el comportamiento de la T_C al dopar con La.
- Analizar y comparar los resultados de nuestro modelo con los reportados de manera experimental.

2. Siliceno:

- Comprender los principios y los fundamentos físicos del transporte balístico y el efecto termoeléctrico en superredes construidas a base de siliceno.
- Calcular la probabilidad de transmisión y la conductancia, con el fin de encontrar las condiciones adecuadas para modular y optimizar el transporte de los portadores de acuerdo a sus componentes de valle y espín.
- Calcular el coeficiente de Seebeck para poder determinar los parámetros físicos requeridos para elevar el valor del factor de potencia, y por lo tanto, la eficiencia termoeléctrica del dispositivo.

En general se busca identificar bajo que condiciones se pueden aprovechar las propiedades electrónicas intrínsecas de dichos materiales para la creación de dispositivos espintrónicos, tales como transistores y procesadores de espín, o bien, fabricar dispositivos más eficientes para la generación de energía eléctrica. Lograr tales avances tendrían implicaciones directas en el desarrollo y mejoramiento de la nanoelectrónica actual.

Introducción

Desde su invención, la electrónica convencional basada en silicio, ha usado la carga eléctrica para codificar los datos informáticos en un sistema lógico binario de unos y ceros conocidos como *bits*. Las primeras computadoras (*Colossus* y *ENIAC*) fueron máquinas de enormes dimensiones construidas con circuitos eléctricos y componentes muy rudimentarios. Por obvias razones, su poder de computo estaba bastante limitado (era muy deficiente), el procesamiento de la información era extremadamente lento y solo se podía almacenar muy poca información en memoria. El componente principal de estos ordenadores eran los diodos o bulbos de vacío, los cuales funcionaban como amplificadores y conmutadores de la corriente eléctrica. Sin embargo, tenían muchas complicaciones y eran dispositivos muy ineficientes, de hecho, utilizaban mucha energía y generaban demasiado calor, además se quemaban con regularidad y su fabricación era muy costosa. Fue hasta 1947, cuando se dio la gran revolución informática del siglo XX, con la invención del primer transistor por parte de los ingenieros de los laboratorios *Bell*: John Bardeen, Walter Brattain y William Shockley, a quienes les fue otorgado el premio Nobel de Física en 1956. Los transistores están hechos de la combinación de contactos metálicos con un semiconductor, principalmente silicio o germanio. Son pequeños, fáciles de manufacturar y de muy bajo costo, además realizan las mismas funciones que los bulbos de vacío, pero con mayor eficiencia y velocidad para conmutar la corriente, así como una mejor amplificación de la señal. Más tarde, en 1957, Jack S. Kilby ingeniero de *Texas Instruments* desarrolló el primero circuito integrado. Se trata de un dispositivo construido a partir de la interconexión de muchos transistores, capacitores y resistencias sobre una misma placa de silicio para formar un oscilador de rotación de fase. Posteriormente, Robert Noyce

simplificó y sofisticó la arquitectura de los circuitos integrados haciéndolos más adecuados para su producción en masa. En 1971, la compañía *INTEL* desarrolló el primer procesador (*CPU*) con 2300 transistores a escala micrométrica, los llamados *Microchips*. Con esta innovación tecnológica la industrialización y la comercialización de las computadoras personales sería una realidad. Con el transcurso del tiempo y hasta principios del nuevo milenio, la miniaturización de los transistores continuó avanzando a pasos agigantados duplicando su número dentro de los circuitos integrados cada dos años volviéndose más complejos y estructurados, lo que se reflejó en un incremento enorme de las capacidades de procesamiento, transmisión y almacenamiento de la información de los dispositivos electrónicos. Sin embargo, según la ley de Moore [1], para la segunda década del siglo XXI el proceso de miniaturización convencional ya no sería posible debido a las limitaciones y dificultades tecnológicas de los materiales y las técnicas de fabricación. Por lo que hoy en día se investiga intensamente nuevos materiales y diversas alternativas para seguir desarrollando la nanoelectrónica moderna.

La espintrónica es una reciente rama de la física introducida en la década de 1980 [2–5]. Con el paso de los años y hasta la fecha, ha logrado mucho interés y gran importancia dentro de la comunidad científica por las grandes implicaciones que tendría de lograr implementarse y acoplarse a la nanoelectrónica moderna. El fundamento principal de la espintrónica es poder utilizar la propiedad cuántica del espín del electrón para transferir la información mediante un nuevo sistema de codificación binario (*qbits*). Poder manipular a voluntad el espín dará lugar a una nueva generación de dispositivos electrónicos con extraordinarias y novedosas funcionalidades, además de un mejor rendimiento energético y mayores capacidades informáticas. Con tal propósito, en las últimas décadas, la ciencia del estado sólido se ha enfocado en investigar una nueva clase de materiales con propiedades excepcionales, las cuales pueden ser aprovechadas para futuras aplicaciones en la espintrónica. Entre estos materiales destacan las perovskitas [6], los óxidos ferromagnéticos [7, 8], los sólidos de baja dimensión [9], nanocompositos [10, 11], nanoestructuras [12, 13], heteroestructuras [14, 15], superredes [16, 17] y los aislantes topológicos [18, 19], entre muchos otros. El inicio formal de la espintrónica comenzó en 1986 con el

descubrimiento experimental del fenómeno de la magnetorresistencia gigante (GMR) en estructuras multicapa Fr/Cr por los grupos de investigación de Peter Grünberg [20] y Albert Fert [21] de manera independiente. La aplicación inmediata que tuvo la GMR fue en el funcionamiento de la cabeza lectora de los discos duros implementado por la compañía *IBM*. En esta misma dirección, fueron descubiertos otros fenómenos cuánticos de gran relevancia tales como la magnetorresistencia colosal (CMR) [22], la magnetorresistencia de efecto túnel (TMR) [23, 24], la medio-metalicidad [25, 26], el efecto Hall cuántico de espín (QSHE) [27, 28], el acoplamiento espín-órbita intrínseco (SOC) y de Rashba [29], con los cuales se ha abierto la posibilidad de controlar la conducción de portadores de acuerdo con sus componentes de valle y espín (valley-spintronics). Con base en estos fenómenos, una serie de dispositivos espintrónicos han sido propuestos, fabricados e inclusive implementados en la electrónica convencional. Algunos de los dispositivos más conocidos son los transistores de efecto de campo (spin-FET y spin-MOSFET) [30], las memorias RAM y MRAM [31, 32], válvulas e inyectores de espín [33–35], sensores de multicapas ultradelgadas [36] y diodos de espín (spin-LEDS) [37], entre otros. Sin embargo, a pesar de los enormes avances, la manipulación del espín sigue siendo un proceso complicado y en extremo limitado. En la actualidad, los mayores desafíos que enfrenta el campo de la espintrónica incluyen la preservación del espín para el almacenamiento de información, la generación de corrientes espín-polarizadas, la optimización del tiempo de vida del espín para el transporte a largas distancias, así como la codificación y el procesamiento de los *qbits*. En un futuro próximo, si se logran solventar estos desafíos, la ciencia daría paso a una nueva revolución informática: la computación cuántica.

1. Estudio de la termodinámica del compuesto $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$

En años recientes, los óxidos ferromagnéticos medio-metálicos han atraído mucho interés y adquirido gran relevancia debido a sus extraordinarias propiedades electrónicas y magnéticas. Actualmente, estos materiales son considerados importantes e imprescindibles para las aplicaciones en la espintrónica. En este capítulo nos interesa estudiar el compuesto conocido como doble perovskita $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ (SFMO), cuya estructura y propiedades electrónicas presentamos en la primer sección. En la segunda sección, introducimos el modelo que describe el compuesto SFMO, el cual considera el hamiltoniano de *tight-binding* y el modelo de Hubbard para incluir tanto el efecto de la correlación electrónica como la interacción de intercambio, los cuales dan origen a las cualidades ferromagnética y medio-metálica del compuesto. En la sección final discutimos los resultados que hemos obtenido al analizar las propiedades termodinámicas del sistema Sr_2FeMO_6 con un cierto metal de transición M, y también del sistema dopado con Lantano dado por $\text{La}_{2-y}\text{Sr}_y\text{FeMO}_6$ para una cierta concentración (y).

1.1. Doble perovskita $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$

Las dobles perovskitas son una extensión de la familia de los óxidos con estructura de perovskita simple. La fórmula química general de la doble perovskitas es $\text{A}_2\text{BB}'\text{O}_6$, donde el catión A puede ser ocupado por diferentes tierras raras (La, Pr, Nd, Sm) cuyo estado de oxidación es generalmente +3, o bien por metales alcalino-térreos (Ca, Sr, Ba)

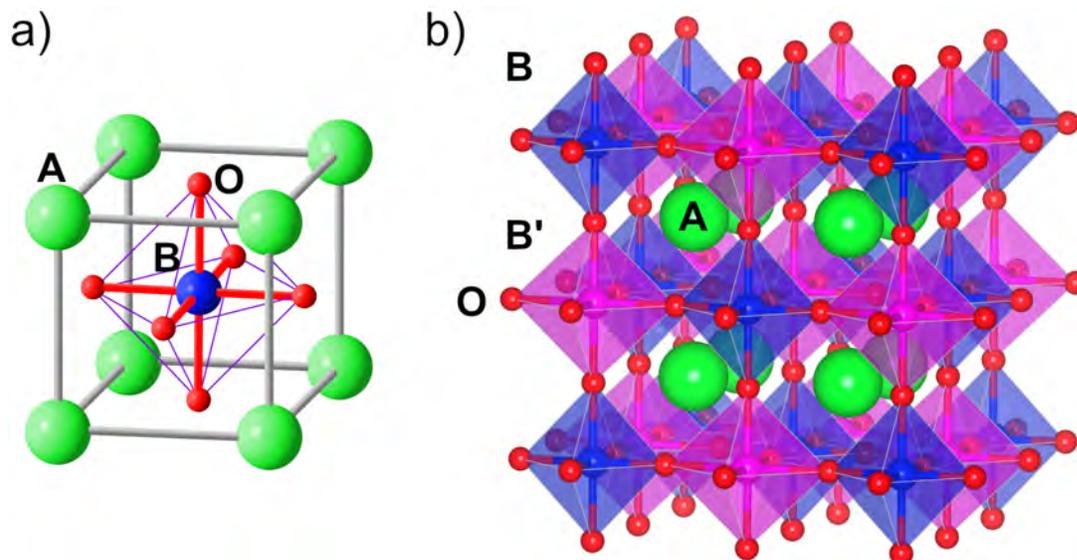


Figura 1.1: a) Celda básica de la perovskita simple ABO_6 . b) Estructura cristalina de la doble perovskita $\text{A}^2\text{B}^2\text{O}_6$, donde el catión A es ocupado por tierras raras, los cationes B y B' son ocupados por diferentes metales de transición y O simboliza el átomo de Oxígeno.

cuyo estado de oxidación es +2. Los cationes B (B') pueden estar ocupados por diferentes metales de transición de valencia mixta (Mn, Fe, Mo, Re, W, Cr, Co, Ni). La estructura cristalina de la dobles perovskita está formada por octaedros de oxígeno que rodean los cationes B y B', los cuales se sitúan y se alternan en las esquinas de una red cubica tipo NaCl. Los cationes A se localizan justo en el centro de los cubos como se muestra en la figura 1.1.

La doble perovskita que nos interesa estudiar es el compuesto $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ (SFMO) cuya estructura perfecta y ordenada consiste de dos subestructuras octaédricas FeO_6 y MoO_6 alternadas a lo largo de los tres ejes cristalinos en una red cúbica (ver figura 1.2). Los átomos de Sr se localizan en el centro de la red cúbica y están rodeados por una subestructura dodecaédrica con átomos de oxígeno en los vértices. De igual manera, la estructura del compuesto SFMO puede ser vista como dos sub-redes FCC (FeO_6 y MoO_6) entrelazadas, donde la celda unitaria es tetragonal ($I4/mmm$) y cuyos vectores de red tienen las dimensiones $a = b = 5.57 \text{ \AA}$ y $c = 7.9 \text{ \AA}$ [46].

Los estados de oxidación de Fe y de Mo en este compuesto son mixtos y no se co-

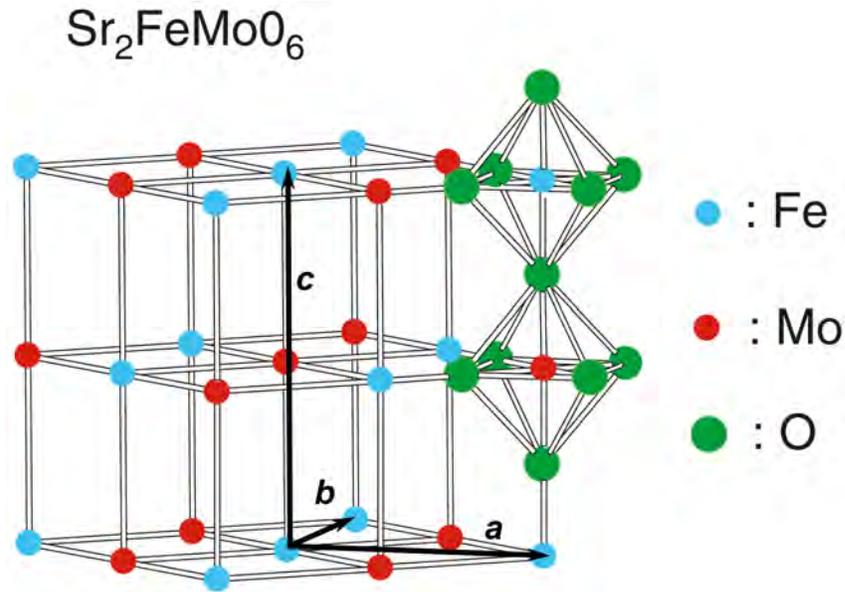


Figura 1.2: Estructura de la doble perovskita $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ (SFMO) formada por los cationes de hierro (Fe) y Molibdeno (Mo) en una red cubica tipo NaCl. Cada catión esta rodeado por átomos de oxígeno en una subestructura octaédrica.

nocen con certeza, sin embargo. Hoy en día sigue siendo un tema de mucha discusión que comenzó con el auge de la intensa experimentación del compuesto SFMO [47–50]. Estudios experimentales como espectroscopía Mössbauer [51, 52] y XPS [53] sugirieron que el Fe presenta un estado de oxidación de +3 ($3d^5$) y el Mo un estado de oxidación de 6+ ($4d^0$) y que raramente uno encuentra un estado 5+ en compuestos con este elemento. Además, otros estudios sugieren una configuración donde el Fe se encuentra en un estado de oxidación intermedio entre 2+ y 3+ [54–57].

Mucha de la evidencia experimental recabada indica que el compuesto SMFO presenta una configuración electrónica mixta (*mixed*) $\text{Fe}^{3-\delta}(3d^{5+\delta})-\text{O}-\text{Mo}^{5+\delta}(4d^{1-\delta})$ con $0 < \delta < 1$ [58]. En la figura 1.3, los iones de Fe se encuentran acoplados ferromagnéticamente (FM) ya sea a través de un mecanismo de superintercambio o bien mediante un mecanismo de doble intercambio. Para el mecanismo de superintercambio la configuración electrónica es $\text{Fe}^{3+}(3d^5)-\text{O}-\text{Mo}^{5+}(4d^1)-\text{O}-\text{Fe}^{3+}(3d^5)$, donde los iones de Fe y Mo tienen espín $S = 5/2$ y $S = 1/2$, respectivamente. Por otro lado, para el caso del mecanismo de doble inter-

cambio la configuración electrónica es $\text{Fe}^{2+}(3d^6) - \text{O} - \text{Mo}^{6+}(4d^0) - \text{O} - \text{Fe}^{3+}(3d^5)$, donde un electrón itinerante por unidad de fórmula (f.u) es requerido [59].

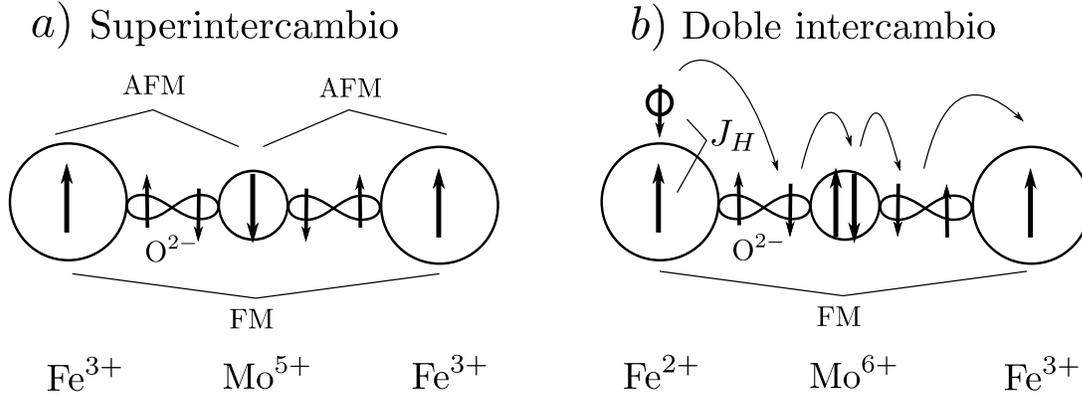


Figura 1.3: Mecanismo de superintercambio y de doble intercambio que dan origen acoplamiento ferromagnético de los iones de Fe en el compuesto SFMO.

En 1998 Kobayashi et al. [38] descubrieron que la doble perovskita $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ exhibe el efecto de magnetorresistencia gigante (GMR) cuando es sometido a un campo magnético externo de baja intensidad (< 1 T). Además, en este estudio (ver figura 1.4 a)) se observó que el efecto se mantiene en un amplio rango de temperatura (0 - 300 °K). De aquí la gran importancia de este compuesto, ya que detectar GMR a temperatura ambiente es un aspecto esencial para aplicaciones en la nanoelectrónica (tal como se ha utilizado en la funcionalidad de la cabeza lectora de los discos duros). También, se descubrió que el compuesto SFMO es un material ferromagnético de alta temperatura de Curie (> 400 °K). De acuerdo con la figura 1.4 a), notamos que la magnetización se va perdiendo conforme la temperatura se incrementa. Cuando se alcanza la temperatura crítica de aproximadamente 415 °K, la magnetización en el compuesto SFMO se pierde por completo ($m = 0$). Entonces ocurre la transición del estado ferromagnético al estado paramagnético. Si se considera una configuración electrónica $\text{Fe}^{3+} - \text{Mo}^{5+}$ del SFMO, teóricamente la magnetización de saturación (M_s) será igual a $4\mu_B/\text{f.u.}$ a temperaturas muy bajas (~ 0 °K), es decir,

$$M_s = |g_J| \mu_B \left(\frac{5}{2} - \frac{1}{2} \right) = 4\mu_B \quad , \quad (1.1)$$

donde $g_J = g_S \approx -2$ es el factor giromagnético de Landé para el caso donde únicamente el espín (S) contribuye al momento angular total (J). En la figura 1.4 b) se confirma experimentalmente este hecho al medir un valor de la magnetización de aproximadamente $3\mu_B/\text{f.u.}$ a una temperatura $T = 4.2 \text{ }^\circ\text{K}$ [38]. La discrepancia con el valor ideal ($4\mu_B$) es causado por las fluctuaciones térmicas, las imperfecciones cristalográficas y la presencia de impurezas en la muestra. Las impurezas se atribuyen principalmente a algún grado de desorden catiónico entre los elementos Fe y Mo, los cuales intercambian sus posiciones creando los llamados anti-sitios (AS). La presencia de antisitios de Fe ($S = -1/2$) se ve reflejada con la aparición de enlaces Fe–Fe, cuyos espines se alinean en una configuración antiferromagnética [60, 73], anulándose entre sí y reduciendo considerablemente el grado de magnetización total del sistema. En cambio los enlaces Mo–Mo por su neutralidad de espín no contribuyen en mantener el compuesto magnetizado. Bajo este enfoque, se han realizado estudios teóricos considerando un cierto grado de desorden controlando la concentración (x) de iones de Fe–Mo a través del sistema no-estequiométrico $\text{Sr}_2\text{Fe}_{1+x}\text{Mo}_{1-x}\text{O}_6$ [62, 63], donde se investigó de que manera la presencia de AS modifica el estado ferromagnético y consecuentemente el carácter medio-metálico del compuesto, en comparación con la composición ideal ($x = 0$). Por otro lado, mediante experimentos [57] y simulaciones de Monte Carlo [64], se ha establecido que la relación entre M_s y la concentración (x) de AS tiene la forma

$$M_s = 4\mu_B(1 - 2x) \quad , \quad (1.2)$$

donde $-1 \leq x \leq 1/3$.

Otra característica importante es el carácter medio-metálico del compuesto SFMO [38], el cual se infiere directamente de la densidad de estados que se muestra en la figura 1.5. Para el canal de espín *down* (\downarrow) las sub-bandas Fe(t_{2g})–Mo(t_{2g}) forman la banda de conducción, el nivel de Fermi E_F se encuentra justo dentro de esta banda, implicando que el compuesto SFMO sea conductor para los electrones con espín *down*. Por otro lado, para el canal de espín *up* (\uparrow), el nivel de Fermi aparece dentro de un *gap*, el cual separa la sub-banda de valencia Fe(e_g) de la sub-banda de conducción Mo(t_{2g}). Por lo que el

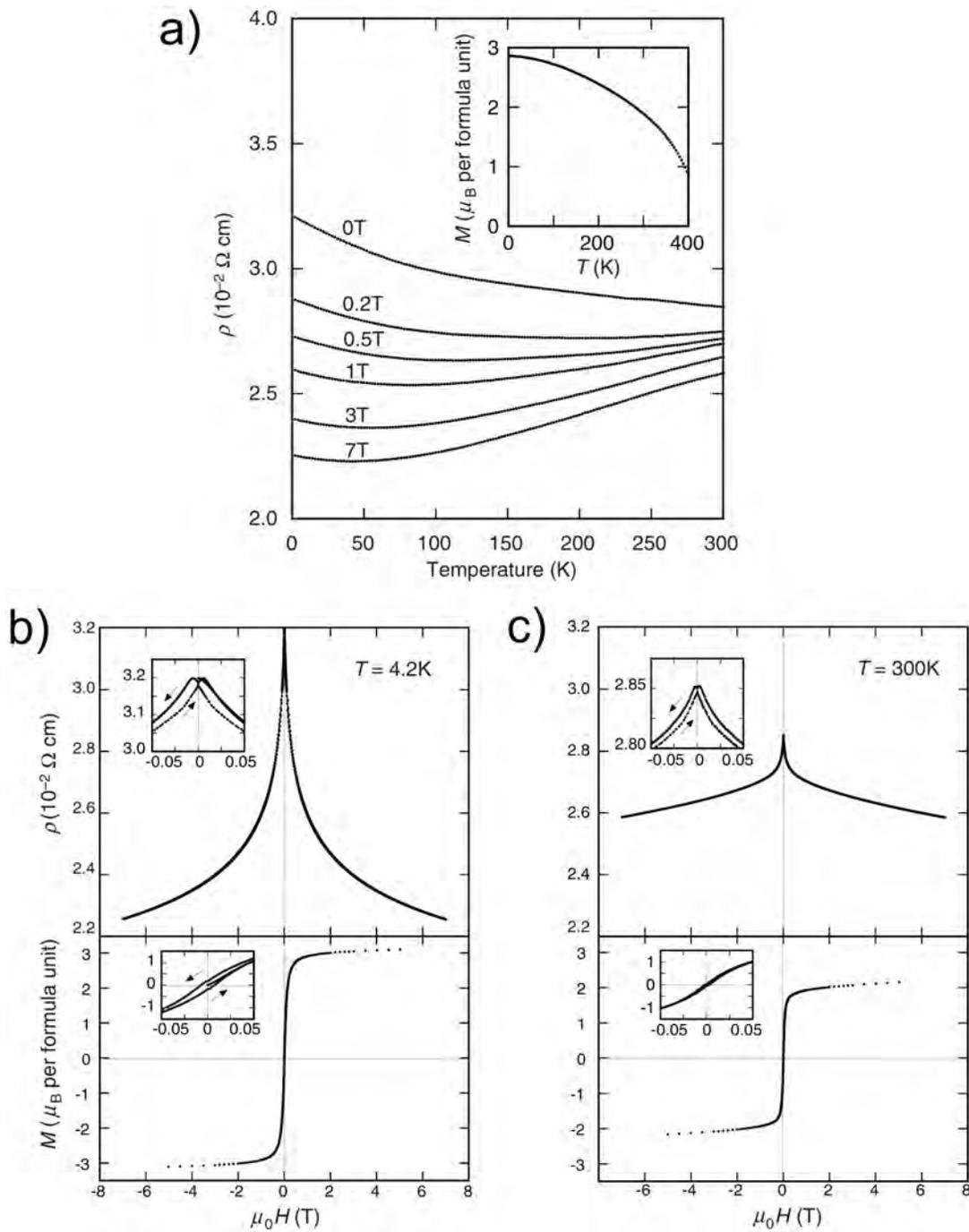


Figura 1.4: Resultados experimentales [38] que demuestran que el compuesto $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ exhibe: a) magnetorresistencia colosal y alta temperatura de Curie de aproximadamente 415 °K, b) fuerte magnetización de $3\mu_B$ a 4.2 °K y c) considerable magnetización ($2\mu_B$) a temperatura ambiente.

compuesto exhibe un comportamiento de aislante para los electrones con espín *up*. El ancho del *gap* es aproximadamente de 0.8 eV, un valor que cae dentro del intervalo de un semiconductor. También, resaltamos que los orbitales de $\text{Sr}^{2+}(4p^65s^0)$ y $\text{O}^{2-}(2p^6)$ no contribuyen en la conducción, ya que éstos se encuentran muy por debajo del nivel de Fermi en ambos canales del espín. A una temperatura extremadamente baja (~ 0 °K), el compuesto SFMO se encuentra en un estado completamente medio-metálico. Aquí, la polarización del espín es

$$P = \frac{N_{\uparrow} - N_{\downarrow}}{N_{\uparrow} + N_{\downarrow}} = 1 \quad , \quad (1.3)$$

lo cual significa que un 100 % de la banda sea ocupada por electrones con espín *down* alrededor del nivel de Fermi, o dicho de otro modo, no hay estados disponible para espín *up* ($N_{\uparrow} = 0$). Ahora bien, a temperatura ambiente (300°K), el estado ferromagnético aun se mantiene bastante fuerte, debido a la alta T_C del compuesto SFMO. En efecto, como lo muestra la figura 1.4c), la magnetización de saturación es $M_s = 2.2\mu_B$ a 300 °K, indicando una alta polarización de espín de alrededor del 60 %. Esto es esencial para las aplicaciones en espintrónica, ya que la propiedad medio-metálica se conserva.

1.2. Modelo electrónico del compuesto SFMO

El sistema que proponemos con el fin de estudiar las propiedades de la doble perovskita $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ consiste de una red cubica (tipo NaCl) formada por átomos de Mo y Fe completamente fijos, los cuales se alternan en las tres direcciones espaciales como se muestra en la figura 1.2. El modelo matemático para este sistema se basa en el hamiltoniano de amarre fuerte TBM (*tight-binding model*) [39], el cual considera la energía cinética de los electrones itinerantes, donde se incluye la energía de sitio y el salto (*hopping* de los portadores. Adicionalmente, introducimos el modelo de Hubbard para considerar la correlación electrónica en este sistema [40], que incluye tanto la correlación electrónica como la interacción de intercambio que explica la propiedad ferromagnética del compuesto SFMO [41–45]. El hamiltoniano total del sistema que integra todos estos factores de energía

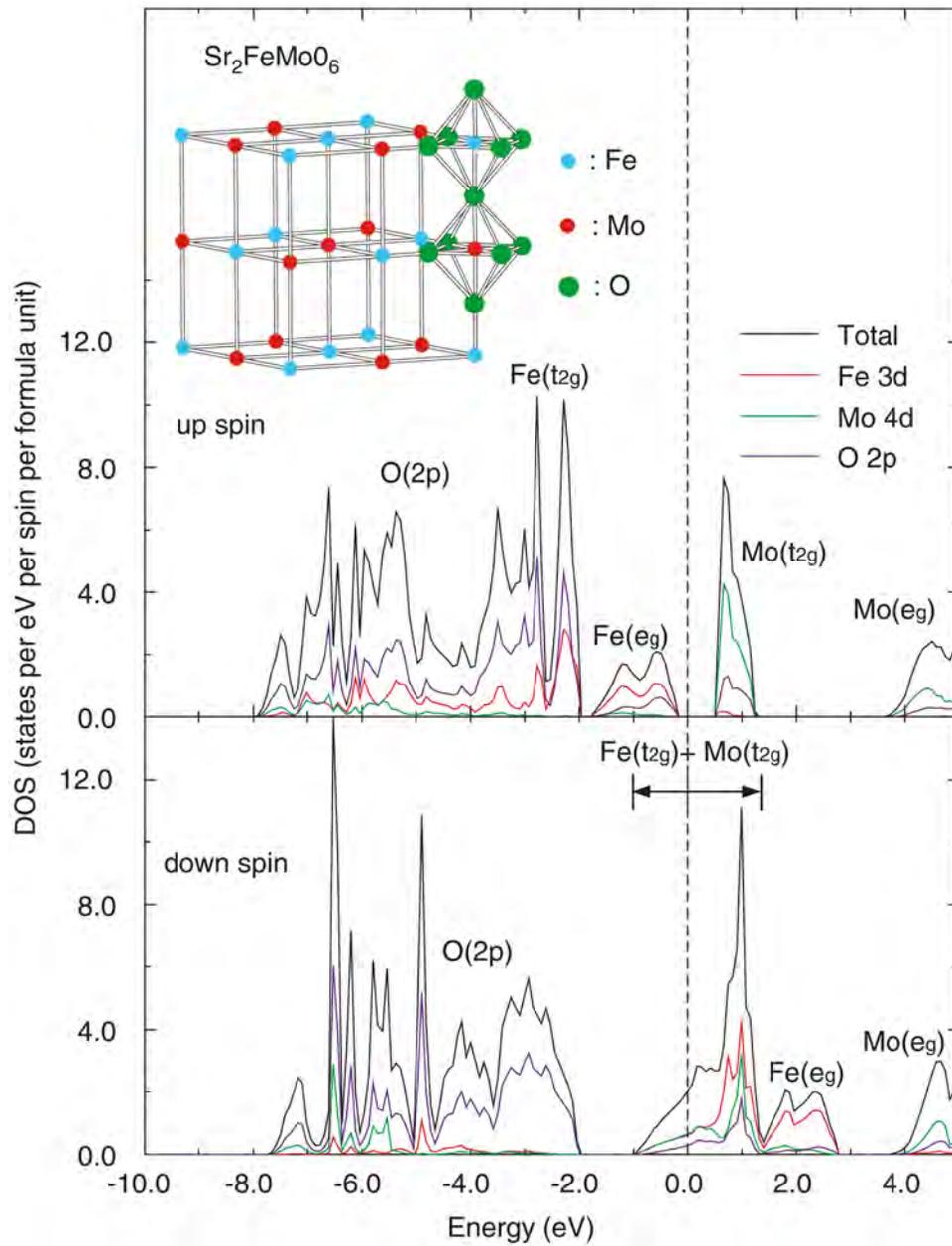


Figura 1.5: Densidad de estados de la doble perovskita $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ [38], donde se demuestra su carácter medio-metálico. Para el canal de espín *up* es aislante, mientras que para el canal de espín *down* es un conductor.

esta dado por

$$\hat{H} = \hat{H}^{\text{Fe}} + \hat{H}^{\text{Mo}} . \quad (1.4)$$

Las contribuciones por cada sitio (Fe y Mo), escritas en la representación de segunda cuantización, son [62]

$$\hat{H}^{\text{Fe}} = \varepsilon_{\text{Fe}} \sum_{i(\text{Fe}),\sigma} a_{i,\sigma}^\dagger a_{i,\sigma} + \sum_{\substack{\langle i,j \rangle, \sigma \\ i \neq j}} t_{ij} a_{i,\sigma}^\dagger b_{j,\sigma} + (U^{\text{Fe}} - J^{\text{Fe}}) \sum_{\substack{i,\nu,\nu',\sigma \\ (\nu \neq \nu')}} n_{i\nu\sigma} n_{i\nu'\sigma} , \quad (1.5)$$

y

$$\begin{aligned} \hat{H}^{\text{Mo}} = & \varepsilon_{\text{Mo}} \sum_{j(\text{Mo}),\sigma} b_{j,\sigma}^\dagger b_{j,\sigma} + \sum_{\substack{\langle i,j \rangle, \sigma \\ i \neq j}} t_{ij} b_{j,\sigma}^\dagger a_{i,\sigma} + (U^{\text{Mo}} + 2J^{\text{Mo}}) \sum_{j,\nu} n_{j\nu\uparrow} n_{j\nu\downarrow} \\ & + U^{\text{Mo}} \sum_{\substack{j,\nu,\nu' \\ (\nu \neq \nu')}} n_{j\nu\uparrow} n_{j\nu'\downarrow} + (U^{\text{Mo}} - J^{\text{Mo}}) \sum_{\substack{j,\nu,\nu',\sigma \\ (\nu \neq \nu')}} n_{j\nu\sigma} n_{j\nu'\sigma} . \end{aligned} \quad (1.6)$$

donde ε_{Fe} y ε_{Mo} son las energías de los sitios de Fe(i) y Mo(j), $t_{i,j}$ es el *hopping* entre los sitios que son primeros vecinos $\langle i, j \rangle$, $a^\dagger(a)$ y $b^\dagger(b)$ son los operadores de creación (aniquilación) para fermiones, respectivamente, $n = c^\dagger c$ es el operador de ocupación, las etiquetas ν, ν' corresponden a los tres orbitales degenerados t_{2g} y σ representa el espín. El efecto de la correlación electrónica se introduce a través de los parámetros U^{Fe} , U^{Mo} y la interacción de intercambio mediante los parámetros J^{Fe} , J^{Mo} .

Utilizando la aproximación de campo medio (*mean-field approximation*) obtenemos los hamiltonianos efectivos correspondientes a la correlación electrónica

$$\hat{H}_c^{\text{Fe}} \approx \frac{2}{3} U_{eff}^{\text{Fe}} \sum_{j,\nu,\sigma} \langle n_{j,\sigma} \rangle n_{j,\nu,\sigma} - \frac{1}{3} U_{eff}^{\text{Fe}} \sum_{j,\sigma} \langle n_{j,\sigma} \rangle^2 , \quad (1.7)$$

y

$$\begin{aligned} \hat{H}_c^{\text{Mo}} \approx & \left(U^{\text{Mo}} + \frac{2}{3} J^{\text{Mo}} \right) \left[\sum_{j,\nu,\sigma} \langle n_{j,-\sigma} \rangle n_{j,\nu,\sigma} - \sum_j \langle n_{j,\uparrow} \rangle \langle n_{j,\downarrow} \rangle \right] \\ & + U_{eff}^{\text{Mo}} \left[\frac{2}{3} \sum_{j,\nu,\sigma} \langle n_{j,\sigma} \rangle n_{j,\nu,\sigma} - \frac{1}{3} \sum_{j,\sigma} \langle n_{j,\sigma} \rangle^2 \right] , \end{aligned} \quad (1.8)$$

donde $U_{eff}^{\text{Mo}} = U^{\text{Mo}} - J^{\text{Mo}}$ junto con $U_{eff}^{\text{Fe}} = U^{\text{Fe}} - J^{\text{Fe}}$ son las energías efectivas y $\langle n_{\downarrow}^{\text{Fe}} \rangle$ y $\langle n_{\sigma}^{\text{Mo}} \rangle$ determinan el promedio del número de ocupación por cada sitio. Aquí hemos utilizado la relación $\langle n_{i,\nu,\sigma} \rangle = \langle n_{i,\sigma} \rangle / 3$ debido a la degeneración de los orbitales t_{2g} .

Utilizando las funciones de onda de Wannier podemos calcular las energías renormalizadas de cada sitio

$$\begin{aligned} \tilde{\varepsilon}_{\text{Fe}} &= \langle \mathbf{R}_i \downarrow | \hat{H}_{\text{TB}}^{\text{Fe}} + \hat{H}_{\text{c}}^{\text{Fe}} | \mathbf{R}_i \downarrow \rangle \\ &= \varepsilon_{\text{Fe}} + \frac{2}{3} U_{eff}^{\text{Fe}} \langle n_{\downarrow}^{\text{Fe}} \rangle , \end{aligned} \quad (1.9)$$

y

$$\begin{aligned} \tilde{\varepsilon}_{\text{Mo},\sigma} &= \langle \mathbf{R}_j \sigma | \hat{H}_{\text{TB}}^{\text{Mo}} + \hat{H}_{\text{c}}^{\text{Mo}} | \mathbf{R}_j \sigma \rangle \\ &= \varepsilon_{\text{Mo}} + \left(U^{\text{Mo}} + \frac{2}{3} J^{\text{Mo}} \right) \langle n_{-\sigma}^{\text{Mo}} \rangle + \frac{2}{3} U_{eff}^{\text{Mo}} \langle n_{\sigma}^{\text{Mo}} \rangle . \end{aligned} \quad (1.10)$$

La energía de transferencia de carga efectiva Δ , cuando se considera el efecto de la correlación electrónica, se define de la siguiente manera

$$\begin{aligned} \Delta &\equiv \tilde{\varepsilon}_{\text{Mo},\downarrow} - \tilde{\varepsilon}_{\text{Fe}} \\ &= \Delta_0 + \frac{2}{3} U_{eff}^{\text{Mo}} \langle n_{\downarrow}^{\text{Mo}} \rangle^0 - \frac{2}{3} U_{eff}^{\text{Fe}} \langle n_{\downarrow}^{\text{Fe}} \rangle^0 , \end{aligned} \quad (1.11)$$

donde

$$\Delta_0 \equiv \varepsilon_{\text{Mo}} - \varepsilon_{\text{Fe}} , \quad (1.12)$$

es la transferencia de carga entre los sitios en ausencia de la correlación. Note que solo hemos escogido los electrones con espín *down* ya que el sistema SFMO es conductor en este canal.

La densidad de estados del sistema que modela el compuesto SFMO puede ser obtenida empleando la teoría de las funciones de Green. En la figura 1.6, se muestran las funciones requeridas para el transporte (*hopping*) de los electrones itinerantes a través de la red cubica de iones Fe–Mo. En un estado ferromagnético, los sitios de $\text{Fe}(3d^5)$ se encuentran alineados con espín total localizado ($S = \frac{5}{2}$) por las reglas de Hund. Entonces, de acuerdo con el principio de exclusión de Pauli, solo será posible el *hopping* de los electrones

itinerantes con espín contrario ($s = -\frac{1}{2}$) y así poder colocarse sobre los orbitales d del Fe. Por lo que las funciones de Green para este proceso de transporte se representan por $G_{\downarrow+}^{\text{Fe}}$ y $G_{\uparrow-}^{\text{Fe}}$ (ver Fig. 1.6a)). Los electrones itinerantes con ambos tipos de espín (up y $down$) pueden realizar el *hopping* y así colocarse sobre los orbitales d del Mo. Por lo que las funciones de Green para este proceso de transporte son G_{\uparrow}^{Mo} y $G_{\downarrow}^{\text{Mo}}$.

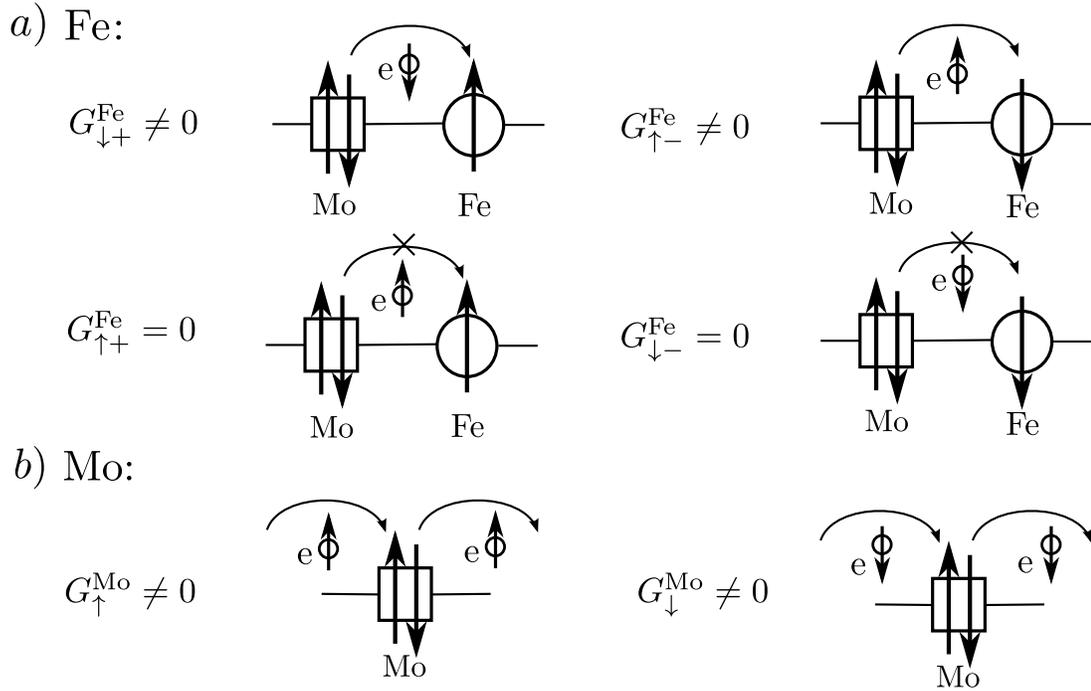


Figura 1.6: Descripción de las funciones de Green para una configuración electrónica $\text{Mo}^{6+}-\text{Fe}^{3+}$, donde se muestra el *hopping* de los portadores con espín up y $down$ sobre los sitios de Fe y Mo.

Para determinar las funciones de Green se utiliza la expansión de perturbaciones re-normalizada (RPE) [66,67] y se aplica al hamiltoniano que modela el compuesto SFMO. Aquí, hemos considerando una red de Bethe en el limite infinito del numero de coordinación ($Z \rightarrow \infty$), de modo que Zt^2 tiende a $W^2/4$, donde $2W$ es el ancho de la banda. Por lo tanto, las funciones de Green respectivas al proceso de *hopping* de los electrones

itinerantes con espín *down* sobre los sitios de Fe y Mo están dadas por

$$G_{\downarrow+}^{\text{Fe}} = \frac{1}{\omega - \tilde{\varepsilon}_{\text{Fe}} - \frac{W^2}{4} G_{\downarrow}^{\text{Mo}}} , \quad (1.13)$$

$$G_{\downarrow}^{\text{Mo}} = \frac{1}{\omega - \tilde{\varepsilon}_{\text{Mo}} - \frac{W^2}{4} G_{\downarrow+}^{\text{Fe}} \nu_+} , \quad (1.14)$$

mientras que para el *hopping* de los electrones itinerates con espín *up* son

$$G_{\uparrow-}^{\text{Fe}} = \frac{1}{\omega - \tilde{\varepsilon}_{\text{Fe}} - \frac{W^2}{4} G_{\uparrow}^{\text{Mo}}} , \quad (1.15)$$

$$G_{\uparrow}^{\text{Mo}} = \frac{1}{\omega - \tilde{\varepsilon}_{\text{Mo}} - \frac{W^2}{4} G_{\uparrow-}^{\text{Fe}} \nu_-} , \quad (1.16)$$

donde la variable $\omega = E + is$, E es la energía del sistema, el parámetro $\nu_{\pm} = (1 \pm m)/2$ da la probabilidad de encontrar un ion de Fe con espín localizado *up*(+) o *down*(-) y $m \in [-1, 1]$ es la magnetización del sistema.

Finalmente la DOS, de acuerdo con la teoría de las funciones de Green dentro del marco de la física del estado sólido [66,67], se obtiene de la siguiente ecuación

$$\rho(E, m) = \mp \frac{1}{\pi} \text{Im} \left\{ \lim_{s \rightarrow 0^+} G(E \pm is, m) \right\} . \quad (1.17)$$

La temperatura de Curie (T_C) es una característica muy importante de los materiales ferromagnéticos. La T_C es la temperatura donde sucede la transición del estado ferromagnético al estado paramagnético, ya que si la temperatura se eleva lo suficiente ($T > T_C$), la fluctuaciones térmicas romperán la magnetización del sistema.

Para calcular la T_C partimos de la energía de Helmholtz (F), la cual es función tanto de la temperatura (T) como de la magnetización (m) y esta dada por la siguiente ecuación

$$F = F(T, m) = E_{\text{Kin}}(m) - TS(m) . \quad (1.18)$$

La energía cinética de los electrones de conducción se calcula mediante la expresión

$$E_{\text{Kin}}(m) = 3 \int_{-\infty}^{E_{\text{F}}} \varepsilon \rho(\varepsilon, m) d\varepsilon \quad , \quad (1.19)$$

donde $\rho(E, m) = \sum_{\sigma} [\rho_{\sigma}^{\text{Fe}}(E, m) + \rho_{\sigma}^{\text{Fe}}(E, m)]$ es la densidad de estados total y la energía de Fermi (ε_{F}) se determina de forma autoconsistente con el llenado de la banda $n = 3 \int_{-\infty}^{\varepsilon_{\text{F}}} \rho(\varepsilon, m) d\varepsilon$.

La entropía se obtiene de la física estadística a partir de la función de partición para un sistema que considera N iones con dos posibles estados de espín *up* (\uparrow) o *down* (\downarrow), y por lo tanto se tiene

$$S(m) = [\ln(2) - \nu_{+} \ln(2\nu_{+}) - \nu_{-} \ln(2\nu_{-})] \quad . \quad (1.20)$$

Aquí, S es adimensional y depende del factor $k_{\text{B}}N$, donde k_{B} es la constante de Boltzmann.

Finalmente, cuando el sistema alcanza la temperatura de Curie, la entropía alcanza su valor máximo implicando que la energía F se encuentra en su valor mínimo. Dado que el límite $T \rightarrow T_{\text{C}}$ es equivalente a tener el límite $m \rightarrow 0$, entonces el valor mínimo de F puede ser calculado de la siguiente manera

$$\begin{aligned} 0 &= \left. \frac{\partial^2 F}{\partial m^2} \right|_{m=0} = \left[\left. \frac{\partial^2 U}{\partial m^2} - T \frac{\partial^2 S}{\partial m^2} \right] \right|_{m=0} \\ &= \left. \frac{\partial^2 E_{\text{Kin}}}{\partial m^2} \right|_{m=0} + T_{\text{C}} \quad , \end{aligned} \quad (1.21)$$

despejando T_{C} obtenemos que

$$T_{\text{C}} = - \left. \frac{\partial^2 E_{\text{Kin}}}{\partial m^2} \right|_{m=0} \quad . \quad (1.22)$$

1.3. Resultados y discusión

En este capítulo presentamos los resultados que hemos obtenido al estudiar las propiedades electrónicas y termodinámicas de la doble perovskita $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$. En particular, hemos calculado la densidad de estados y la temperatura de Curie (T_C) para el caso del sistema completamente ordenado $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$, donde M es un metal de transición, y también para el caso del compuesto no estequiométrico dopado con Lantano $\text{Sr}_{2-y}\text{La}_y\text{FeMoO}_6$, donde y es la concentración. En este sistema hemos incluido el efecto de la correlación electrónica y la interacción de intercambio a través del modelo de Hubbard considerando los siguientes parámetros para las energías efectivas $U_{\text{eff}}^{\text{Fe}} = 3W$, $U_{\text{eff}}^{\text{Mo}} = W$ y $J^{\text{Mo}} = \frac{W}{6}$, donde $2W$ es el ancho de la banda. Estos valores fueron obtenidos de cálculos de primeros principios (*ab initio*).

Los números de ocupación de los electrones con espín σ sobre los sitios de hierro y molibdeno en términos de la concentración de electrones itinerantes o llenado de la banda (n) están dados por

$$\langle n_{\beta,\downarrow}^{\text{Mo}} \rangle = \langle n_{\alpha,\downarrow}^{\text{Fe}} \rangle = \frac{n}{2} . \quad (1.23)$$

Para el caso particular con $\Delta = 0$, es decir, que la diferencia entre los sitios de energía $\tilde{\varepsilon}_{\text{Mo}}$ y $\tilde{\varepsilon}_{\text{Fe}}$ sea cero, tendremos que

$$\Delta_0 = \varepsilon_{\text{Mo}} - \varepsilon_{\text{Fe}} = \frac{2}{3}nW , \quad (1.24)$$

lo cual corresponde a la transferencia de carga sin tomar en cuenta el efecto de la correlación electrónica.

Con el fin de estudiar las propiedades electrónicas de los materiales es fundamental conocer como es la estructura de bandas, o bien, la densidad de estados (DOS). En la figura 1.8 se muestra la DOS del compuesto ordenado $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ ($n = 1$) en función de la energía para los canales de conducción *up* (línea punteada) y *down* (línea solida). Este análisis se realizó para el sistema en un estado paramagnético ($m = 0$) y variando el valor de la energía de transferencia de carga (Δ_0). En este estado, ambas bandas de espín son idénticas con la misma densidad de estados permitidos implicando que la conducción

contiene los dos tipos de electrones (*up* y *down*) indistintamente. Ahora bien, el perfil A de la figura 1.8 correspondiente al caso $\Delta_0 = 2n/3$, muestra que al incluir el efecto de la correlación electrónica, ocurre una traslación (*shifting*) de las bandas a niveles de energía mas elevados, al tomar como referencia el caso del sistema donde no se considera la correlación [68]. Observamos que las bandas se trasladan (*shift*) gradualmente a energías superiores conforme se va incrementado el valor de Δ_0 , tal como sucede con los perfiles B, C, y D de la DOS, y que el *gap* crece ligeramente.

El objetivo mas importante de nuestro estudio es comprender a profundidad el comportamiento medio-metálico del sistema Sr_2FeMO_6 , donde M es un metal de transición. Para ello, en la figura 1.9, se analiza el perfil de la DOS considerando diferentes grados de magnetización (m). La DOS se calcula como función de la energía para ambos canales de espín (*up* y *down*) tomando en cuenta la correlación electrónica y dos valores del llenado de banda ($n = 1$ y $n = 2.85$), adicionalmente hemos indicado el nivel de Fermi (ε_F). En el estado completamente ferromagnético ($m = 1$), observamos que el sistema exhibe su carácter medio-metálico siendo conductor para el canal de espín *down* y con la banda parcialmente llena, mientras que para el canal de espín *up* la banda carece de estados permitidos, por lo que el sistema se comporta como un aislante. Aquí es importante notar que la banda tiene una forma semielíptica de ancho $2W$ y centrada en la energía $4n$. Ahora bien, al disminuir la magnetización, el sistema va perdiendo paulatinamente el carácter medio-metálico y la banda de espín *up* comienza a generar estados permitidos, los cuales son ocupados rápidamente por los electrones itinerantes. Cuando el sistema alcanza el estado paramagnético ($m = 0$), ambas bandas de espín se equilibran y contienen la misma densidad de estados permitidos. En este estado hemos obtenido un resultado esperado, esto es, dos bandas idénticas (banda de conducción y banda valencia) separadas por un *gap*. Adicionalmente, en este análisis hemos realizado un contraste de la DOS entre el caso del sistema con Molibdeno ($n = 1$) completamente ordenado y el caso donde el sistema alcanza el máximo de la Temperatura de Curie, el cual corresponde al llenado de la banda $n = 2.85$ (ver Figura 1.10). En ambos casos de n hay un corrimiento (*shifting*) de las bandas, el cual, como ya hemos mencionado, es causado por la renormalización de

los niveles de energía que se da por considerar el efecto de la correlación electrónica. Sin embargo, encontramos que para $n = 2.85$ las bandas experimentan un mayor corrimiento que para $n = 1$, tomando como referencia el resultado sin correlación [68]. Otro aspecto importante a destacar es el comportamiento del sistema de acuerdo con la posición del nivel de Fermi. Para el caso de $n = 1$, a medida que m decrece, el sistema nunca deja de ser conductor, mientras que para el caso de $n = 2.85$, el sistema experimenta una transición del estado conductor a un estado semiconductor, ya que el nivel de Fermi se sitúa en la frontera entre la banda de valencia y el *gap*.

La propiedad más relevante en materiales ferromagnéticos para aplicaciones electrónicas es la temperatura de Curie. Sabemos bien que las fluctuaciones térmicas destruyen el estado ferromagnético, y como consecuencia, se pierde el carácter medio-metálico de la doble perovskita SFMO. Por tal motivo, es crucial que el material posea una alta T_C de modo que pueda mantener una fuerte magnetización a temperaturas elevadas, especialmente a 300 °K. En la figura 1.10, se calcula la T_C/W en función del llenado de banda, donde hemos realizado diferentes estudios del sistema variando el valor de la transferencia de carga (Δ_0). En esta figura se muestra claramente que podemos elevar sustancialmente la T_C si se incrementa el valor de n . Esto es porque si el sistema dispone de un número mayor de electrones libres por celda unitaria, entonces el efecto de la correlación y la interacción de intercambio se intensifican, fortaleciendo el estado ferromagnético. Otro resultado importante que obtuvimos es que para todos los valores de Δ en la figura 1.10 el máximo valor de la T_C se alcanza cuando $n = 2.85$ aproximadamente. Sin embargo, si se sigue incrementando el número de electrones libres por encima de este valor, la T_C sufre una caída muy drástica a causa de la inestabilidad del sistema. Por otro lado, es de suma importancia resaltar que el estudio que obtuvo los valores más altos de la T_C corresponde al sistema con $\Delta_0 = 2nW/3$, o bien, cuando $\Delta = 0$. La razón física de esto es que si Δ_0 aumenta, los electrones itinerantes requieren de una mayor energía para saltar y transferirse (*hopping*) entre los sitios de Fe y Mo, limitando en gran medida la interacción con los electrones localizados en los orbitales *d* del Fe, lo cual debilita el estado ferromagnético y como consecuencia la T_C disminuye su valor. La finalidad de este análisis fue generalizar

los resultados para una familia de compuestos ordenados tipo doble perovskita $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$, donde se considera un cierto metal de transición (M) como Mo, Re o W [69–72], o bien remplazando el ion de Fe por algún otro metal de transición con cualidades ferromagnéticas. Así es como el sistema adquiere diversos valores para Δ_0 y n . Pero, debemos tener en cuenta que al introducir otros elementos en el compuesto con seguridad tendremos que ajustar el valor de los parámetros efectivos tanto de la correlación electrónica como de la interacción de intercambio (U_{eff} y J).

Adicionalmente, hemos estudiado el sistema no estequiométrico $\text{Sr}_{2-y}\text{La}_y\text{FeMoO}_6$ dopado con Lantano (La), donde y representa la concentración La-Sr. En este proceso de dopaje, los átomos de lantano trivalente (La^{3+}) que se añaden al sistema sustituyen los átomos divalentes de estroncio (Sr^{2+}) ubicados en los centros de la red cubica Fe-Mo como se observa en la figura 1.7. Además, al dopar el sistema SFMO con La se aportan electrones libres con espín *down* directamente al átomo de Mo (ver figura 1.7) a una tasa que depende de la concentración como $n = 1 + y$, lo cual, como ya hemos mencionado, contribuye a la correlación electrónica afectando fuertemente las propiedades ferromagnéticas del sistema.

En la figura 1.11, se calcula la DOS en función de la energía para distintos estados de magnetización. Aquí hemos mantenido $\Delta_0 = 2W/3$ y solo variamos n en función de y . En esta figura mostramos la DOS para las composiciones $y = 0,5$ y $y = 1$, donde también se indica el nivel de Fermi representado por la línea vertical punteada. Para el caso ferromagnético ($m = 1$), a diferencia del caso sin dopaje $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ ($y = 0$), aparece un *gap* de energía en la mitad de la banda. Sin embargo, el compuesto dopado sigue siendo conductor para un solo canal de espín, conservando el carácter medio-metálico, ya que el nivel de Fermi cae dentro de la banda de valencia. Ahora bien, a medida que la magnetización disminuye, la banda de estados para el espín *down* se reduce mientras que para el espín *up* la banda se incrementa generando estados permitidos. Luego, cuando se alcanza el estado paramagnético ($m = 0$) la propiedad medio-metálica desaparece y las bandas de espín se equilibran en densidad de estados permitidos. Además, podemos notar que, sin importar cuanto baje la magnetización, el *gap* permanece y solo se ensancha

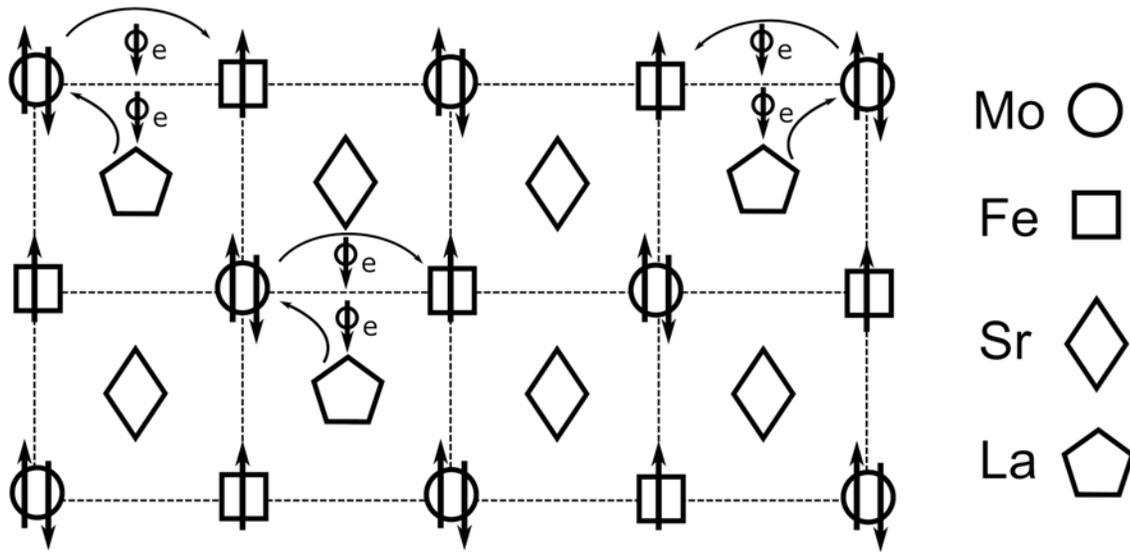


Figura 1.7: Esquema del dopaje con átomos de lantano (La), los cuales sustituyen los átomos de estroncio (Sr). Un átomo de La provee un electrón itinerante extra directamente al ion de molibdeno (Mo). El electrón itinerante posee espín contrario al espín localizado en el átomo de hierro (Fe) para poder realizar el *hopping*.

ligeramente. En la figura 1.12, se calcula la temperatura de Curie T_C/W para el sistema dopado $\text{Sr}_{2-y}\text{La}_y\text{FeMoO}_6$ en función de la composición y ($0 \leq y \leq 1$). En este resultado se muestra un notable incremento de la T_C conforme se introducen más electrones libres a una tasa $n = 1 + y$ mediante el dopaje. Nuevamente, la justificación es que con un número mayor de electrones itinerantes la correlación se intensifica, fortaleciendo la interacción de intercambio, y entonces la magnetización. En la gráfica también observamos que para valores mayores de Δ_0 la energía de *hopping* es más alta, lo cual debilita la correlación y afecta la T_C . Es importante mencionar que el aumento de la T_C debido al dopaje con La en el intervalo de concentración $0 \leq y \leq 1$ es corroborado cualitativamente con estudios experimentales [73], donde se ha reportado que para el caso de $\Delta_0 = 2w/3$, correspondiente al compuesto $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ ($y = 0$), la tasa de crecimiento de la T_C es muy inferior en comparación con nuestros resultados. Es importante mencionar que en los experimentos se tiene evidencia de que al dopar con La se produce desorden estructural y de sitios [73]. El desorden estructural tiene que ver con una deformación de la red cristalina

causado por la diferencia de tamaños entre los átomos de Sr y La. El desorden de sitios es producido por la migración de iones de Fe a sitios de Mo y viceversa, el cual es un proceso que tiene lugar por el balanceo de la carga al introducir La en las celdas. Los iones contiguos de Fe se acoplan en alineación antiferromagnética (antisitios), contrarrestando la magnetización y reduciendo notablemente la temperatura de Curie. En nuestro modelo, no se ha tomado en cuenta el desorden, por lo que solo hemos considerado un cierto dopaje limitándonos dentro del intervalo de la composición $0 \leq y \leq 1$, donde el desorden aun no es lo suficientemente fuerte para afectar en demasía la temperatura de Curie. Es evidente que, al no considerar los efectos del desorden, la T_C crecería indefinidamente, algo que, como ya hemos explicado, no sucede en los experimentos. Para obtener mejores resultados, mucho mas apegados con la realidad experimental, debemos incluir el desorden en nuestra aproximación. Sin embargo, estudios del sistema SFMO controlando un cierto grado de desorden ya se ha llevado a cabo [50,62,63]. Aunque, se desconoce como el desorden varía en función del dopaje con La en este tipo de compuestos.

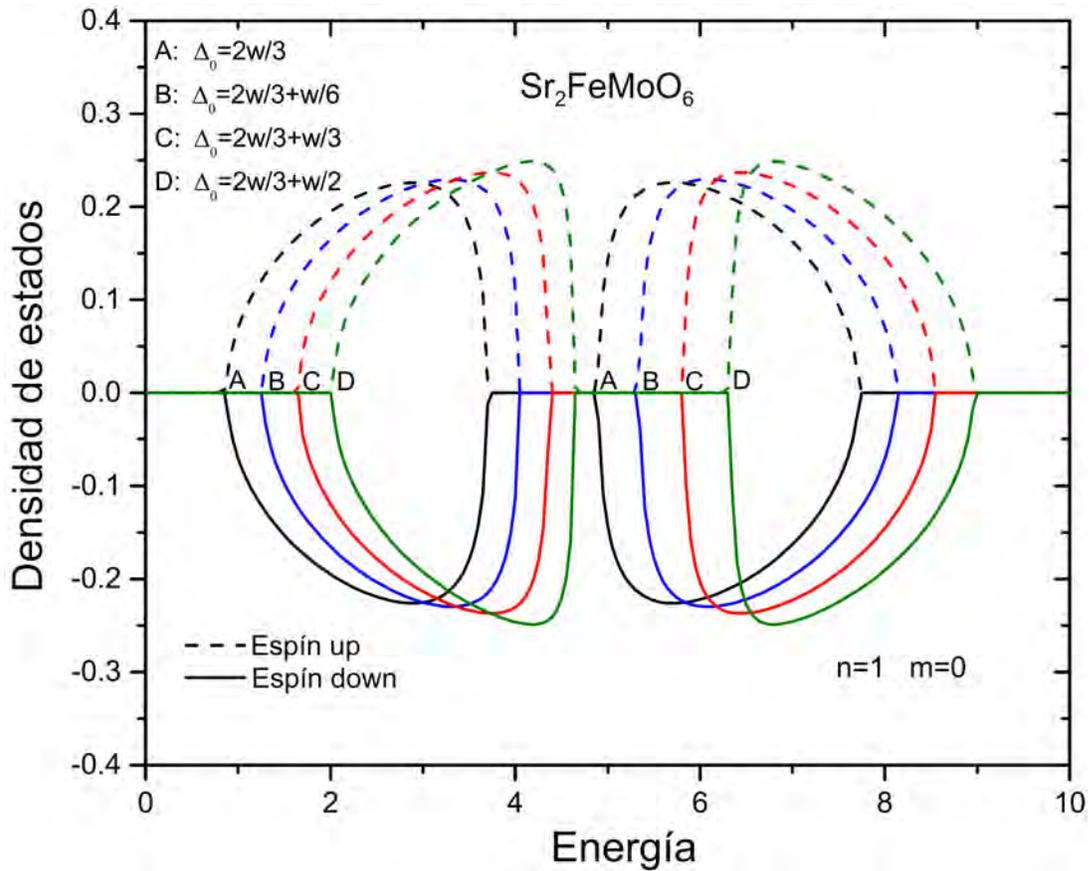


Figura 1.8: Densidad de estados (DOS) para el sistema $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ en función de la energía para los canales de espín *up* y *down*. Además, se muestra el perfil de la DOS para diferentes valores de la transferencia de carga (Δ_0). El sistema se encuentra en el estado paramagnético ($m = 0$) y solo considera un electrón itinerante por celda unitaria ($n = 1$).

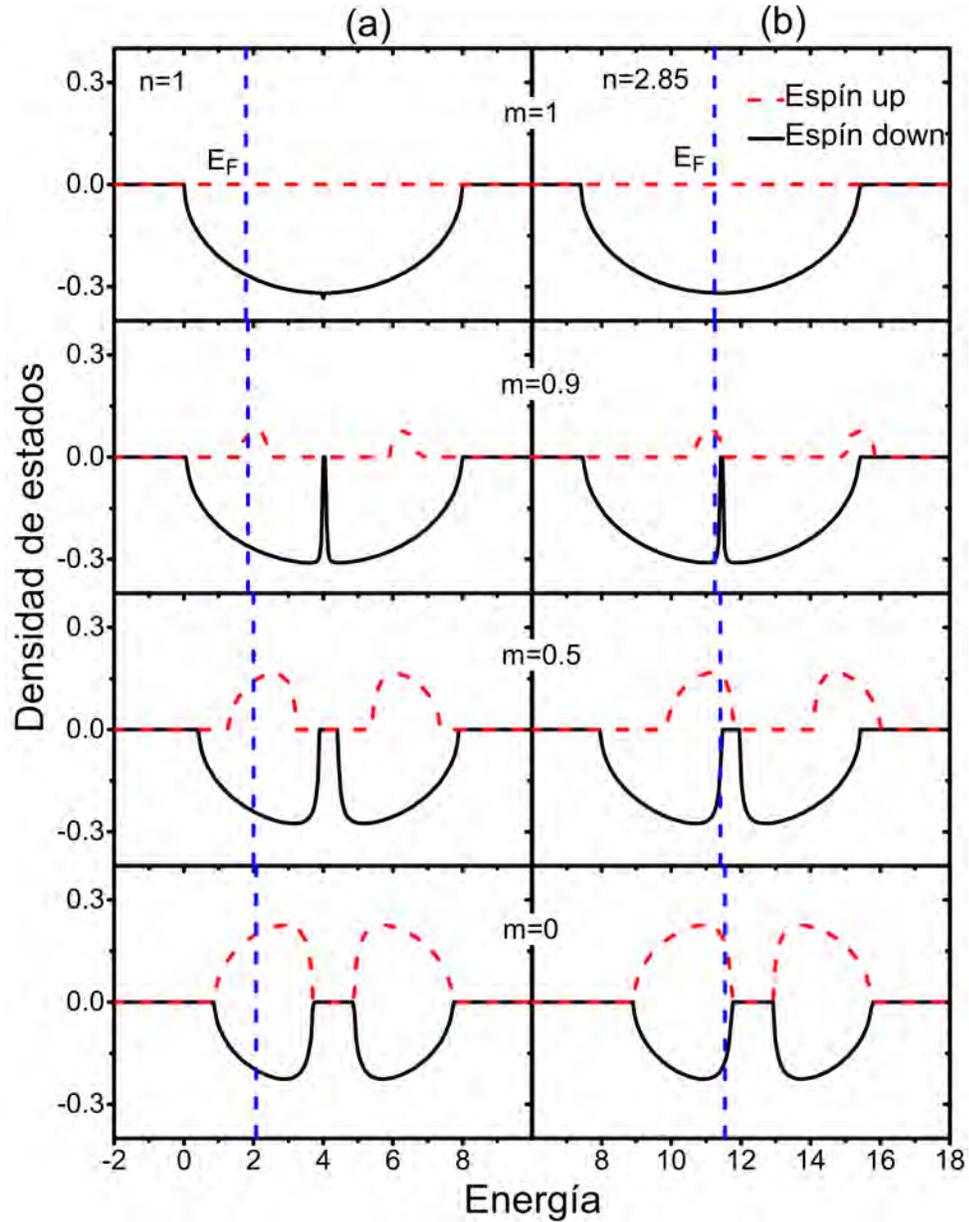


Figura 1.9: Evolución de la densidad de estados (DOS) del sistema Sr_2FeMO_6 en función de la energía y variado la magnetización (m). Además, se muestra el perfil de la DOS de ambos canales de espín (*up* y *down*) para el caso de $n = 1$ (a) correspondiente al compuesto con $M=\text{Mo}$ y para el caso de $n = 2.85$ (b) correspondiente al sistema donde se obtiene el máximo valor de la T_C . La línea vertical punteada indica el nivel de Fermi

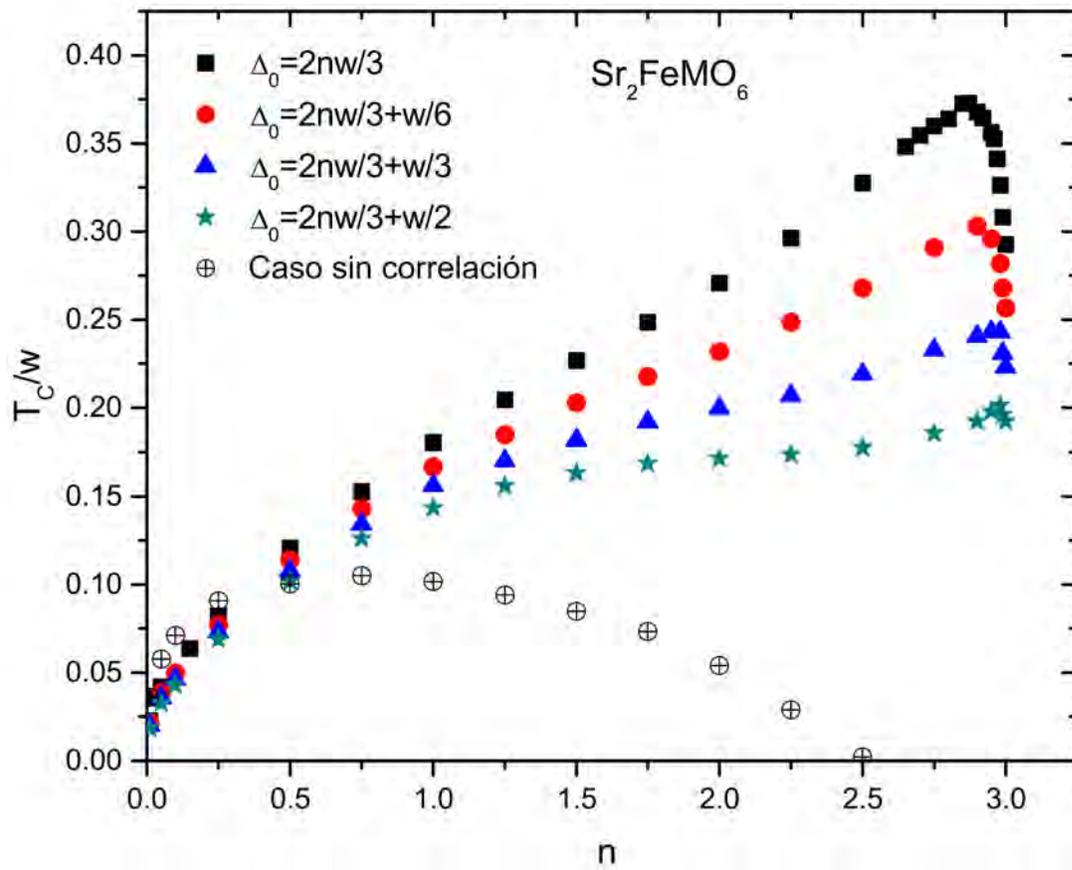


Figura 1.10: Temperatura de Curie (T_C) del sistema $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ en función de la energía y del llenado de la banda (n). M es un metal de transición. Aquí se muestra el cálculo de la T_C para diferentes valores de la transferencia de carga (Δ_0). El máximo valor de la T_C se obtiene para $n = 2.85$ aproximadamente.

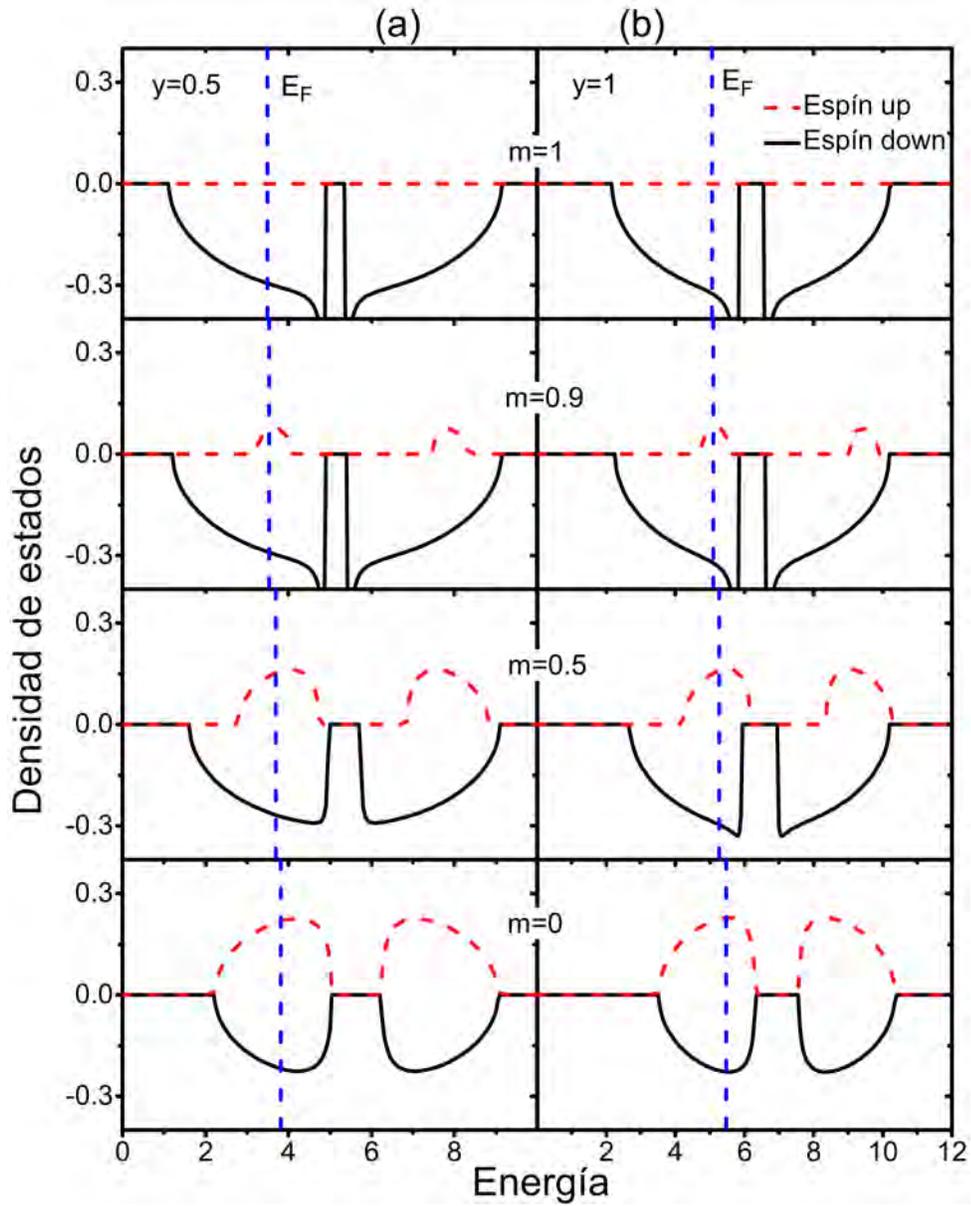


Figura 1.11: Evolución de la densidad de estados del sistema dopado $\text{La}_{2-y}\text{Sr}_y\text{FeMoO}_6$ en función de la energía y variando la magnetización (m). Además, se muestra el perfil de la DOS de ambos canales de espín (*up* y *down*) considerando el dopaje para dos concentraciones de La-Sr: a) $y = 0.5$ y b) $y = 1.0$. La línea vertical punteada indica el nivel de Fermi.

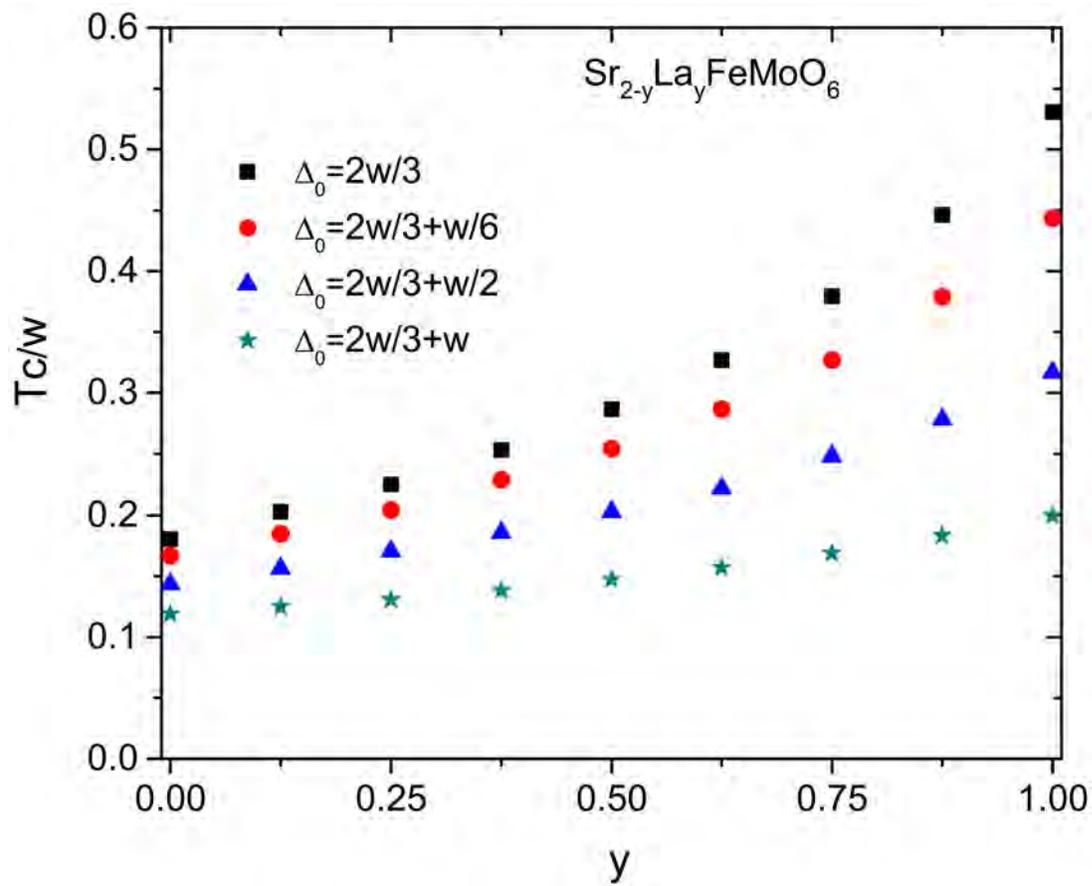


Figura 1.12: Temperatura de Curie del sistema dopado $\text{La}_{2-y}\text{Sr}_y\text{FeMoO}_6$ en función del dopaje para diferentes valores de la energía de transferencia de carga (Δ_0).

1.4. Conclusiones

- En este trabajo destacamos que nuestro cálculo de la densidad de estados demuestra el carácter medio-metálico de la doble perovkita $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ (SFMO), el cual depende directamente del grado de magnetización. En el estado ferromagnético, el compuesto es conductor para uno de los canales de espín (*down*), mientras que es aislante para el otro canal (*up*). Con la disminución de la magnetización la propiedad medio-metálica se va perdiendo, hasta que en el estado paramagnético, la conducción de los electrones es completamente indistinta del canal de espín.
- Además, hemos encontrado que la correlación electrónica, la energía de transferencia de carga y el llenado de la banda juegan un rol importante en el valor de la temperatura de Curie del sistema $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$. En efecto, al considerar la correlación electrónica logramos un aumento de la temperatura de Curie, en comparación con el caso sin correlación. También, con el incremento del llenado de banda, es decir, al introducir un número mayor de electrones libres al sistema, obtuvimos un aumento considerable de la temperatura de Curie, alcanzando un máximo para $n = 2.85$. Sin embargo, encontramos que al aumentar la energía de transferencia de carga, la temperatura de Curie disminuye.
- Finalmente, hemos demostrado teóricamente que en el compuesto $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ aumenta en gran medida la temperatura de Curie a través del dopaje con átomos de Lantano con el sistema $\text{Sr}_{2-y}\text{La}_y\text{FeMoO}_6$, lo cual está cualitativamente de acuerdo con resultados experimentales.

2. Efecto termoeléctrico en superredes construidas a base de Siliceno

Actualmente, los sólidos de baja dimension son considerados los materiales con mayor potencial para las aplicaciones en espintrónica. La investigación en grafeno, y recientemente en siliceno, han descubierto que estos materiales poseen excepcionales propiedades electrónicas, las cuales pueden ser aprovechadas para fabricar novedosos y avanzados dispositivos nanoelectrónicos con mayores capacidades de procesamiento, almacenamiento y rendimiento energético. En este capítulo, estudiamos de manera teórica las propiedades de transporte y el efecto termoeléctrico de un dispositivo construido a base de siliceno. En la primer sección detallamos la estructura y describimos las propiedades electrónicas del siliceno. En la segunda sección explicamos en que consiste el dispositivo termoeléctrico y presentamos el marco teórico. Aquí introducimos el hamiltoniano efectivo de Dirac que incluye la interacción del acoplamiento espín-órbita (SOC) para el siliceno y abordamos la teoría termoeléctrica que requerimos para nuestro estudio. Finalmente, discutimos los resultados que hemos obtenido.

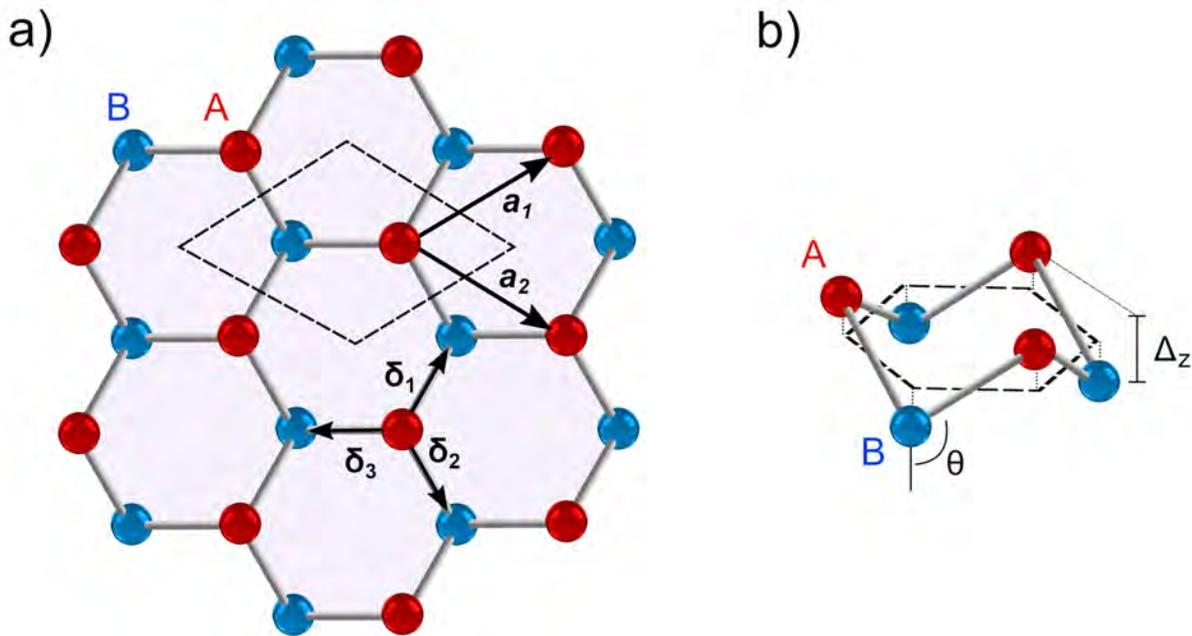


Figura 2.1: a) Estructura hexagonal del siliceno formada por átomos de silicio distribuidos en dos subredes triangulares A y B, donde se bosquejan la celda unitaria (línea punteada), los vectores primitivos (\mathbf{a}) y los vectores de los átomos que son primeros vecinos (δ). b) Geometría corrugada del siliceno, donde se indica la separación vertical (Δ_z) entre las subredes.

2.1. Siliceno

El siliceno es un material bidimensional formado por átomos de silicio (Si) distribuidos en una red hexagonal corrugada (*low-buckled*) como se muestra en la figura 2.1. En 1994, justo una década antes de la síntesis de grafeno [74], se dio la primera investigación teórica sobre la posible existencia de otros materiales análogos al grafeno. Takeda y Shiraishi [75] propusieron que al utilizar átomos de silicio (Si) y germanio (Ge), elementos de la familia IV del carbono (C), se podrían formar estructuras (*lattices*) hexagonales similares a las capas de grafito o a las fases aromáticas como el benceno (C_6H_6), concibiendo por primera vez el siliceno y el germaneno. En su investigación, usando cálculos de primeros principios (*ab initio*) basados en la teoría funcional de la densidad local (DFT), descubrieron que la geometría corrugada de la estructura de siliceno es energéticamente más estable que la geometría plana, contrariamente como sucede en el caso de grafeno. Además, en este

estudio se encontró que la constante de red es 3.855 Å y que la longitud de enlace (Si-Si) es 2.247 Å, cualidades que también difieren a las medidas en grafeno (2.4612 Å y 1.42 Å respectivamente [76]) debido a la diferencia de tamaño entre los átomos de Si y C. Años más tarde, en 2009, Cahangirov y sus colaboradores [77], mediante cálculos *ab initio* basados en DFT, determinaron los modos de vibración y la dispersión de fonones y confirmaron que la única estructura estable del siliceno es aquella que presenta una geometría de baja corrugación (*low-buckled*). Esta estructura es una red de átomos de Si distribuidos en dos subredes triangulares A y B desplazadas verticalmente una de la otra una distancia de 0.44 Å [77], y con ángulo de deformación de 101.7° [78] (ver figura 2.1 b). Además, la constante de red y la longitud Si-Si se ajustaron a los valores 3.83 Å y 2.25 Å, respectivamente, teniendo una variación mínima a los reportados previamente [75]. En siliceno, debido a la corrugación, los enlaces químicos entre los átomos de Si se forman por la combinación de los orbitales $3s$, $3p_x$, $3p_y$ y $3p_z$ en una hibridación intermedia (*mixed*) $sp^2 - sp^3$, en contraste con grafeno donde los fuertes enlaces σ son producto de la hibridación sp^2 . La celda unitaria consta de dos átomos, uno por cada subred triangular (A y B), como lo muestra la figura 2.1 a).

En la mayoría de las investigaciones de las propiedades electrónicas del siliceno, la estructura de bandas se ha obtenido mediante cálculos de primeros principios (*ab initio* basados en DFT) logrando resultados muy precisos [75, 77]. Sin embargo, también se han empleado métodos clásicos como el modelo de *tight-binding* [79, 80] y la aproximación $k \cdot p$ [81], los cuales ofrecen una visión física fundamental del transporte y la estructura electrónica del siliceno. En 2007, Guzman-Verry y Lew Yan Voon [79], quienes acuñaron el nombre de "siliceno", presentaron un estudio muy completo de la estructura de bandas usando el modelo de *tight-binding*. En estos estudios se compararon las estructuras de bandas de las diferentes geometrías de siliceno: plana y con un cierto grado de corrugación. Los resultados revelaron que la corrugación no tiene ninguna influencia en las propiedades electrónicas del siliceno. En efecto, ambos tipos de geometría (plana y corrugada) presentan un perfil de la estructura de bandas muy similar al obtenido en grafeno [82], es decir, la relación de dispersión es lineal con el vector de onda (k) en la región más próxima al

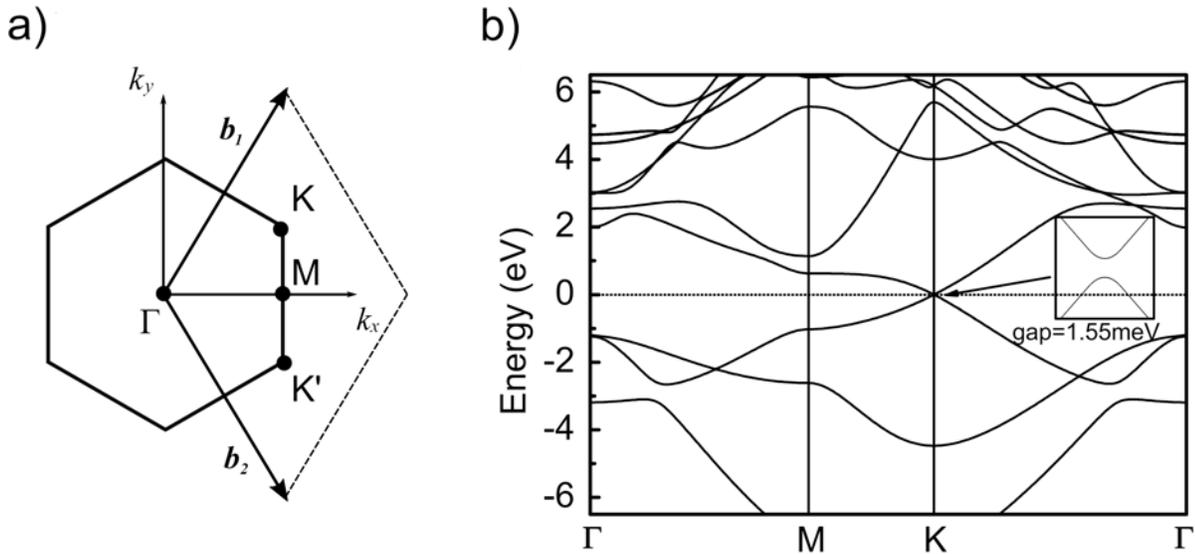


Figura 2.2: Propiedades electrónicas del siliceno. a) Primera zona de Brillouin, donde se muestran los vectores primitivos y los puntos de alta simetría. b) Estructura de bandas electrónica del siliceno con geometría de baja corrugación [78], donde se hace un zoom en las proximidades del nivel de Fermi en el punto K , el cual revela la apertura de un *gap* como consecuencia del acoplamiento espín-órbita.

nivel de Fermi (E_F). Por lo que las bandas π y π^* se cruzan en este nivel sin la apertura de un *gap* formando los llamados conos de Dirac en los puntos K y K' de la primera zona de Brillouin. Entonces, de acuerdo con la teoría de Dirac, en las proximidades de la energía E_F , se espera que los portadores se comporten como cuasipartículas relativistas sin masa efectiva moviéndose con una alta velocidad ($\sim 10^6$) [77]. Sin embargo, en estos trabajos no se consideró la interacción de acoplamiento espín-órbita (SOC) ni el efecto que tiene en la estructura de bandas. Es importante señalar que la intensidad del SOC en los materiales bidimensionales depende en gran medida del grado de corrugación. De hecho, en siliceno se ha medido un valor de la interacción SOC de aproximadamente 3.9 meV [80], mientras que en germaneno, en el cual se presenta una corrugación aún mayor (0.64 Å [77]), alcanza un valor de ~ 24 meV [83], a diferencia de grafeno que exhibe una interacción muy débil (< 0.05 meV) y simplemente se desprecia. El efecto del SOC se manifiesta en la estructura de bandas de siliceno a través de la apertura de un *gap* de energía de considerable magnitud (1.55 meV [78]) en los puntos K y K' , separando las

bandas de valencia y conducción (ver figura 2.2). Los conos ahora son conocidos como valles (*valleys*) porque la dispersión no es completamente lineal. Además, los portadores más próximos al nivel de Fermi en siliceno se mueven a una velocidad de 0.53×10^6 m/s [80], lo cual equivale a la mitad de la velocidad medida en grafeno. Esta diferencia es producto de un reducido proceso de *hopping* de los portadores en siliceno, ya que en la estructura corrugada el espacio interatómico entre sitios S–Si es mucho más amplio que entre sitios C–C. Esto restringe en gran medida el traslape de los orbitales p_z debilitando los enlaces π que sirven de medio para el transporte electrónico.

En general las cualidades mostradas por el siliceno se pueden aprovechar para potenciales aplicaciones en el área de la espintrónica. El ancho del *gap* puede ser modificado aplicando un campo eléctrico externo en la dirección normal a la superficie del siliceno [84], ya que se induce una diferencia de potencial (*gate*) entre las subredes A y B debido a la corrugación. Esta cualidad es ideal para fabricar transistores de efecto de campo (FETs) [85]. Además, es importante resaltar que entre mas intenso sea el SOC en siliceno mayor será la posibilidad de apreciar experimentalmente fenómenos cuánticos especiales para la manipulación de valle y el espín (*valley-spintronics*) como el efecto Hall cuántico de espín (QSHE) [78].

El hamiltoniano de baja energía en las proximidades del nivel de Fermi, puede ser derivado del modelo de *tight-binding* dentro del formalismo de Slater-Koster [86]. Para incluir el efecto del acoplamiento espín-órbita en siliceno se requiere de la teoría de Dirac, de modo que el hamiltoniano efectivo estará dado por [80]

$$\hat{H} = \hbar v_F (p_x \tau_x - \eta p_y \tau_y) - (\sigma \eta \Gamma_{\text{SO}} - \Delta_z) \tau_z \quad , \quad (2.1)$$

donde v_F es la velocidad de Fermi de los portadores, $\mathbf{p} = (p_x, p_y, 0)$ es el momento canónico, $\boldsymbol{\tau} = (\tau_x, \tau_y, \tau_z)$ representa las matrices de Pauli de pseudoespín, $\sigma = \pm 1$ da el espín (\uparrow, \downarrow), $\eta = \pm 1$ denota el valle (K, K'), Γ_{SO} es el término que corresponde al acoplamiento espín-órbita, y Δ_z es la diferencia de potencial entre los sitios A y B de la celda unitaria. Para siliceno se tienen las cantidades $v_F = 0.53 \times 10^6$ m/s y $\Gamma_{\text{SO}} = 3.9$ meV.

Al igual que en grafeno, la transferencia de calor en siliceno es un proceso realizado

principalmente por las vibraciones de la red, es decir, por el transporte de fonones. Muchos estudios teóricos se han llevado a cabo para determinar el valor de la conductividad térmica (κ) de siliceno, los cuales en su mayoría emplearon dos técnicas de simulación numérica: dinámica molecular clásica (MD) [87] y cálculos de primeros principios [88]. Los valores de κ reportados en estos estudios se encuentran en el rango de 5-65 W/mK, la cual es una conductividad mucho más baja en comparación con la medida en grafeno (3000-5000 W/mK) [89], considerado el mejor conductor térmico. La enorme diferencia de la conductividad entre estos dos materiales tan parecidos es que en grafeno los fonones flexurales, es decir, los modos de vibración acústicos fuera del plano (*out-plane*) contribuyen en más del 50 % en la conducción de calor [90], mientras que en siliceno son responsables en menos del 10 % [91], ya que la conducción es dominada en su mayoría (90 %) por los modos de vibración en el plano (*in-plane*). En efecto, la estructura corrugada de siliceno rompe con la simetría de reflexión vibracional lo que causa una intensa dispersión de los modos *out-plane* y por tanto impide el transporte efectivo de fonones. Adicionalmente, se ha encontrado que agentes externos pueden modificar en gran medida el valor de κ de grafeno y de siliceno, por ejemplo, dependiendo del sustrato donde sean depositados [92–95], o bien, aplicando un campo eléctrico externo [96]. La reducción de la conductividad térmica es una cualidad que se busca en el área de la termoelectricidad.

Desde la síntesis del grafeno aislado (*freestanding*) en 2007, se inicio una carrera para sintetizar materiales bidimensionales con la misma estructura hexagonal, pero ahora empleando otros elementos tales como silicio (Si), germanio (Ge), estaño (Sn) y también recientemente Hafnio (Hf), Boro (B) y fosforo (P). Nos referimos a los materiales conocidos como siliceno, germaneno [80,97], estaneno (tineno) [98], fosforeno [99,100], 2D-boro [101] y 2D-hafnio [102], respectivamente, los cuales han recibido bastante atención en los últimos años. Actualmente, no se ha logrado sintetizar siliceno de forma aislada, debido principalmente a la fragilidad de su estructura aunado a la susceptibilidad del silicio a combinarse con otros elementos y formar nuevos compuestos. Sin embargo, en 2012, mediante crecimiento epitaxial se logró depositar por primera vez siliceno en sustratos de plata Ag (111) [103] y en plantillas de diboruro de circonio (ZrB_2) [104]. Aunque en

años anteriores, ya se habían podido obtener estructuras parciales como nano-cintas de siliceno (SiNRs) [105–107]. Posteriormente, otros trabajos experimentales rindieron su fruto logrando depositar y crecer con éxito siliceno en diversas superficies metálicas tales como plata Ag(110) y Ag(111) [108–111], iridio Ir(111) [112], disulfuro de molibdeno MoS₂ [113] y muy recientemente en oro Au(110) [114]. Sin embargo, muchos estudios experimentales han demostrado que las propiedades electrónicas propias del siliceno se pierden debido a la alta influencia de las propiedades electrónicas del sustrato metálico, resultando en un comportamiento muy distinto al predicho teóricamente [103, 108, 115]. Hoy en día, la investigación se centra en encontrar un sustrato que puede mantener estable la geometría del siliceno y que además sea un material no metálico o aislante de modo que pueda preservar y resaltar las propiedades intrínsecas del siliceno.

2.2. Termoelectricidad

Las nuevas investigaciones sobre el efecto termoléctrico podrían ofrecer una solución para reducir significativamente la cantidad de calor emitido por la sociedad moderna. Recientes estudios indican que el calor liberado al medio ambiente representa mas de un 50% de la energía producida a nivel mundial [116], lo cual es evidencia del bajo rendimiento de las maquinas y los dispositivos electrónicos actuales. De acuerdo con el fenómeno conocido como el efecto Seebeck es posible recuperar energía a partir de una fuente de calor [117, 118]. El efecto Seebeck consiste en que a partir de un gradiente de temperatura entre dos contactos se genera una deferenca de potencial y por lo tanto producir un flujo de corriente eléctrica. La eficiencia de convertir calor en energía eléctrica es medido por la cantidad unidimensional conocida como Figura de Merito, la cual esta directamente relacionada con las conductividades térmica y eléctrica del material mediante la ecuación $ZT = \sigma S^2 \bar{T} / \kappa$ [119], donde S es el coeficiente de Seebeck y \bar{T} es la temperatura absoluta promedio entre las dos fuentes de calor. La estrategia para aumentar el valor de ZT es reducir la conductividad térmica tanto como sea posible al mismo tiempo que se incrementa el factor de potencia σS^2 . En materiales de bulto convencionales, este

condicionamiento es muy difícil de lograr, ya que S , σ y κ están interrelacionados de acuerdo con la ley de Wiedemann-Franz [120]. Sin embargo, a partir de los trabajos de Hicks y Dresselhaus [121], la investigación de la termoelectricidad se enfocó en materiales nanoestructurados y en sólidos de baja dimensión, con la hipótesis de que altos valores de ZT podrían ser alcanzados [122,123]. El fundamento de esto es que con la reducción de la dimensional y con el confinamiento cuántico, se induce una redistribución de la densidad de estados, lo cual concede la oportunidad de variar las conductividades eléctrica y térmica de manera independiente y así poder aumentar el valor de ZT . Actualmente, el objetivo es superar el límite tecnológico $ZT = 3$ [124], para considerar la posibilidad de construir dispositivos termoeléctricos de mayor eficiencia que compitan industrialmente con los dispositivos de generación y refrigeración usuales.

2.3. Modelo teórico del dispositivo termoeléctrico.

El sistema que vamos a estudiar trata de una superred periódica de potenciales electrostáticos aplicada a una capa de siliceno GSSL (*Gated Silicene Superlattice*). La estructura GSSL es un dispositivo termoeléctrico construido usando una capa de siliceno envuelta en un sustrato dieléctrico, sobre el cual se acopla una serie de electrodos, como se ilustra en la figura 2.3. Mediante los electrodos se aplica un campo electrostático externo cuyo perfil es una superred periódica de barreras rectangulares dispuesta en la dirección x . El potencial de las barreras es U_B y tienen un ancho d_B mientras que los pozos tienen potencial cero ($U_W = 0$) y ancho d_w . Además, la capa de siliceno es conectada por un extremo a un contacto caliente y por el otro a un contacto frío. Entonces, de acuerdo con el efecto Seebeck, el gradiente de temperatura crea una diferencia del potencial químico entre los contactos, lo cual genera una corriente eléctrica a través del dispositivo. Por supuesto, la intensidad de la corriente dependerá de ZT .

El hamiltoniano de Dirac de baja energía (Ec. 2.1) que describe el transporte de los

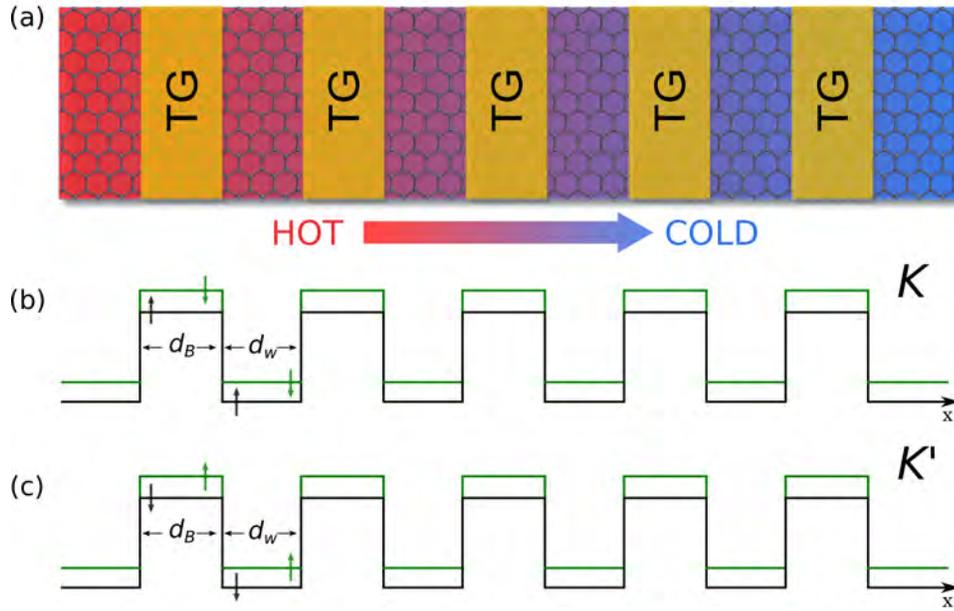


Figura 2.3: a) Representación esquemática de la superred aplicada sobre una capa de Siliceno (GSSL), donde la flecha horizontal indica el gradiente de temperatura. Además se muestran los perfiles del potencial electrostático para los valles b) K y c) K' , donde las líneas verde y negra corresponden a las componentes de espín up y $down$.

portadores a través del dispositivo GSSL está dado por

$$\hat{H} = \hbar v_F (p_x \tau_x - \eta p_y \tau_y) - (\sigma \eta \Gamma_{SO} - \Delta_z) \tau_z + U(\mathbf{r}) \hat{I} \quad , \quad (2.2)$$

donde U representa el potencial electrostático de la superred y el operador \hat{I} es la matriz unidad 2×2 .

La eigenfunción (ψ) a este hamiltoniano se describe en términos de las ondas incidente y reflejada en cada región barrera-pozo ($j = B, W$) de la siguiente forma

$$\psi_j = \left[A_j \begin{pmatrix} 1 \\ \nu_j^+ \end{pmatrix} e^{ik_{x,j}x} + B_j \begin{pmatrix} 1 \\ \nu_j^- \end{pmatrix} e^{ik_{x,j}x} \right] e^{ik_y y} \quad , \quad (2.3)$$

donde el factor ν_j^\pm se define como

$$\nu_j^\pm \equiv - \frac{(E - U_j) - (\sigma \eta \Gamma_{SO} - \Delta_z)}{\pm k_{x,j} + i\eta(k_y + A_j)} \quad . \quad (2.4)$$

Las componentes del vector de onda están dadas por

$$k_{x,j} = \sqrt{(E - U_j)^2 - (\eta\sigma\Gamma_{\text{SO}} - \Delta_z)^2 - (k_y - A_j)^2} \quad (2.5)$$

y

$$k_y = \sqrt{E^2 - (\eta\sigma\Gamma_{\text{SO}} - \Delta_z)^2} \sin(\theta) \quad , \quad (2.6)$$

donde θ es el angulo de incidencia de los portadores.

Con el fin de estudiar las propiedades del transporte balístico utilizamos el método de la matriz de transferencia [125]. La matriz de transferencia M_{T} relaciona las amplitudes de la onda incidente y la onda transmitida de las regiones semi-infinitas, como se indica a continuación

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} A_{in} \\ B_{in} \end{pmatrix} &= M_{\text{T}} \begin{pmatrix} A_{out} \\ 0 \end{pmatrix} \\ &= D_0^{-1} \left(\prod_j D_j P_j D_j^{-1} \right) D_0 \begin{pmatrix} A_{out} \\ 0 \end{pmatrix} \quad , \end{aligned} \quad (2.7)$$

donde

$$D_j = \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ \nu_j^+ & \nu_j^- \end{pmatrix} \quad (2.8)$$

y

$$D_j = \begin{pmatrix} e^{-ik_{x,j}d_j} & 0 \\ 0 & e^{ik_{x,j}d_j} \end{pmatrix} \quad , \quad (2.9)$$

son las matrices dinámica y de propagación, respectivamente. Luego, a partir de M_{T} se calcula la probabilidad de transmisión para cada canal de portadores (σ, η) .

$$\mathbb{T}_{\sigma,\eta}^{(\text{P}, \text{AP})}(E_{\text{F}}, k_y) = \frac{|A_{out}|^2}{|A_{in}|^2} = \frac{1}{|M_{\text{T}(1,1)}|^2} \quad . \quad (2.10)$$

Por otro lado, la estructura de bandas de energía se obtiene a partir de la relación de dispersión del modelo de Kronig-Penney dada por

$$\begin{aligned} \cos(q_{\text{SL}}d_{\text{SL}}) &= \frac{1}{2} \text{Tr} [D_{\text{B}} P_{\text{B}} D_{\text{B}}^{-1} D_{\text{W}} P_{\text{W}} D_{\text{W}}^{-1}] \\ &= \cos(k_{x,\text{B}}d_{\text{B}}) \cos(k_{x,\text{W}}d_{\text{W}}) - \Xi \sin(k_{x,\text{B}}d_{\text{B}}) \sin(k_{x,\text{W}}d_{\text{W}}) \quad , \end{aligned} \quad (2.11)$$

donde

$$\Xi \equiv \frac{E(E - U_B) - (\sigma\eta\Gamma_{\text{SO}} - \Delta_{z,\text{B}})(\sigma\eta\Gamma_{\text{SO}} - \Delta_{z,\text{W}}) - k_y^2}{k_{x,\text{B}}k_{x,\text{W}}} , \quad (2.12)$$

$d_{\text{SL}} = d_{\text{B}} + d_{\text{W}}$ es la longitud de la celda unitaria y q_{SL} es el vector de onda de Bloch característico de una superred periódica infinita.

A partir de la estructura de bandas podemos derivar la densidad de estados del sistema mediante la ecuación

$$\text{DOS}_{\sigma,\eta}(E, \theta) = \frac{1}{2\pi} \left| \frac{d}{dE} q_{\text{SL}}(E, \theta) \right| . \quad (2.13)$$

Sumando sobre todos los ángulos obtenemos la densidad de estados por valle y espín $\text{DOS}_{\sigma,\eta}(E)$, y considerando la contribución de todos los portadores (σ, η) obtenemos la densidad de estados global $\text{DOS}(E)$.

La conductancia se puede calcular a partir de la transmisión utilizando la formula obtenida del formalismo de Landauer-Büttiker [126]

$$\begin{aligned} \mathbb{G}_{\sigma,\eta}(E_{\text{F}}) &= \frac{e^2}{h} \sum_{k_y} \mathbb{T}_{\sigma,\eta}(E_{\text{F}}, k_y) \\ &= G_0 k_{\text{F}}^* \int_{-\pi/2}^{\pi/2} \mathbb{T}_{\sigma,\eta}(E_{\text{F}}, k_{\text{F}} \sin(\theta)) d\theta , \end{aligned} \quad (2.14)$$

donde $G_0 = e^2 L_y E_0 / h^2 v_{\text{F}}$ es el parámetro que indica las unidades de medida de la conductancia, L_y es el ancho transversal de la hoja de siliceno cuyo valor es usualmente de 200-500 nm, y $k_{\text{F}}^* = \sqrt{E^2 - (\eta\sigma\Gamma_{\text{SO}} - \Delta_z)^2}$ es la magnitud del vector de onda de Fermi sin dimensiones ($k_{\text{F}} = k_{\text{F}}^* E_0 / \hbar v_{\text{F}}$). La conductancia global es la suma del transporte de los cuatro canales de conducción, es decir,

$$\mathbb{G}(E_{\text{F}}) = \sum_{\sigma,\eta} \mathbb{G}_{\sigma,\eta}(E_{\text{F}}) . \quad (2.15)$$

La propiedad termoelectrica de un material se mide mediante el coeficiente de Seebeck, definido como la razón del voltage generado dividido por la diferencia de temperatura entre dos contactos hechos de mismo material. El coeficiente de Seebeck en la aproximación de respuesta lineal se escribe como

$$S = -\frac{\Delta V}{\Delta T} = \frac{G_S}{G} , \quad (2.16)$$

donde

$$G \equiv \int_{-\infty}^{\infty} \mathbb{G}(E) \left(-\frac{\partial f}{\partial E} \right) dE \quad (2.17)$$

y

$$G_s \equiv \int_{-\infty}^{\infty} \mathbb{G}(E) \left(-\frac{\partial f}{\partial E} \right) \left(\frac{E - \mu}{e\bar{T}} \right) dE . \quad (2.18)$$

\bar{T} es la temperatura promedio en equilibrio, μ es el potencial químico y f es la función de distribución de Fermi-Dirac. Aquí, hemos considerado que $\partial f / \partial E$ es una función tipo delta de Dirac centrada en el nivel de Fermi (E_F). Aplicando, la llamada expansión de Sommerfeld podemos desarrollar G_E en serie de Taylor alrededor de E_F . Manteniendo los términos dominantes y calculando las integrales correspondientes, podemos obtener las siguientes expresiones

$$G = \mathbb{G}(E_F) \quad (2.19)$$

y

$$G_s = \frac{\pi^2 k_B^2 \bar{T}}{3e} \left. \frac{\partial \mathbb{G}}{\partial E} \right|_{E=E_F} \quad (2.20)$$

Sustituyendo estas expresiones en la ecuación (2.17), obtenemos la bien conocida fórmula de Cutler-Mott [127]

$$S = \frac{\pi^2 k_B \bar{T}}{3e} \left. \frac{\partial \ln \mathbb{G}}{\partial E} \right|_{E=E_F} \quad (2.21)$$

Finalmente, el factor de potencia es una cantidad que está directamente ligada con la eficiencia del dispositivo termoeléctrico para convertir calor en energía eléctrica. El factor de potencia está dado como el producto del cuadrado del coeficiente de Seebeck por la conductancia, es decir, $S^2 \mathbb{G}$.

2.4. Resultados y discusión

En este trabajo hemos realizado un estudio sistemático de las propiedades del transporte balístico y el efecto termoeléctrico de una superred periódica de N potenciales electrostáticos aplicada sobre una capa de siliceno GSSL. En primer lugar, analizamos las propiedades de transporte balístico a través del cálculo de la transmisión y la conductancia. Posteriormente, investigamos el efecto termoeléctrico mediante el cálculo del coeficiente de Seebeck y el factor de potencia termoeléctrica. Aprovechamos las características intrínsecas del siliceno: el *gap* de energía y el acoplamiento espín-órbita, con el fin de discriminar el transporte de los portadores dependiendo del canal de espín y valle (σ, η) . Adicionalmente, en este estudio obtuvimos la densidad de estados del sistema, la cual nos ayuda a entender el origen físico de la conexión entre el transporte y el efecto termoeléctrico.

El dispositivo GSSL que estudiamos está formado por 10 barreras de potencial $U_B = 5$ y ancho $d_B = 0.5$, separadas por pozos de potencial $U_W = 0$ cuyo ancho es d_W . La diferencia de potencial de sitio fue elegida tal que $\Delta_z = \Gamma_{SO} = 0.56$ en toda la estructura, para tener como referencia $k_F^* = E_F$ del canal $up - K$ ($\sigma = 1, \eta = 1$). Aquí, es importante mencionar que los parámetros de longitud y de energía los hemos manejado en unidades adimensionales, teniendo presente que se definen en términos de los valores típicos $L_0 = 81.1 \text{ nm}$ y $E_0 = 7 \text{ meV}$ [128]. Estas cantidades son apropiadas si queremos incorporar barreras magnéticas al sistema, tal como hicimos en otro de nuestros trabajos [129]. Es necesario que el transporte electrónico sea de naturaleza balística, es decir, que la característica del transporte sea una manifestación pura de la interferencia cuántica coherente [130]. Las condiciones para lograr este régimen de transporte es que el camino de libre medio de los portadores sea más grande que la longitud del dispositivo. En materiales bidimensionales, como el grafeno, se ha reportado una longitud del camino libre medio de $15 \mu\text{m}$ a bajas temperaturas y una longitud de $1 \mu\text{m}$ a temperatura ambiente [131]. Por lo que en este estudio, la longitud del dispositivo GSSL es de aproximadamente $1.2 \mu\text{m}$. Hemos elegido que la temperatura promedio entre los contactos (\bar{T}) sea de 50 °K para asegurar la validez

de la formula de Cutler-Mott en materiales bidimensionales [132].

En la figura 2.4, mostramos un mapa de color de la probabilidad de transmisi3n en funci3n de la energa y del 3ngulo de incidencia de la superred (GSSL) de 10 barreras y ambos canales $up - K$ y $down - K$. La transmisi3n posee una estructura de bandas, es decir, presenta un perfil formado por zonas de alta probabilidad de propagaci3n (color rojo) alternadas con zonas de baja propagaci3n. Aqu3, resaltamos las 3reas donde el efecto t3nel aparece ($\mathbb{T} = 1$), es decir, cuando la superred es completamente invisible para los portadores, y la propagaci3n esta prohibida ($\mathbb{T} = 0$) conocidos como *gaps*. El efecto t3nel es resultado de las resonancias de Fabry-P3rot que ocurren en el interior de los pozos, contrariamente a lo que sucede en los *gaps* donde la interferencia es destructiva. Ahora bien, la probabilidad de transmisi3n m3s alta se concentra alrededor del 3ngulo normal. De modo que, al aumentar el 3ngulo de incidencia de los portadores, la transmisi3n decrece considerablemente, y por consecuencia los *gaps* se incrementan. Adem3s, de acuerdo con la figura 2.4, tambi3n encontramos que la transmisi3n entre los canales $up - K$ y $down - K$ difiere claramente, lo cual es un aspecto importante en espintr3nica, ya que abre la posibilidad de polarizar la corriente de acuerdo con el esp3n y el valle de los portadores. Cerramos este primer an3lisis mencionando que los resultados de la transmisi3n que obtuvimos para los canales $up - K'$ y $down - K'$ son id3nticos a los resultados de los canales $down - K$ y $up - K$, respectivamente, por lo que no es necesario presentarlos expl3citamente. Esta similaridad viene de la equivalencia del vector de onda de la ecuaci3n (2.5).

En la figura 2.5, se muestra la probabilidad de transmisi3n en funci3n de la energa para diferentes 3ngulos de incidencia 15° , 30° , 45° y 60° del dispositivo GSSL y para ambos canales de conducci3n ($up - K$ y $down - K$). Notese que los resultados son secciones horizontales del mapa de transmisi3n de la figura 2.4 para cada 3ngulo seleccionado. Por lo que la transmisi3n tiene una estructura de minibandas ($\mathbb{T} > 0$) constituida por zonas prohibidas ($\mathbb{T} = 0$) y *gaps*. Adem3s, resaltamos que la estructura de minibandas se modifica significativamente con el incremento del 3ngulo de incidencia, haciendo las minibandas mas angostas y los *gaps* mas anchos, Esto da origen a un cambio cada vez

más pronunciado del transporte en los valores de la energía localizados justo en los bordes entre las zonas permitidas y prohibidas, lo cual, como se verá posteriormente, es un factor muy importante para el efecto termoeléctrico.

En la figura 2.6, se muestra la densidad de estados en función de la energía para los ángulos 15° , 30° , 45° y 60° del dispositivo termoeléctrico GSSL y para ambos canales de conducción ($up - K$ y $down - K$), lo cual corresponde con el resultado de la figura previa. Aquí, el eje vertical representa simplemente el número de estados, ya que el parámetro $\beta = \hbar v_F$ tiene unidades de energía por longitud. Es importante notar que las minimibandas se corresponden con las bandas de estados permitidos de la DOS, mientras que los *gaps* con los estados prohibidos. Adicionalmente, otro aspecto que resaltamos es que hay niveles de energía donde se da una alta acumulación de estados, los cuales se ubican justamente en las bordes de las minibandas y los *gaps* de transmisión, es decir, en las fronteras entre estados permitidos y prohibidos. Además, podemos notar que la acumulación se incrementa hasta cuatro veces conforme el ángulo de incidencia de los portadores va de 15° a 60° . También, en esta evolución, el ancho de las bandas de estados permitidos se reduce de manera significativa, análogamente como sucede con las minibandas de transmisión. Después veremos que al sumar sobre todos los ángulos, la DOS dará como resultado una alta acumulación de estados en energías preferentes. En estos niveles se presenta una mejora de las propiedades termoeléctricas.

Con la finalidad de comparar con los experimentos, en nuestro estudio incluimos el cálculo de la conductancia, la cual es una cantidad medible en el laboratorio. De hecho, la conductancia se relaciona directamente con la conductividad eléctrica y por lo tanto con la corriente de portadores que fluye a través del dispositivo. En la figura 2.7, se muestra la conductancia en función de la energía para el dispositivo GSSL compuesto de 10 barreras de potencial y considerando los dos canales $up - K$ y $down - K$. En esta figura, observamos que por debajo del nivel de energía $E = 9$, la conductancia tiene un comportamiento oscilante y está formada por zonas de alta conducción alternadas con zonas de baja conducción. En este intervalo de energía, la conductancia entre los canales difiere notablemente. Para el caso de $up - K$, las pequeñas oscilaciones localizadas en

las zonas de alta conducción son muy suaves, mientras que para el caso de $down - K$ las oscilaciones son más pronunciadas. Por otro lado, para niveles de energía elevados ($E > 9$) la superred deja de ser relevante y la transmisión tiende a 1. Además, de acuerdo con la ecuación (2.14), la conductancia es proporcional a la energía de Fermi y es la misma para ambos canales de conducción.

Ahora analizamos el efecto termoeléctrico de nuestro dispositivo GSSL. Se conoce bien que los cambios drásticos en el transporte mejoran las propiedades termoeléctricas, como ya se ha reportado en trabajos previos en superredes construidas a base de grafeno GGSLs [133]. En la figura 2.8, se muestra el coeficiente de Seebeck usando la formula de Cutler-Mott (Ec. (2.21)), donde sustituimos \mathbb{G} por $\mathbb{G}_{\sigma,\eta}$ para analizar cada canal de conducción de manera individual. Nuestros resultados muestran que los altos valores del coeficiente de Seebeck se localizan en los bordes entre las zonas de baja y alta conducción. El coeficiente de Seebeck para el canal $up - K$ alcanza valores de hasta 2 mV/K, mientras que el canal $down - K$ alcanza valores de 10 mV/K e inclusive logra un valor máximo de 25 mV/K para portadores con energía 2.4 aproximadamente. Aquí, es importante mencionar, que en dispositivos GGSL se reportaron valores máximos del coeficiente de Seebeck de 0.3 mV/KC [133], por lo que nuestros valores son un orden de magnitud más altos. La aparición de valores elevados en el coeficiente de Seebeck se asocia directamente con la redistribución de la densidad de estados debido a la reducción de la dimensionalidad. Por esa razón se emplean materiales como grafeno y siliceno. Por otro lado, la figura 2.9 muestra la DOS en función de la energía para los canales de conducción $up - K$ y $down - K$. En ambos casos de espín, la DOS tiene una tendencia creciente. Además, la DOS posee niveles de energía preponderantes, donde se presenta una alta acumulación de estados. Al contrastar con la figura 2.8, nos damos cuenta que la acumulación ocurre precisamente en los niveles de energía donde el coeficiente de Seebeck es máximo. Finalmente, la combinación de la conductancia y los valores elevados del coeficiente de Seebeck se reflejan en un sustancial incremento del factor de potencia termoeléctrico, como se muestra en la figura 2.10. El máximo valor del factor de potencia calculado para el canal $up - K$ es aproximadamente 0.35 nW/K², mientras que para el canal $down - K$ es alrededor de 3.5

nW/K^2 , y entonces diez veces más alto en comparación con el otro canal. Nuevamente, mencionamos que el factor de potencia obtenido en superredes construidas con grafeno GGSLS alcanza valores máximos de $5 \text{ pW}/K^2$ [133], es decir, 3 ordenes de magnitud por debajo de nuestros valores calculados. Cabe recordar que entre más alto el factor de potencia, más eficiente será el dispositivo termoeléctrico para transformar calor en energía eléctrica.

Adicionalmente, realizamos un estudio análogo al realizado previamente, pero ahora considerando el transporte global de los portadores. En la figura 2.11, se muestra el mapa de color de la probabilidad de transmisión en función de la energía y del ángulo de incidencia del dispositivo GSSL compuesto por 10 barreras de potencial $U_B = 5$ y ancho $d_B = 0.5$, las cuales se encuentran separadas por pozos ($U_W = 0$) con ancho $d_W = 1$. En este caso, la transmisión global esta dada como el promedio de los cuatro canales de espín, es decir, $\mathbb{T} = \frac{1}{4} \sum_{\sigma, \eta} \mathbb{T}_{\sigma, \eta}$. Sin embargo, los canales $up - K$ y $down - K$ tienen la misma probabilidad de transmisión que los canales $down - K'$ y $up - K'$, respectivamente, debido a la equivalencia del vector de onda. Por lo que la transmisión global resulta ser $\mathbb{T} = \frac{1}{2} (\mathbb{T}_{\uparrow, K} + \mathbb{T}_{\downarrow, K})$, la cual equilibra la transmisión de los canales individuales (ver figura 2.4), disminuyendo las zonas de alta probabilidad y aumentando las zonas de baja probabilidad. Sin embargo, las zonas de igual probabilidad de transmisión que se presentan en ambos canales conservan su valor, donde destacamos las zonas de efecto túnel ($\mathbb{T} = 1$) y los *gaps* ($\mathbb{T} = 0$). El aspecto más importante es que la transmisión global mantiene un perfil de estructura de bandas, donde la transmisión mas alta se concentra alrededor del ángulo normal (0°) y decrece conforme los portadores inciden con ángulos más amplios. En la figura 2.12, se muestra la transmisión global en función de la energía para diferentes ángulos de incidencia 15° , 30° , 45° y 60° . Notese que estos perfiles de minibandas son secciones transversales de la transmisión de la figura 2.11. Aquí, nuevamente enfatizamos que al aumentar el ángulo de incidencia, el ancho de las bandas se reduce y los *gaps* se incrementan. Además, para ángulos amplios, por ejemplo 60° , la transmisión es afectada fuertemente y su valor cae hasta 0.5. Por otro lado, en la figura 2.13, se muestra la densidad de estados global correspondiente a los ángulos seleccionados (15° , 30° , 45° y

60°). En esta figura, la DOS global integra los estados de los cuatro canales de conducción (σ, η). Entonces, las bandas de la DOS de los canales individuales se unen para formar nuevas bandas con un número mayor de estados permitidos, y ocupando regiones de energía más extensas. En cuanto a los *gaps* de la DOS global, están conformados por estados prohibidos que son comunes en todos los canales. Adicionalmente, la DOS global hereda los niveles de energía con alta acumulación de estados, los cuales sobresalen en los canales individuales.

Complementamos nuestro estudio con el cálculo de la conductancia global, la cual contabiliza el flujo total de portadores que inciden en todas las direcciones y considerando los cuatro canales de espín y de valle. Matemáticamente, la conductancia global es $\mathbb{G} = 2(\mathbb{G}_{\uparrow, K} + \mathbb{G}_{\downarrow, K})$, donde el factor 2 es debido a la equivalencia entre los canales $up - K$ ($down - K'$) y $down - K$ ($up - K'$). En la figura 2.14, se muestra la conductancia global en función de la energía del dispositivo GSSL. En el rango de baja energía ($E < 9$) notamos que la curva de conductancia contiene zonas de alta conducción alternadas con zonas de baja conducción. En las zonas de alta conducción podemos apreciar oscilaciones muy pronunciadas, las cuales, como hemos visto anteriormente, son relevantes para las propiedades termoelectricas del dispositivo. En cambio, para altos niveles de energía ($E > 9$), \mathbb{T} tiende a 1, implicando que la conductancia aumente linealmente con k_F (Ec. 2.14). A partir de \mathbb{G} , derivamos las propiedades termoelectricas usando la formula de Cutler-Mott dada por la ecuación (2.21). La figura 2.15, presenta el cálculo del coeficiente de Seebeck en función de la energía de Fermi. En esta figura, confirmamos que los cambios abruptos de la conductancia de los portadores se reflejan en valores elevados del coeficiente de Seebeck, y cuyos máximos se encuentran localizados en las fronteras de las zonas de alta y baja conducción. El máximo valor que obtuvimos es 4 mV/K², un valor mas alto que el máximo obtenido para el canal $up - K$ (2 mV/K²), pero menor que el máximo obtenido para el canal $down - K$ (35 mV/K²). Por otro lado, la figura 2.16, presenta la DOS global en función de la energía. Aquí, el producto de la DOS por el factor $\beta = \hbar v_F$ contabiliza el número total de estados. La DOS global integra las bandas de estados permitidos de los cuatro canales de conducción (σ, η). De modo que, se mantienen los niveles de energía

con alta concentración de estados presentes en la DOS de los canales individuales. En estos niveles es donde justamente encontramos los máximos valores del coeficiente de Seebeck, los cuales incrementan directamente el factor de potencia como se manifiesta en la figura 2.17. El máximo valor del factor de potencia que calculamos es aproximadamente 5 nW/K^2 , mucho mas alto que los valores máximos obtenidos en los canales $up - K$ (0.35 nW/K^2) y $down - K$ (3.5 nW/K^2) de manera individual. Sin mencionar que este valor supera en tres ordenes de magnitud al factor de potencial máximo alcanzado en superredes aplicadas en grafeno (5 pW/K^2) [133]. Finalmente, recordamos que el factor de potencia está directamente relacionado con la eficiencia termoeléctrica, la cual mejora notablemente cuando se redistribuye la densidad de estados al considerar un sistema de baja dimensión, como es el caso de las superredes construidas a base de grafeno GGSLs y siliceno GSSLs.

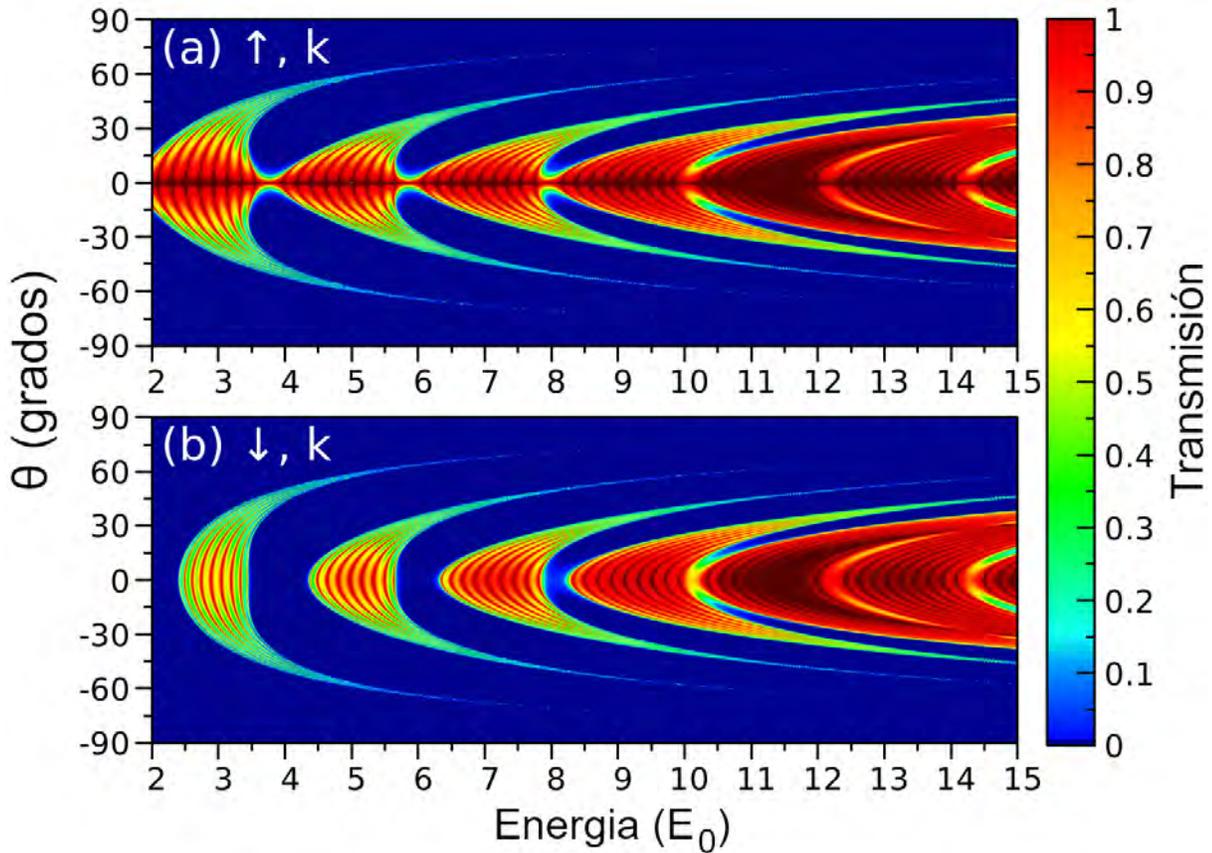


Figura 2.4: Probabilidad de transmisión en función de la energía y el ángulo de incidencia para la superred (GSSL) y para dos canales de conducción: (a) $up-K$ y (b) $down-K$. La GSSL esta formada por 10 barreras de potencial $U_B = 5$ y ancho $d_B = 0,5$, donde el ancho de los pozos de potencial cero es $d_W = 1,0$.

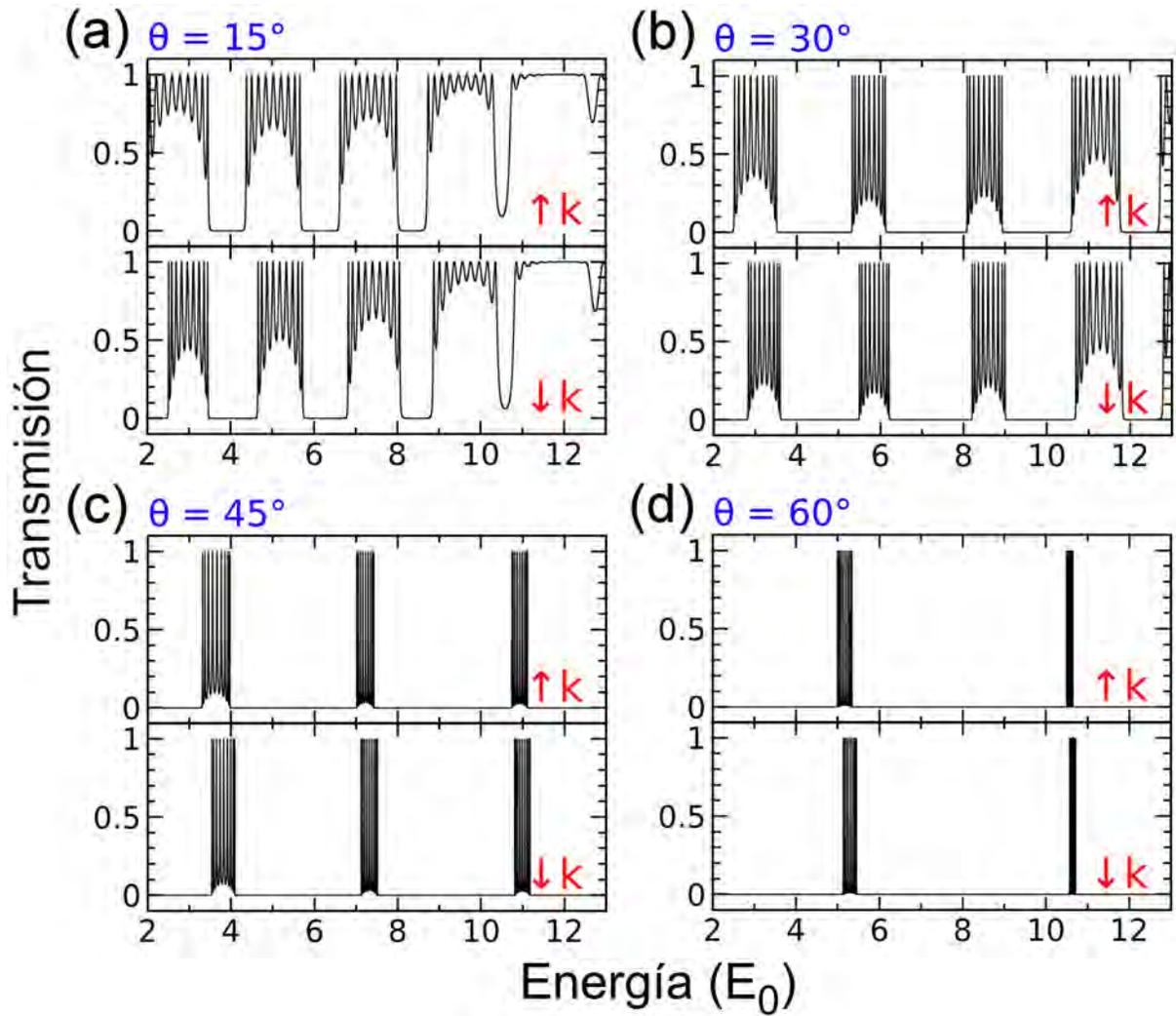


Figura 2.5: Probabilidad de transmisión en función de la energía para la superred (GSSL) y para distintos ángulos de incidencia: (a) 15° , (b) 30° , (c) 45° y (d) 60° tanto para el canal *up-K* como para el canal *down-K*. Los parámetros de la GSSL son los mismos utilizados en la figura 2.4

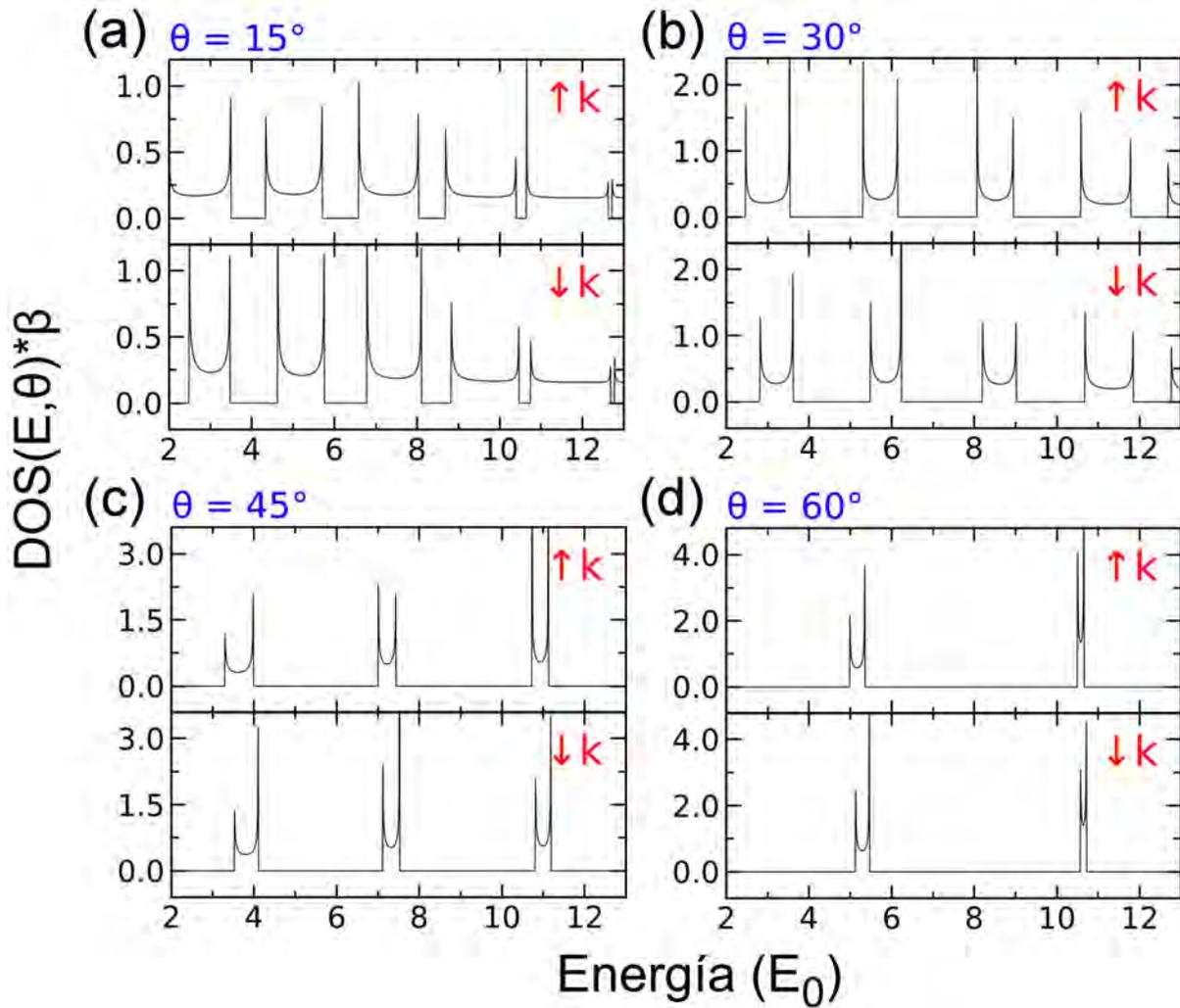


Figura 2.6: Densidad de estados en función de la energía para la superred (GSSL) y para diferentes ángulos de incidencia: (a) 15° , (b) 30° , (c) 45° y (d) 60° tanto para el canal $up-K$ como para el canal $down-K$. Los parámetros de la GSSL son los mismos que utilizamos en la figura 2.4. El parámetro $\beta = \hbar v_F$ representa simplemente el número de estados.

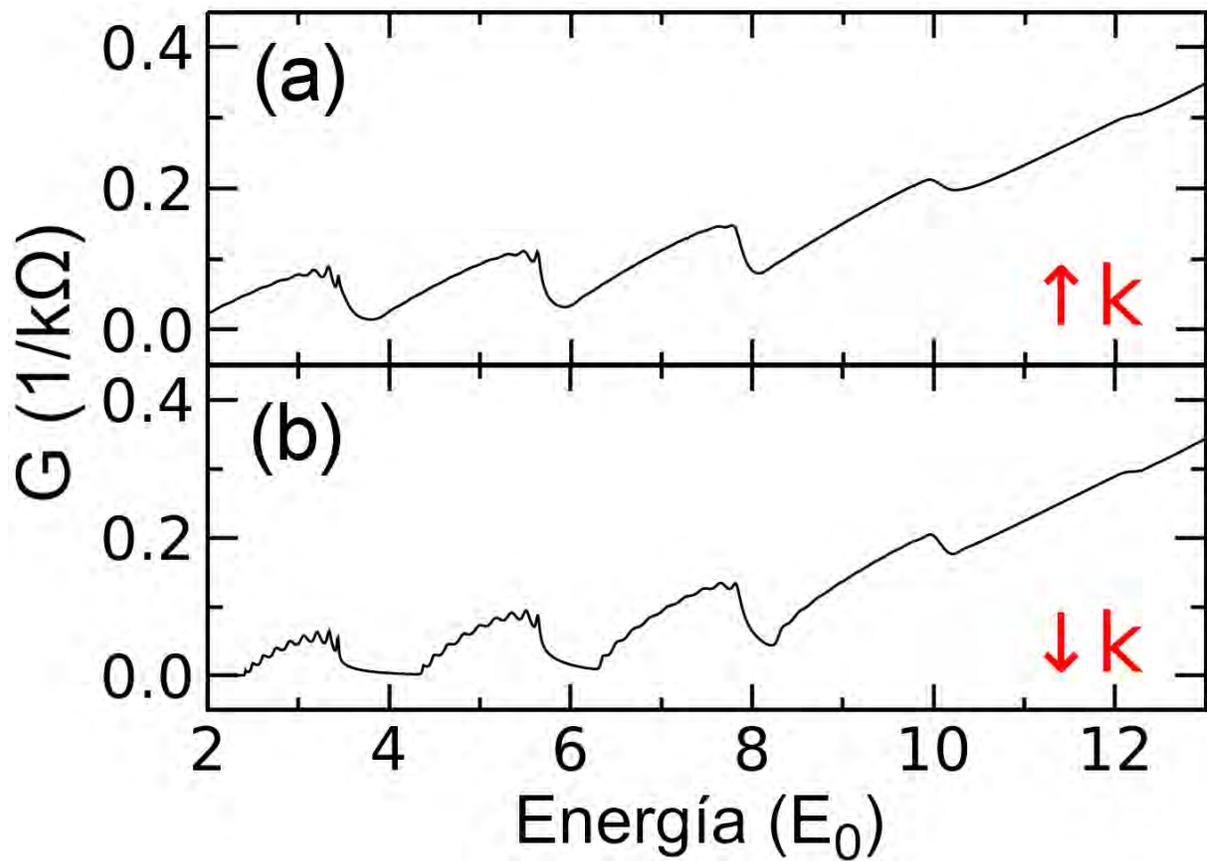


Figura 2.7: Conductancia en función de la energía para la superred (GSSL) y para dos canales de conducción: (a) $up-K$ y (b) $down-K$. La GSSL está formada por 10 barreras de potencial $U_B = 5$ con ancho $d_B = 0,5$. El ancho de los pozos de potencial cero es $d_W = 1,0$.

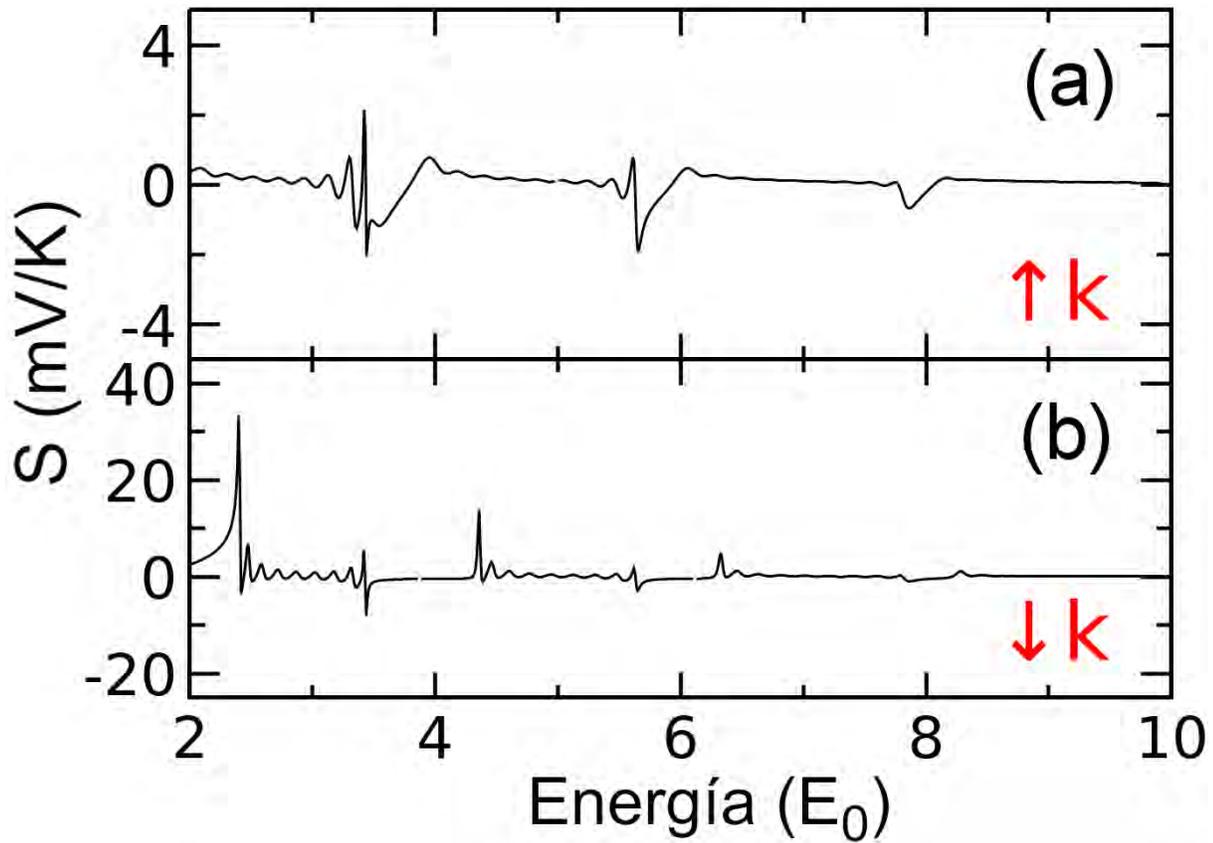


Figura 2.8: Coeficiente de Seebeck en función de la energía para la superred (GSSL) y para dos canales de conducción: (a) $up-K$ y (b) $down-K$. Los parámetros de la GSSL son los mismos que utilizamos en la figura 2.6.

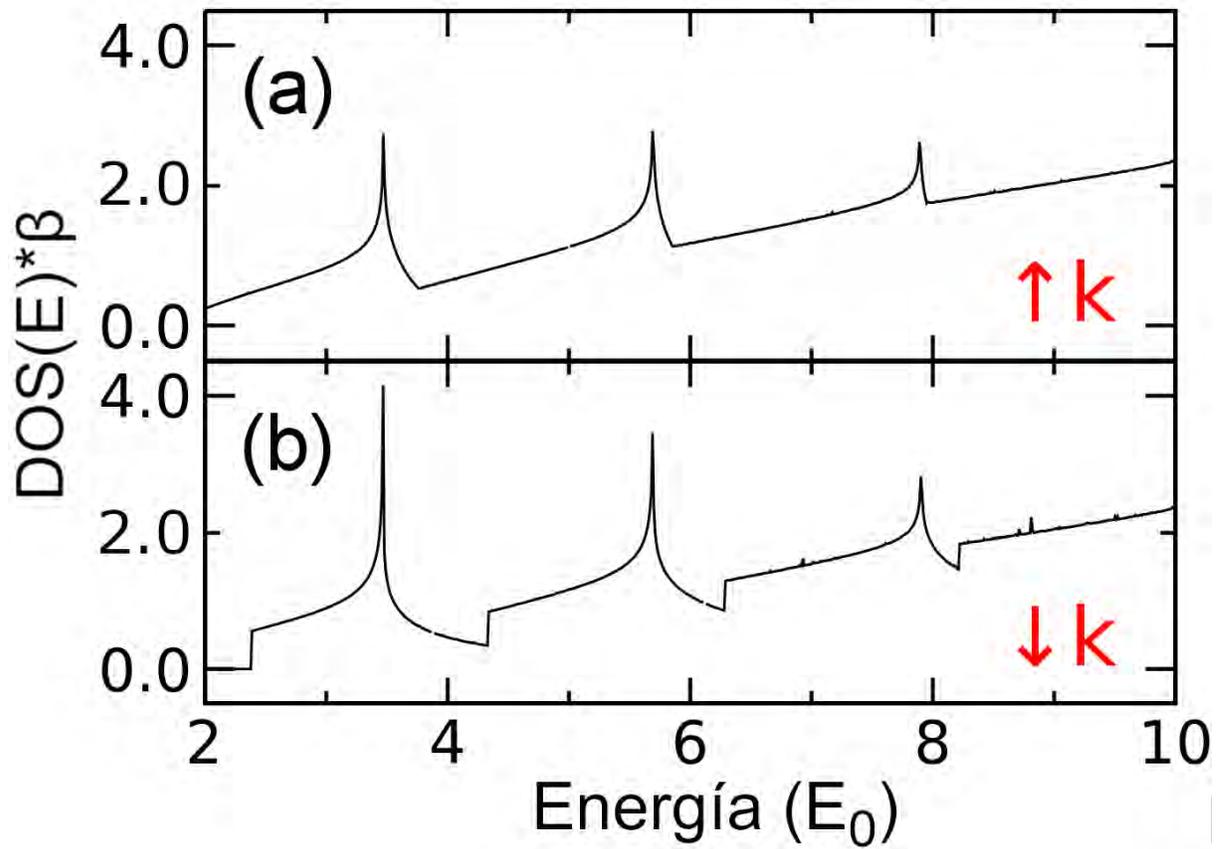


Figura 2.9: Densidad de estados en función de la energía para la superred (GSSL) y dos canales de conducción: (a) $up-K$ and (b) $down-K$. Los parámetros de la GSSL son los mismos que en la figura 2.6 y $\beta = \hbar v_F$ da el número de estados.

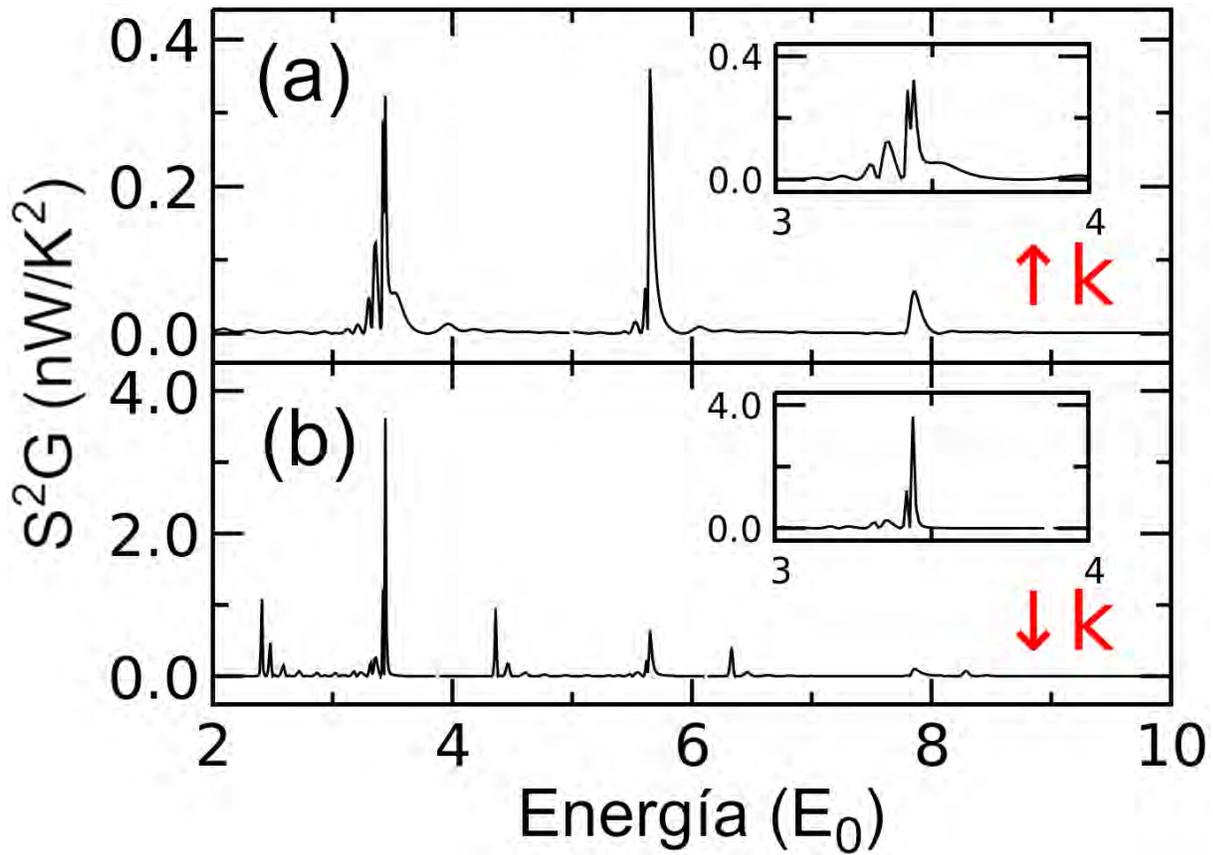


Figura 2.10: Factor de potencia termoeléctrico para la superred (GSSLs) y para dos diferentes canales de conducción: (a) $up-K$ and (b) $down-K$. Los parámetros de la GSSL son los mismos utilizados en la figura 2.6.

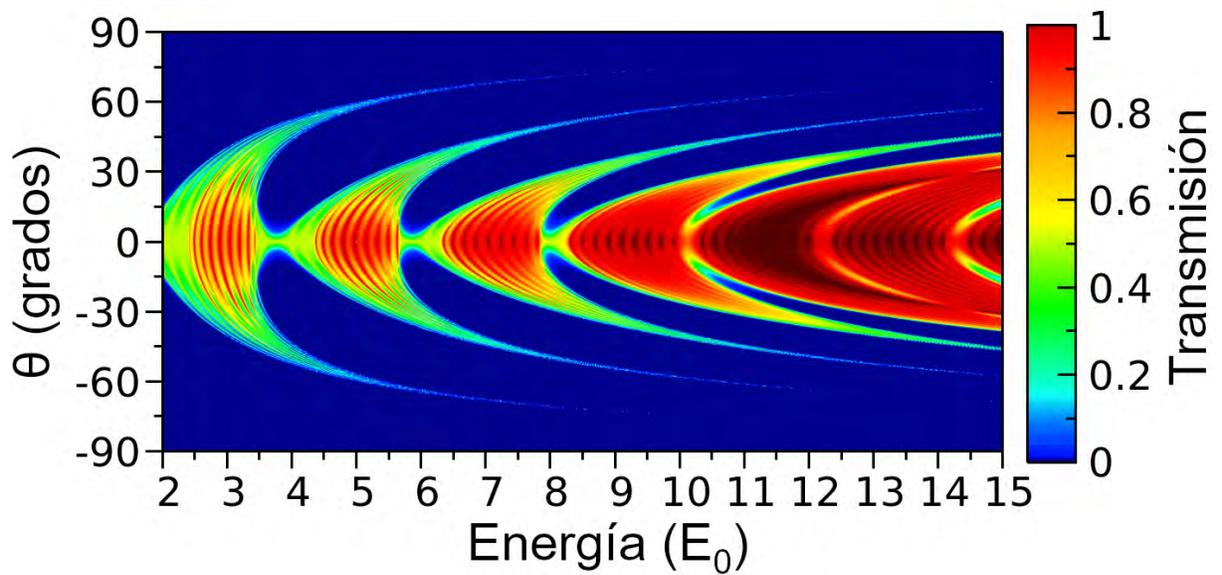


Figura 2.11: Transmisión global en función de la energía y el ángulo de incidencia para la superred (GSSL). La GSSL esta formada por 10 barreras de potencial $U_B = 5$ y con ancho $d_B = 0,5$, donde el ancho de los pozos de potencial cero es $d_W = 1,0$.

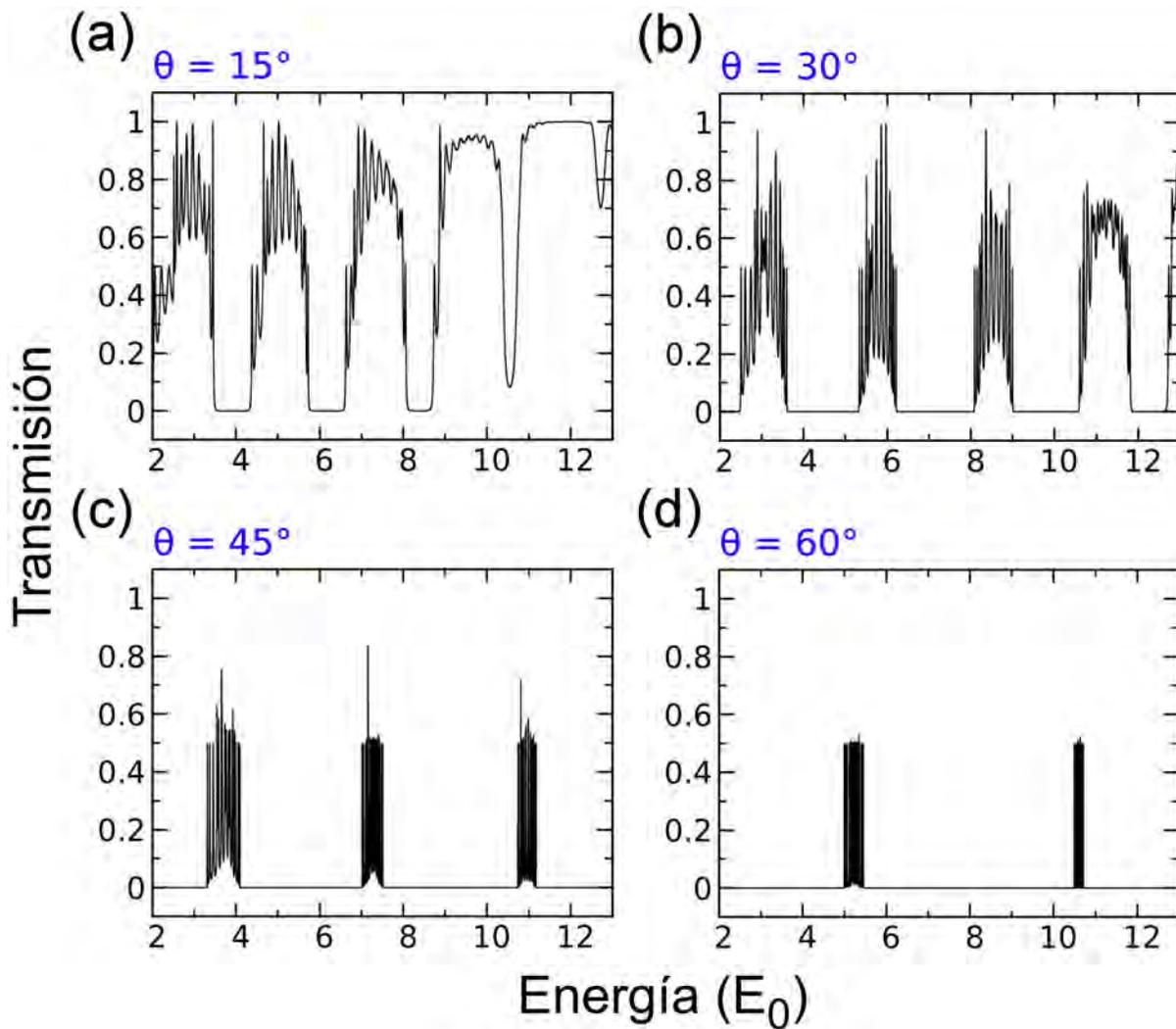


Figura 2.12: Transmisión global en función de la energía para la superred (GSSL) y para distintos ángulos de incidencia: (a) 15° , (b) 30° , (c) 45° y (d) 60° . Los parámetros de la GSSL son los mismos utilizados en la figura 2.10.

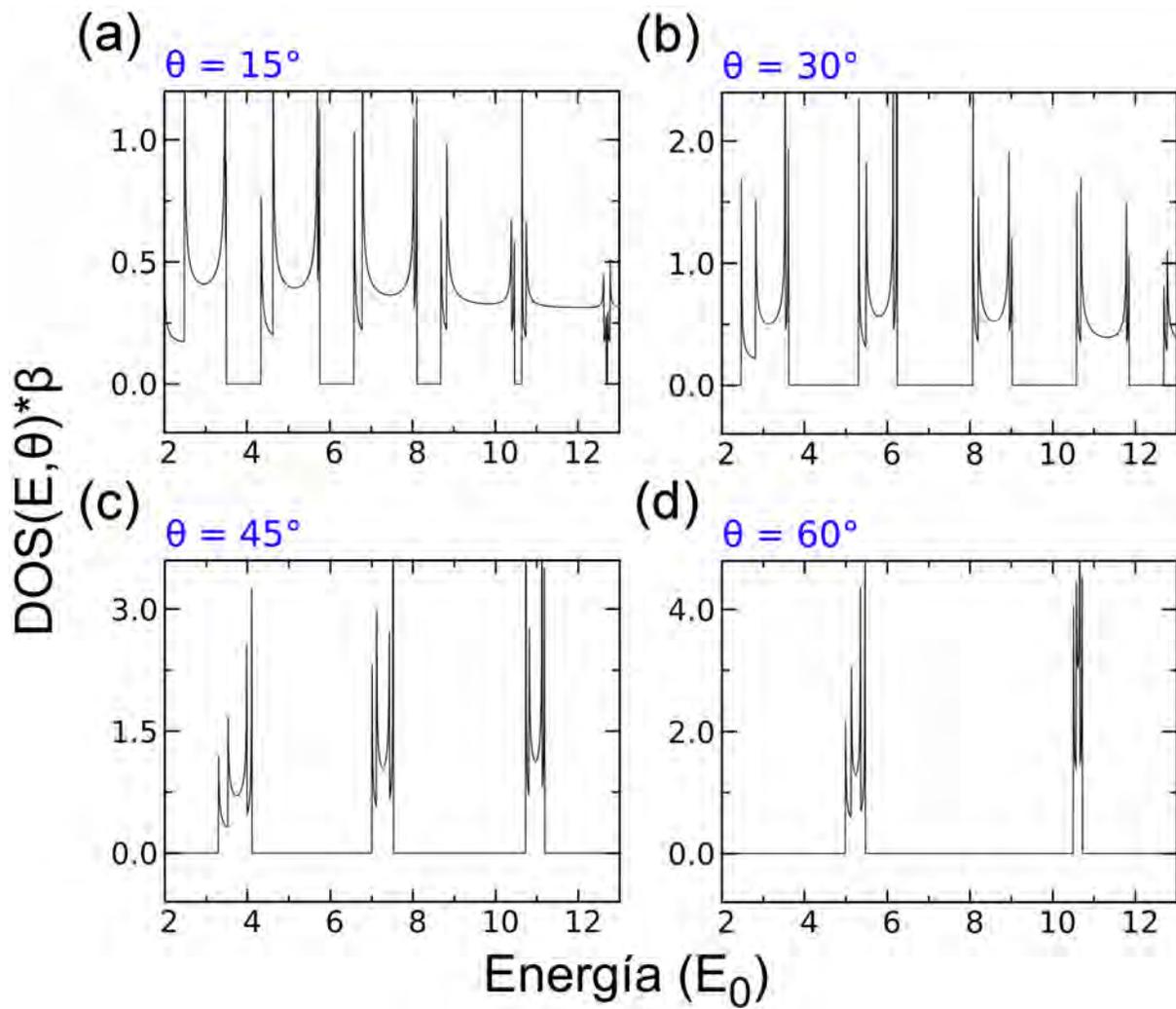


Figura 2.13: Densidad de estados global en función de la energía para la superred (GSSL) y para distintos ángulos de incidencia: (a) 15° , (b) 30° , (c) 45° y (d) 60° . Los parámetros de la GSSL son los mismos utilizados en la figura 2.10. El parámetro $\beta = \hbar v_F$ contabiliza el número de estados.

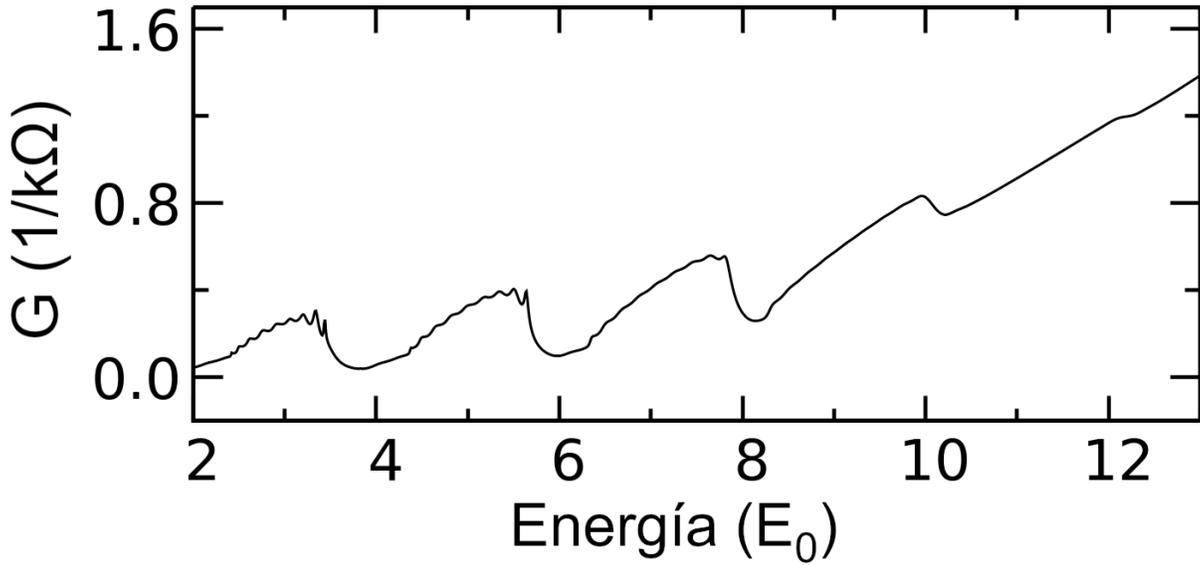


Figura 2.14: Conductancia global en función de la energía para la superred (GSSL) formada por 10 barreras de potencial $U_B = 5$ con ancho $d_B = 0,5$. El ancho de los pozos de potencial cero es $d_W = 1,0$.

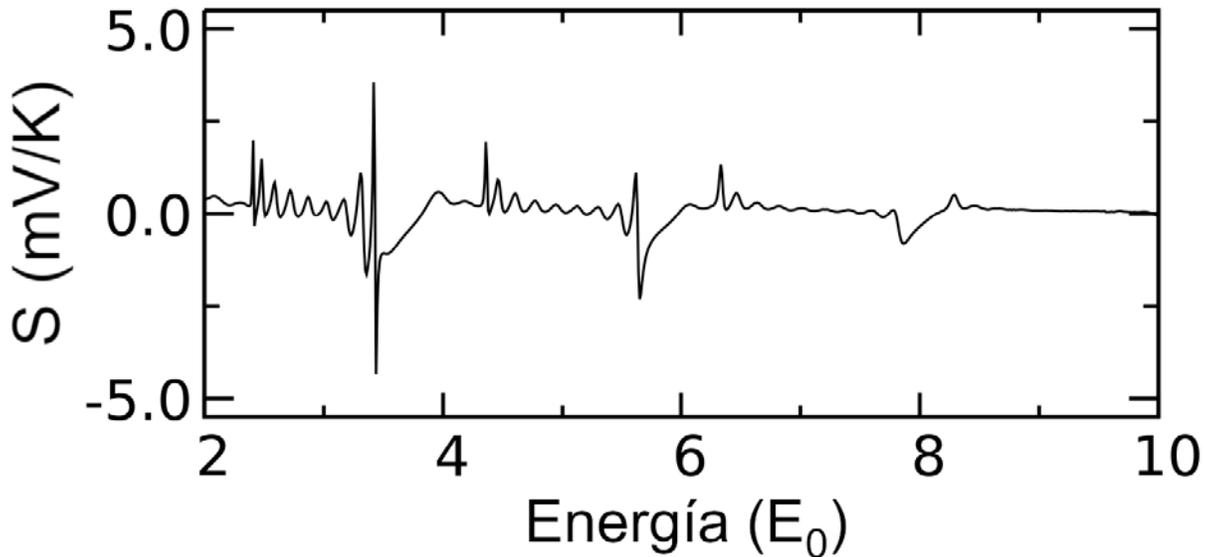


Figura 2.15: Coeficiente de Seebeck en función de la energía para la superred (GSSL). Los parámetros son los mismos utilizados en la figura 2.12

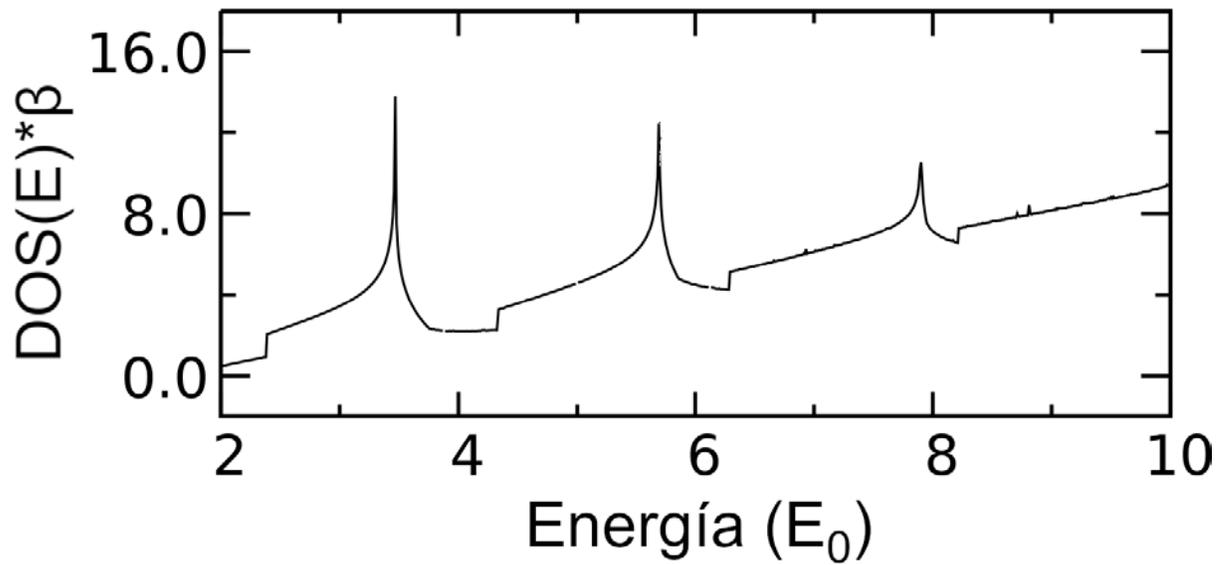


Figura 2.16: Densidad de estados global en función de la energía para la superred (GSSL). Los parámetros de la GSSL son los mismos utilizados en la figura 2.12. El parámetro $\beta = \hbar v_F$ da el número de estados.

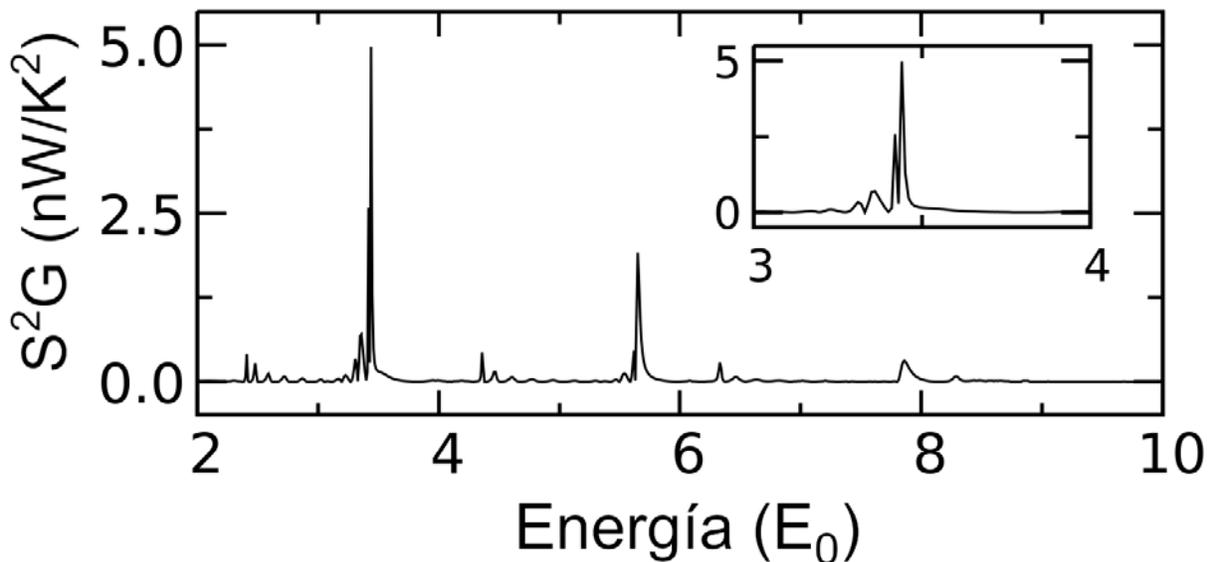


Figura 2.17: Factor de potencia termoeléctrica en función de la energía para la superred (GSSL). Los parámetros de la GSSL son los mismos utilizados en la figura 2.12

2.5. Conclusiones

- En este trabajo, hemos mostrado que mediante la aplicación de una serie periódica de potenciales electrostáticos sobre una capa de siliceno GSSL podemos modular el transporte balístico de los portadores, el cual depende en gran medida de la energía y del ángulo de incidencia.
- Encontramos que las propiedades intrínsecas del siliceno, tales como el *gap* en su estructura de bandas y la intensa interacción de acoplamiento espín-órbita, permiten diferenciar el transporte de acuerdo con el valle y el espín de los portadores, aspecto importante para las aplicaciones en el área de la espintrónica.
- En cuanto a las propiedades termoelectricas obtuvimos una mejora considerable, debido a los cambios drásticos observados en el transporte, en particular, por la tendencia oscilatoria muy pronunciada de la conductancia. En efecto, hemos logrado valores elevados del coeficiente de Seebeck de hasta 4 mV/K y del factor de potencia de hasta 5 nW/K², los cuales superan en uno y tres órdenes de magnitud, respectivamente, a los valores encontrados en superredes construidas a base de grafeno GGSLs. Estos valores en combinación con la baja conductividad térmica en siliceno podrían mejorar notablemente el valor de la figura de Merito.
- Demostramos que los valores elevados del factor de potencia están relacionados con la alta acumulación causada por la redistribución de la densidad de estados, lo cual es consecuencia de la disminución de la dimensionalidad de nuestro dispositivo al considerar materiales como siliceno.
- Podemos finalmente concluir, que el siliceno podría ser una excelente opción para construir dispositivos nanoestructurados espintrónicos con una alta eficiencia termoelectrica.

Bibliografía

- [1] G. Moore, *Progress in digital integrated electronics*, IEDM Tech. Digest, pp. 11-13, 1975.
- [2] I. Žutić, J. Fabian, Jaroslav, and S.D. Sarma, *Spintronics: fundamentals and applications*. Rev. Mod. Phys. **76**, 323 (2004).
- [3] D.D. Awschalom, D. Loss, and N. Samarth, *Semiconductor spintronics and quantum computation*, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg (2002).
- [4] G.C. Lombardi, and G.E. Bianchi, *Spintronics: Materials, Applications and Devices*, Nova Science Publishers Inc., New York (2009).
- [5] S.A. Wolf, D.D. Awschalom, R.A. Buhrman, J.M. Daughton, S. von Molnár, M.L. Roukes, A.Y. Chtchelkanova, and D.M. Treger, *Spintronics: a spin-based electronics vision for the future*. Science **294**, 1488 (2001).
- [6] S. Vasala, and M. Karppinen, *$A_2B'B''O_6$ perovskites: A review*, Progress in Solid State Chemistry **43**, 1 (2015).
- [7] G.F. Dionne, *Magnetic oxides*, Springer (2019).
- [8] N. Izyumskaya, Ya. Alivov, and H. Morkoc, *Oxides, oxides, and more oxides: high- κ oxides, ferroelectrics, ferromagnetics, and multiferroics*, Crit. Rev. Solid State Mater. Sci. **34**, 89 (2009).
- [9] M. Xu, T. Liang, M. Shi, and H. Chen, *Graphene-like two-dimensional materials*, Chem. Rev. **113**, 3766 (2013).

-
- [10] S.S. Ray, and M. Okamoto, *Polymer/layered silicate nanocomposites: a review from preparation to processing*, Prog. Polym. Sci. **28**(11), 1539 (2003).
- [11] D.R. Paul, and L.M. Robeson, *Polymer nanotechnology: Nanocomposites*, Polymer **49**(15), 3187 (2008).
- [12] A. Zhang, G. Zheng, and C.M. Lieber, *Nanowires: Building blocks for nanoscience and nanotechnology*, Springer Switzerland (2016).
- [13] P. Harrison, and A. Valavanis, *Quantum Wells, Wires and Dots Theoretical and Computational Physics of Semiconductor Nanostructures*, John Wiley & Sons (2016).
- [14] A.K. Geim, and I.V. Grigorieva, *Van der Waals heterostructures*, Nature **499**, 419 (2013).
- [15] K.S. Novoselov, A. Mishchenko, A. Carvalho, and A.H. Castro Neto, *2D materials and van der Waals heterostructures*, Science **353**, aac9439-1 (2016).
- [16] A. Wacker, *Semiconductor superlattices: a model system for nonlinear transport*, Physics Reports **357**, 1 (2002).
- [17] N. Missault, P. Vasilopoulos, F. M. Peeters, and B. Van Duppen, *Spin- and valley-dependent miniband structure and transport in silicene superlattices*, Phys. Rev. B **93**, 125425 (2016).
- [18] C.L. Kane, and E.J. Mele, *Z_2 Topological Order and the Quantum Spin Hall Effect*, Phys. Rev. Lett. **95**, 146802 (2005).
- [19] J.E. Moore, *The birth of topological insulators*, Nature **464**, 194 (2010).
- [20] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach, and W. Zinn, *Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange*, Phys. Rev. B **39**, 4828 (1989).

- [21] M.N. Baibich, J.M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas, *Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnetic superlattices*, Phys. Rev. Lett. **61**, 2472 (1988).
- [22] A.P. Ramirez, *Colossal magnetoresistance*, J. Phys. Condens. Matter **9**(39), 8171 (1997).
- [23] S.S.P. Parkin, C. Kaiser, A. Panchula, P.M. Rice, B. Hughes, M.Samant, and S.-H. Yang, *Giant tunneling magnetoresistance at room temperature with MgO(100) tunnel barriers*, Nat. Mater. **3**, 862 (2004).
- [24] L. Jiang, H. Naganuma, M. Oogane, and Y. Ando, *Large tunnel magnetoresistance of 1056 % at room temperature in MgO based double barrier magnetic tunnel junctions*, Appl. Phys. Express. **2**, 083002 (2009).
- [25] M.I. Katsnelson, V. Yu. Irkhin, L. Chioncel, A.I. Lichtenstein, and R.A. de Groot, *Half-metallic ferromagnets: From band structure to many-body effects*, Rev. Mod. Phys. **80**, 315 (2008).
- [26] C.Y. Fong, J.E. Pask, and L.H. Yang, *Half-metallic materials and their properties*, Imperial College Press (2013).
- [27] C.L. Kane, and E.J. Mele, *Quantum Spin Hall Effect in Graphene*, Phys. Rev. Lett. **95**, 226801 (2005).
- [28] B.A. Bernevig, and S.-C. Zhang, *Quantum Spin Hall Effect*, Phys. Rev. Lett. **96**, 106802 (2006).
- [29] A. Manchon, H.C. Koo, J. Nitta, S.M. Frolov, and R.A. Duine, *New perspectives for Rashba spin-orbit coupling*, Nature Materials **14**, 871 (2015).
- [30] S. Datta, and B. Das, *Electronic analog of electro-optic modulator*, Appl. Phys. Lett. **56** (7), 665 (1990).

- [31] J.M Daughton, *Magnetic tunneling applied to memory*, J. Appl. Phys. **81**, 3758 (1997).
- [32] T. Kawaharaa, K. Ito, R. Takemura, and H. Ohno, *Spin-transfer torque RAM technology: Review and prospect*, Microelectronics Reliability **52**(4), 613 (2012).
- [33] F.J. Jedema, A.T. Filip, and B.J. van Wees, *Electrical spin injection and accumulation at room temperature in an all-metal mesoscopic spin valve*. Nature **410**, 345 (2001).
- [34] J. Wang, and Z.Y. Li, *Multiple switching of spin polarization injected into a semiconductor by a multiferroic tunneling junction*, J. Appl. Phys. **104**, 033908 (2008).
- [35] W. Han, K. Pi, K.M. McCreary, Y. Li, J.J.I. Wong, A.G. Swartz, and R.K. Kawakami, *Tunneling Spin Injection into Single Layer Graphene*, Phys. Rev. Lett. **105**, 167202, (2010).
- [36] D.J. Late, Y.-K. Huang, B. Liu, J. Acharya, S.N. Shirodkar, J. Luo, A. Yan, D. Charles, U.V. Waghmare, V. P. Dravid, and C.N.R. Rao, *Sensing behavior of atomically thin-layered MoS₂ transistors*, ACS Nano **7**(6), 4879 (2013).
- [37] M. Ramsteiner, O. Brandt, T. Flissikowski, H.T. Grahn, M. Hashimoto, J. Herfort, and H. Kostial, *Co₂FeSi/GaAs/(Al, Ga)As spin light-emitting diodes: Competition between spin injection and ultrafast spin alignment*, Phys. Rev. B **78**, 121303(R) (2008).
- [38] K.I. Kobayashi, T. Kimura, H. Sawada, K. Terakura, and Y. Tokura, *Room-temperature magnetoresistance in an oxide material with an ordered double-perovskite structure*, Nature **395**, 677 (1998).
- [39] C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics*, Jonh Wiley & Sons Inc., New York (1996).

- [40] J. Hubbard, *Electron correlations in narrow energy bands*, Proc. Roy. Soc. **A276**, 238 (1963).
- [41] C. Zener, *Interaction between the d-shells in the transition metals*, Phys. Rev. **81**, 440 (1951).
- [42] P.W. Anderson, and H. Hasegawa, *Considerations on double exchange*. Phys. Rev. **100**, 675 (1955).
- [43] P.G. de Gennes, *Effects of double exchange in magnetic crystals*, Phys. Rev. **118**, 141 (1960).
- [44] H.A. Kramer, *L'interaction entre les atomes Magnétogènes dans un cristal paramagnétique*, Physica **1**, 182 (1934).
- [45] P.W. Anderson, *Antiferromagnetism. Theory of superexchange interaction*, Phys. Rev., **79**, 350 (1950).
- [46] D.D. Sarma, and S. Ray., *Properties of a new magnetic material: Sr_2FeMoO_6* , Proc. Indian Acad. Sci. **113**, 515 (2001).
- [47] J.B. Goodenough, and R.I. Dass, *Comment of the magnetic properties of the system $Sr_{2-x}Ca_xFeMoO_6$, $0 \leq x \leq 2$* , Int. J. Inorg. Mater. **2**, 3 (2000).
- [48] J. Linden, T. Yamamoto, T.A. Karppinen, H. Yamauchi, and T. Pietari, *Evidence for valence fluctuation of Fe in $Sr_2(FeMo)O_{6-\omega}$* , Appl. Phys. Lett. **76**, 2925 (2000).
- [49] Y. Moritomo, X. Sheng, A. Machida, T. Akimoto, E. Nishibori, M. Takata, M. Sakata, and K. Ohoyama, *Crystal and magnetic structure of conducting double perovskite Sr_2FeMoO_6* , J. Phys. Soc. Jpn. **69**, 1723 (2000).
- [50] D.D. Sarma, E.V. Sampathkumaran, S. Ray, R. Nagarajan, S. Majumdar, A. Kumar, G. Nalini, and T.N. Guru Row, *Magnetoresistance in ordered and disordered double perovskite oxide Sr_2FeMoO_6* , Solid State Commun. **114**, 465 (2000).

- [51] T. Nakagawa, *Magnetic and electrical properties of ordered perovskite $Sr_2(FeMo)O_6$ and its related compounds*, J. Phys. Soc. Jpn. **24**, 806 (1968).
- [52] T. Nakagawa, K. Yoshikawa, and S. Nomura, *Electrical properties and Mössbauer effect in the system $Sr_2(FeMo_xW_{1-x})O_6$* , J. Phys. Soc. Jpn. **27**, 880 (1969).
- [53] B. Aguilar, T.E. Soto, J. de la Torre Medina, O. Navarro, *Curie temperature enhancement in the double perovskite $Sr_{2-x}La_xFeMoO_6$ system: An experimental study*, Physica B: Condensed Matter **556**, 108 (2019).
- [54] O. Chmaissem, R. Kruk, B. Dabrowski, D.E. Brown, X. Xiong, S. Kolesnik, J.D. Jorgensen, and C.W. Kimball, *Structural phase transition and the electronic and magnetic properties of Sr_2FeMoO_6* , Phys. Rev. B **62**, 14197 (2000).
- [55] J.M. Greneche, M. Venkatesan, R. Suryanarayanan, and J.M.D. Coey, *Mössbauer spectrometry of A_2FeMoO_6 ($A=Ca, Sr, Ba$): Search for antiphase domains*, Phys. Rev. B **63**, 174403 (2001).
- [56] M. Venkatesan, M. Grafoute, A.P. Douvalis, J.M. Greneche, R. Suryanarayanan, and J.M.D. Coey, *Mössbauer studies of Sr_2FeMoO_6 and related compounds*, J. Magn. Magn. Mater. **242-245**, 744 (2002).
- [57] Ll. Balcells, J. Navarro, M. Bibes, A. Roig, B. Martínez, and J. Fontcuberta, *Cationic ordering control of magnetization in Sr_2FeMoO_6 double perovskite*, Appl. Phys. Lett. **78**, 781 (2001).
- [58] M.S. Moreno, J.E. Gayone, M. Abbate, A. Caneiro, D. Niebieskikwiat, R.D. Sánchez, A. de Siervo, R. Landers, and G. Zampieri, *Fe and Mo Valences in Sr_2FeMoO_6* , Solid State Commun. **120**, 161 (2001).
- [59] Y. Tomioka, T. Okuda, Y. Okimoto, R. Kumai, K-I. Kobayashi, and Y. Tokura, *Magnetic and electronic properties of a single crystal of ordered double perovskite Sr_2FeMoO_6* , Phys. Rev. B **61**, 422 (2000).

- [60] O. Navarro, E. Carvajal, B. Aguilar, and M. Avignon, *Ferromagnetic-antiferromagnetic transition in double perovskites*, Physica B **384**, 110 (2006).
- [61] Ll. Balcells, J. Navarro, M. Bibes, A. Roig, B. Martínez, and J. Fontcuberta, *Cationic ordering control of magnetization in Sr_2FeMoO_6 double perovskite*, Appl. Phys. Lett. **78**, 781 (2001).
- [62] B. Aguilar, O. Navarro, and M. Avignon, *Effect of cationic disorder on the spin polarization in $FeMo$ double perovskites*, Europhys. Lett. **88**, 67003 (2009).
- [63] J.R. Suárez, F. Estrada, O. Navarro, M. Avignon, *Magnetic properties of the ordered and disordered double perovskite $Sr_2Fe_{1+x}Mo_{1-x}O_6$ ($-1 \leq x \leq 1/3$)*, Europhys. J. B **84**, 53 (2011).
- [64] A.S. Ogale, S.B. Ogale, R. Ramesh, and T. Venkatesan, *Octahedral cation site disorder effects on magnetization in double-perovskite Sr_2FeMoO_6 : Monte Carlo simulation study*, Appl. Phys. Lett. **75**, 537 (1999).
- [65] D. Sánchez, J. A. Alonso, M. García-Hernández, M. J. Martínez-Lope, J. L. Martínez, and Anders Mellergård, *Origin of neutron magnetic scattering in antisite-disordered Sr_2FeMoO_6 double perovskites*, Phys. Rev. B **65**, 104426 (2002).
- [66] E.N. Economou, *Green's Functions in Quantum Physics*, Springer, Berlin (2006).
- [67] E.J. Guzmán, *Calculo de la temperatura de Curie en sistemas ferromagnéticos medio-metálicos*, Tesis de Maestría en Ciencias en Ingeniería Física, UMSNH, Morelia, Michoacán, México, (2015).
- [68] E. Carvajal, O. Navarro, R. Allub, M. Avignon, and B. Alascio, *Ferromagnetic transition in ordered double perovskites and related alloys*, Eur. Phys. J. B **48**, 179 (2005).

- [69] K.-I. Kobayashi, T. Kimura, Y. Tomioka, H. Sawada, K. Terakura, and Y. Tokura, *Intergrain tunneling magnetoresistance in polycrystals of the ordered double perovskite Sr_2FeReO_6* , Phys. Rev. B **59**(17), 11159 (1999).
- [70] Z. Fang, K. Terakura, and J. Kanamori, *Strong ferromagnetism and weak antiferromagnetism in double perovskites: Sr_2FeMO_6 ($M=Mo, W, \text{ and } Re$)*, Phys. Rev. B **63**, 180407(R) (2001).
- [71] E. Carvajal, O. Navarro, R. Allub, M. Avignon, and B. Alascio, *Electronic and magnetic properties of the double perovskite $Sr_2FeMo_xW_{1-x}O_6$* , Journal of Magnetism and Magnetic Materials **272-276** Part 3, 1774 (2004).
- [72] S. Ray, A. Kumar, S. Majumdar, E.V. Sampathkumaran, and D.D. Sarma, *Transport and magnetic properties of $Sr_2FeMo_xW_{1-x}O_6$* , Journ. of Phys.: Condens. Matt. **13**(4), 607 (2001).
- [73] J. Navarro, C. Frontera, Ll. Balcells, B. Martínez, and J. Fontcuberta, *Raising the Curie temperature in Sr_2FeMoO_6 double perovskites by electron doping*, Phys. Rev. B: Condens. Matter **64**, 092411 (2001).
- [74] K.S. Novoselov, A.K. Geim, S.V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S.V. Dubonos, I.V. Grigorieva, and A.A. Firsov, *Electric field effect in atomically thin carbon films*. Science **306** (5696), 666 (2004).
- [75] K. Takeda, and K. Shiraishi, *Theoretical possibility of stage corrugation in Si and Ge analogs of graphite*. Phys. Rev. B **50**(20), 14916 (1994).
- [76] R. Saito, G. Dresselhaus, and M.S. Dresselhaus, *Physical Properties of Carbon Nanotubes*, London: Imperial College Press (1998).
- [77] S. Cahangirov, M. Topsakal, E. Aktürk, H. Şahin, and S. Ciraci, *Two- and one-dimensional honeycomb structures of Silicon and Germanium*. Phys. Rev. Lett. **102**(23), 236804 (2009).

- [78] C.-C. Liu, W. Feng, and Y. Yao, *Quantum Spin hall effect in silicene and two-dimensional germanium*, Phys. Rev. Lett. **107**, 076802 (2011).
- [79] G.G. Guzmán-Verri, and L.C. Lew Yan Voon, *Electronic structure of silicon-based nanostructures*, Phys. Rev. B **76**(7), 075131 (2007).
- [80] C.-C. Liu, H. Jiang, and Y. Yao, *Low-energy effective Hamiltonian involving spin-orbit coupling in silicene and two-dimensional germanium and tin*, Phys. Rev. B **84**, 195430 (2011).
- [81] L.C. Lew Yan Voon, A. Lopez-Bezanilla, J. Wang, Y. Zhang, and M. Willatzen, *Effective Hamiltonians for phosphorene and silicene*, New J. Phys. **17**(2), 025004 (2015).
- [82] A.H. Castro Neto, F. Guinea, N.M.R. Peres, K.S. Novoselov, and A.K. Geim, *The electronic properties of graphene*, Rev. of Mod. Phys. **81**, 109 (2009).
- [83] A. Acun, L. Zhang, P. Bampoulis, M. Farmanbar, A. van Houselt, A.N. Rudenko, M. Lingenfelder, G. Brocks, B. Poelsema, M.I. Katsnelson, and H.J.W. Zandvliet, *Germanene: the germanium analogue of graphen*, Journ. of Phys.: Condens. Matt. **27**(44), 443002 (2015).
- [84] N.D. Drummond, V. Zólyomi, and V.I. Fal'ko, *Electrically tunable band gap in silicene*, Phys. Rev. B **85**, 075423 (2012).
- [85] L. Tao, E. Cinquanta, D. Chiappe, C. Grazianetti, M. Fanciulli, M. Dubey, A. Molle, and D. Akinwande, *Silicene field-effect transistors operating at room temperature*. Nat. Nanotech. **10**(10), 227 (2015).
- [86] J.C. Slater, and G.F. Koster, *Simplified LCAO method for the periodic potential problem*, Phys. Rev. **94**, 1498 (1954).

- [87] X. Zhang, H. Xie, M. Hu, H. Bao, S. Yue, G. Qin, and G. Su, *Thermal conductivity of silicene calculated using an optimized Stillinger-Weber potential*, Phys. Rev. B **89**, 054310 (2014).
- [88] X. Gu, and R. Yang, *First-principles prediction of phononic thermal conductivity of silicene: A comparison with graphene*, J. Appl. Phys. **117**, 025102 (2015)
- [89] A.A. Balandin, S. Ghosh, W. Bao, I. Calizo, D. Teweldebrhan, F. Miao, and C.N. Lau, *Superior thermal conductivity of cingle-layer graphene*, Nano Lett. **8**(3), 902 (2008).
- [90] L. Lindsay, D.A. Broido, and N. Mingo, *Flexural phonons and thermal transport in graphene*, Phys. Rev. B **82**, 115427 (2010).
- [91] H. Xie, M. Hu, and H. Bao, *Thermal conductivity of silicene from first-principles*, Appl. Phys. Lett. **104**, 131906 (2014).
- [92] W. Cai, A.L. Moore, Y. Zhu, X. Li, S. Chen, L. Shi, and R.S. Ruoff, *Thermal transport in suspended and supported monolayer graphene grown by chemical vapor deposition*, Nano Lett. **10**, 1645 (2010).
- [93] X. Zhang, H. Bao, and M. Hu, *Bilateral substrate effect on the thermal conductivity of two-dimensional silicon*, Nanoscale **7**, 6014 (2015).
- [94] A. D. Liao, J. Z. Wu, X. Wang, K. Tahy, D. Jena, H. Dai, and E. Pop, *Thermally Limited Current carrying ability of graphene nanoribbons*, Phys. Rev. Lett. **106**, 256801 (2011).
- [95] Z. Wang, T. Feng, and X. Ruan, *Thermal conductivity and spectral phonon properties of freestanding and supported silicene*, J. Appl. Phys. **117**, 084317 (2015).
- [96] G. Qin, Z. Qin, S.-Y. Yue, Q.-B. Yan, and M. Hu, *External electric field driving the ultra-low thermal conductivity of silicene*, Nanoscale **9**, 7227 (2017).

- [97] M.E. Dávila, L. Xian, S. Cahangirov, A. Rubio and, and G. Le Lay, *Germanene: a novel two-dimensional germanium allotrope akin to graphene and silicene*, New J. Phys. **16**, 095002 (2014)
- [98] F.-F. Zhu, W.-J. Chen, Y. Xu, C.-L. Gao, D.-D. Guan, C.-H. Liu, D. Qian, S.-C. Zhang, and J.-F. Jia, *Epitaxial growth of two-dimensional stanene*, Nat. Mat. **14**, 1020 (2015).
- [99] H. Liu, A.T. Neal, Z. Zhu, Z. Luo, X. Xu, D. Tománek, and P.D. Ye, *Phosphorene: an unexplored 2D semiconductor with a high hole mobility*, ACS Nano **8**(4), 4033 (2014).
- [100] L. Li, Y. Yu, G.J. Ye, Q. Ge, X. Ou, H. Wu, D. Feng, X.H. Chen, and Y. Zhang, *Black phosphorus field-effect transistors*, Nat. Nanotech. **9**, 372 (2014).
- [101] L. Li, Y. Wang, S. Xie, X.-B. Li, Y.-Q. Wang, R. Wu, H. Sun, S. Zhang, and H.-J. Gao, *Synthesis of borophenes: Anisotropic, two-dimensional boron polymorphs*, Nano Lett. **13**, 4671 (2013).
- [102] A.J. Mannix, X.-F. Zhou, B. Kiraly, J.D. Wood, D. Alducin, B.D. Myers, X. Liu, B.L. Fisher, U. Santiago, J.R. Guest, M.J. Yacaman, A. Ponce, A.R. Oganov, M.C. Hersam, and N.P. Guisinger, *Two-Dimensional Transition Metal Honeycomb Realized: Hf on Ir(111)*, Science **350**, 1513 (2015).
- [103] P. Vogt, P. De Padova, C. Quaresima, J. Avila, E. Frantzeskakis, M.C. Asensio, A. Resta, B. Ealet, and G. Le Lay, *Silicene: compelling experimental evidence for graphenelike two-dimensional silicon*. Phys. Rev. Lett. **108**, 155501 (2012).
- [104] A. Fleurence, R. Friedlein, T. Ozaki, H. Kawai, Y. Wang, Y. Yamada-Takamura, *Experimental evidence for epitaxial silicene on diboride thin films*, Phys. Rev. Lett. **108**, 245501 (2012).
- [105] C. Léandri, H. Oughaddou, B. Aufray, J.M. Gay, G. Le Lay, A. Ranguis, and Y. Garreau, *Growth of Si nanostructures on Ag(001)*, Surf. Sci. **601**(1), 262 (2007).

- [106] B. Aufray, A. Kara, S. Vizzini, H. Oughaddou, C. Léandri, B. Ealet, and G. Le Lay, *Graphene-like silicon nanoribbons on Ag(110): a possible formation of silicene*, Appl. Phys. Lett. **96**(18), 183102 (2010).
- [107] B. Lalmi, H. Oughaddou, H. Enriquez, A. Kara, S. Vizzini, B. Ealet, and B. Aufray, *Epitaxial growth of a silicene sheet*, Appl. Phys. Lett. **97**, 223109 (2010).
- [108] C.-L. Lin, R. Arafune, K. Kawahara, N. Tsukahara, E. Minamitani, Y. Kim, N. Takagi, and M. Kawai, *Structure of silicene grown on Ag(111)*, Appl. Phys. Exp. **5**(4), 045802 (2012).
- [109] B. Feng, Z. Ding, S. Meng, Y. Yao, X. He, P. Cheng, L. Chen, and K. Wu, *Evidence of silicene in honeycomb structures of silicon on Ag(111)*, Nano Lett. **12**(7), 3507 (2012).
- [110] H. Enriquez, S. Vizzini, A. Kara, B. Lalmi, and H. Oughaddou, *Silicene structures on silver surfaces*, J. Phys.: Condens. Matter **24**, 314211 (2012).
- [111] M.R. Tchalala, H. Enriquez, A.J. Mayne, A. Kara, G. Dujardin, M. Ait Ali, and H. Oughaddou, *Atomic structure of silicene nanoribbons on Ag(110)*, J. Phys. Conf. Ser. **491**, 012002 (2014)
- [112] L. Meng, Y. Wang, L. Zhang, S. Du, R. Wu, L. Li, Y. Zhang, G. Li, H. Zhou, W.A. Hofer, and H.-J. Gao, *Buckled silicene formation on Ir(111)*, Nano Lett. **13**(2), 685 (2013).
- [113] D. Chiappe, E. Scalise, E. Cinquanta, C. Grazianetti, B. van den Broek, M. Fanciulli, M. Houssa, and A. Molle, *Two-dimensional Si nanosheets with local hexagonal structure on a MoS₂ surface*, Adv. Mater. **26**, 2096 (2014).
- [114] M.R. Tchalala, H. Enriquez, A.J. Mayne, A. Kara, S. Roth, M.G. Silly, A. Bendo-unan, F. Sirotti, T. Greber, B. Aufray, G. Dujardin, M.A. Ali, and H. Oughaddou, *Formation of one-dimensional self-assembled silicon nanoribbons on Au(110)-(2×1)*, Appl. Phys. Lett. **102**, 083107 (2013).

-
- [115] Y.P. Wang, and H.P. Cheng, *Absence of a Dirac cone in silicene on Ag(111): First-principles density functional calculations with a modified effective band structure technique*, Phys. Rev. B **87**, 245430 (2013).
- [116] C. Forman, I. K. Muritala, R. Pardemann, and B. Meyer, *Estimating the global waste heat potential*, Renew. Sustain. Energy Rev. **57**, 1568 (2016).
- [117] D. M. Rowe, CRC Handbook of Thermoelectrics, CRC-Press (1995).
- [118] G. S. Nolas, J. W. Sharp, and H. J. Goldsmid, *Thermoelectrics: Basic principles and new materials developments*, Berlin-Heidelberg Springer (2001).
- [119] A. F. Ioffe, Semiconductors Thermoelements and Thermoelectric Cooling (London, U.K. : Infosearch, 1957).
- [120] A. Bejan and A. D. Kraus, *Heat Transfer Handbook*, Wiley New York (2003).
- [121] L. D. Hicks, and M. S. Dresselhaus, *Effect of quantum-well structures on the thermoelectric figure of merit*, Phys. Rev. B **47**, 12727 (1993).
- [122] M. Dresselhaus, G. Chen, M. Tang, R. Yang, H. Lee, D. Wang, Z. Ren, J. Fleurial, and P. Gogna, *New directions for low-dimensional thermoelectric materials*, Adv. Mater. **19**, 1043 (2007).
- [123] K.-X. Chen, M.-S. Li, D.-C. Mo, and S.-S. Lyu, *Nanostructural thermoelectric materials and their performance*, Front. Energy **12**, 97 (2018).
- [124] J. He, and T.M. Tritt, *Advances in thermoelectric materials research: Looking back and moving forward*, Science **357**, 1369 (2017).
- [125] P. Markos, and C.M. Soukoulis, *Wave propagation from electrons to photonic crystals and left-handed materials*, Princeton Univertisy Press (2008).
- [126] S. Datta, *Electronic Transport in Mesoscopic Systems*, Cambridge University Press (1995); *Quantum Transport: Atom to Transistor*, Cambridge University Press (2005).

-
- [127] M. Cutler, and N.F. Mott, *Observation of anderson localization in an electron gas*, Phys. Rev. **181**, 1336 (1969).
- [128] Y. Wang, and Y. Lou, *Giant tunneling magnetoresistance in silicene*, J. Appl. Phys. **114**, 183712 (2013).
- [129] O. Oubram, O. Navarro, E.J. Guzmán, and I. Rodríguez-Vargas, *Asymmetrical external effects on transmission, conductance and giant tunneling magnetoresistance in silicene*, Superlattices Microstruct. **113**, 483 (2018).
- [130] A.F. Young, and P. Kim, *Quantum interference and Klein tunnelling in graphene heterojunctions*, Nat. Phys. **5**, 222 (2009).
- [131] L. Wang, I. Meric, P. Y. Huang, Q. Gao, Y. Gao, H. Tran, T. Taniguchi, K. Watanabe, L.M. Campos, D.A. Muller, J. Guo, P. Kim, J. Hone, K.L. Shepard, and C.R. Dean, *One-dimensional electrical contact to a two-dimensional material*, Science **342**, 614 (2013).
- [132] Y.M. Zuev, W. Chang, and P. Kim, *Thermoelectric and magnetothermoelectric transport measurements of graphene*, Phys. Rev. Lett. **102**, 096807 (2009).
- [133] S. Molina-Valdovinos, J. Martínez-Rivera, N. E. Moreno-Cabrera, and I. Rodríguez-Vargas, *Low-dimensional thermoelectricity in graphene: The case of gated graphene superlattices*, Physica. E: Low-dimensional Syst. Nanostruct. **101**, 188 (2018).