

La investigación reportada en esta tesis es parte de los programas de investigación del CICESE (Centro de Investigación Científica y de Educación Superior de Ensenada, Baja California).

La investigación fue financiada por el SECIHTI (Secretaría de Ciencia, Humanidades, Tecnología e Innovación).

Todo el material contenido en esta tesis está protegido por la Ley Federal del Derecho de Autor (LFDA) de los Estados Unidos Mexicanos (México). El uso de imágenes, fragmentos de videos, y demás material que sea objeto de protección de los derechos de autor, será exclusivamente para fines educativos e informativos y deberá citar la fuente donde la obtuvo mencionando el autor o autores. Cualquier uso distinto como el lucro, reproducción, edición o modificación, será perseguido y sancionado por el respectivo o titular de los Derechos de Autor.

CICESE © 2025, Todos los Derechos Reservados, CICESE

Centro de Investigación Científica y de Educación Superior de Ensenada, Baja California



Maestría en Ciencias en Nanociencias

Estudio por primeros principios sobre la influencia de la oxidación en resonadores superconductores basados en α -tántalo

Tesis

para cubrir parcialmente los requisitos necesarios para obtener el grado de
Maestro en Ciencias

Presenta:

José Daniel Gutiérrez Londoño

Ensenada, Baja California, México

2025

Tesis defendida por

José Daniel Gutiérrez Londoño

y aprobada por el siguiente Comité

Dr. Jonathan Guerrero Sánchez
Director de tesis

Dr. Carlos Antonio Corona García

Dr. Hoat Do Minh

Dr. Jassiel Rolando Rodríguez Barreras

Dr. Joseph Perry Corbett

Dr. Rodrigo Ponce Pérez



Dra. Catalina López Bastidas
Coordinadora del Posgrado en Nanociencias

Dra. Ana Denise Re Araujo
Directora de Estudios de Posgrado

Resumen de la tesis que presenta José Daniel Gutiérrez Londoño como requisito parcial para la obtención del grado de Maestro en Ciencias en Nanociencias.

Estudio por primeros principios sobre la influencia de la oxidación en resonadores superconductores basados en α -tántalo

Resumen aprobado por:

Dr. Jonathan Guerrero Sánchez
Director de tesis

Esta tesis presenta un estudio computacional empleando primeros principios con la Teoría del Funcional de la Densidad, enfocado en la influencia de la oxidación en interfases formadas por α -tántalo y óxido de aluminio (Al_2O_3), materiales de relevancia para resonadores superconductores. Se construyeron doce modelos de interfase que consideran las orientaciones cristalinas (111) y ($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$) del α -Ta, así como dos terminaciones superficiales de Al_2O_3 . La estabilidad termodinámica de cada sistema se evaluó mediante el cálculo de energía de formación de interfase bajo condiciones químicas variables de Ta, Al y O. Los resultados muestran que ciertas configuraciones alcanzan una mayor estabilidad dependiendo del entorno químico, especialmente en función del contenido relativo de Al y O en el sustrato. Además, se observó que las dos direcciones cristalinas evaluadas presentan comportamientos energéticos similares, lo que sugiere que no existe una dirección de crecimiento preferencial en términos de estabilidad termodinámica. Esta equivalencia permite seleccionar un conjunto reducido de modelos representativos para los análisis electrónicos detallados. Adicionalmente, se llevaron a cabo análisis de densidad de estados, función de localización de electrones y diferencias de densidad de carga, que permitieron identificar modificaciones en la distribución electrónica debido a la interacción entre el Ta y el sustrato. Los resultados demuestran que la oxidación en la interfase modifica levemente la estructura electrónica del tántalo, afectando potencialmente el desempeño de dispositivos superconductores. Este estudio proporciona información clave para el diseño de interfases más estables y eficientes en aplicaciones cuánticas.

Palabras clave: Interfase α -Ta/ Al_2O_3 , oxidación, estudio computacional.

Abstract of the thesis presented by José Daniel Gutiérrez Londoño as a partial requirement to obtain the Master of Science degree in Nanoscience.

First-principles study on the influence of oxidation in superconducting resonators based on α -tantalum

Abstract approved by:

Dr. Jonathan Guerrero Sánchez
Thesis Director

This thesis presents a computational study based on first-principles methods within the framework of Density Functional Theory, focusing on the influence of oxidation at interfaces formed by α -tantalum and aluminum oxide (Al_2O_3), materials of interest for superconducting resonators. Twelve interfacial models were constructed, considering (111) and ($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$) crystallographic orientations of α -Ta as well as two distinct surface terminations of Al_2O_3 . The thermodynamic stability of each system was evaluated by calculating the interface formation energy under varying chemical conditions involving Ta, Al, and O. The results show that certain configurations become more stable depending on the chemical environment, particularly the relative content of Al and O in the substrate. Moreover, both crystallographic orientations displayed comparable energetic behavior, suggesting the absence of a preferential growth direction in terms of thermodynamic stability. This equivalence enables the selection of a reduced set of representative models for detailed electronic analyses. Additional investigations included density of states, electron localization function, and charge density difference analyses, which revealed modifications in the electronic distribution caused by the interaction between Ta and the substrate. The results indicate that oxidation at the interface slightly alters the electronic structure of tantalum, potentially impacting the performance of superconducting devices. Overall, this study provides valuable insights for designing more stable and efficient interfaces for quantum applications.

Keywords: α -Ta/ Al_2O_3 interface, oxidation, computational study.

Dedicatoria

*Este trabajo se lo dedico a la persona más importante en mi vida, mi madre
Luz María Gutiérrez Londoño.*

Agradecimientos

Inicialmente quiero agradecer a mi madre, por el apoyo que me brinda cada día y por el apoyo que me ha brindado en cada momento de mi vida. Sin ella, nada de esto sería posible.

Agradezco a mi director de tesis el Dr. Jonathan Guerrero Sánchez, por el apoyo que me ha brindado estos años, tanto en mi formación personal como profesional y por creer en mis habilidades, ayudándome a mejorar cada día.

Agradezco al Centro de Investigación Científica y de Educación Superior de Ensenada, Baja California, al Centro de Nanociencias y Nanotecnología de la Universidad Nacional Autónoma de México por generar las condiciones administrativas e infraestructurales ideales para desarrollar todas las actividades de este proyecto de tesis. Agradezco al SECIHTI por el apoyo económico brindado, el cual fue fundamental para la realización de este trabajo. También agradezco al proyecto NSF- ExpandQISE: número 2328747, y a los proyectos IA100624, IG101124, IN101523 e IN105722 de la DGAPA-UNAM. Así como al Centro de Supercómputo DGCTIC-UNAM, Proyectos: LANCAD-UNAM-DGTIC-368, LANCAD-UNAM-DGTIC-150 y LANCAD-UNAM-DGTIC-422.

Agradezco al Dr. Carlos Antonio Corona García, Dr. Hoat Do Minh, Dr. Jassiel Rolando Rodríguez Barreras, Dr. Joseph Perry Corbett y Dr. Rodrigo Ponce Pérez, por haber formado parte del comité evaluador de esta tesis. Su experiencia y conocimientos fueron fundamentales para enriquecer el desarrollo de este trabajo.

Agradezco a los compañeros del Laboratorio Virtual de Modelado de Materiales, por compartir su conocimiento y experiencias personales conmigo.

Tabla de contenido

	Página
Resumen en español	ii
Resumen en inglés	iii
Dedicatoria	iv
Agradecimientos	v
Lista de figuras	viii
Lista de tablas	x
 Capítulo 1. Introducción	
1.1. Antecedentes	3
1.2. Justificación	5
1.3. Hipótesis	6
1.4. Objetivos	6
1.4.1. Objetivo general	6
1.4.2. Objetivos específicos	6
 Capítulo 2. Marco teórico	
2.1. Ecuación de Schrödinger	7
2.2. Aproximación de Born-Oppenheimer	8
2.3. Principio Variacional y teoría de Hartree-Fock	9
2.4. Teoría del Funcional de la Densidad	11
2.4.1. Teoremas de Hohenberg-Kohn	13
2.4.2. Ecuaciones de Kohn-Sham	13
2.4.3. Ciclo de autoconsistencia	15
2.4.4. Pseudopotenciales y funcionales de intercambio-correlación	16
 Capítulo 3. Metodología	
3.1. Métodos computacionales	17
3.2. Diseño y optimización de los sistemas en bulto de α -Ta y Al_2O_3	17
3.3. Diseño de la superficies de α -Ta y Al_2O_3	18
3.4. Diseño de la interfase α -Ta/ Al_2O_3	18
 Capítulo 4. Resultados	
4.1. Estructuras en bulto de α -Ta y Al_2O_3	20
4.2. Superficies de α -Ta y Al_2O_3	21
4.3. Interfase de α -Ta y Al_2O_3	22
4.3.1. Análisis de estabilidad termodinámica	24
4.3.2. Estudio de la distribución de carga en la interfase	30
4.3.3. Densidad de estados	32

Capítulo 5. Conclusiones

Literatura citada	39
Anexos	43

Lista de figuras

Figura	Página
1. a) Estructura cristalina en bulto del α -Ta en su fase cúbica centrada en el cuerpo. b) Estructura en bulto del Al_2O_3 en su fase corindón. Ambas estructuras corresponden a las configuraciones optimizadas.	20
2. a) Superficies relajadas del α -Ta orientadas en las direcciones cristalográficas $[111]$ y $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$. b) Modelos superficiales relajados de Al_2O_3 $[0001]$: superficie completa (S_1) y superficie con vacancia de Al (S_{1-Va}).	21
3. Vista superior de las configuraciones iniciales consideradas para el crecimiento epitaxial del α -Ta sobre la superficie de Al_2O_3 . a) Crecimiento en top 1 (sistemas M_1 , M_{1-Va} , M_4 , M_{4-Va}), b) crecimiento en top 2 (sistemas M_2 , M_{2-Va} , M_5 , M_{5-Va}), c) crecimiento en top 3 (sistemas M_3 , M_{3-Va} , M_6 , M_{6-Va}).	22
4. a) Modelos de interfase iniciales diseñados para el crecimiento epitaxial de α -Ta(111) sobre Al_2O_3 , considerando tres posiciones de apilamiento sobre las superficies S_1 y S_{1-Va} . b) Estructuras resultantes tras la relajación estructural completa. Se observa que solamente el modelo M_2 cambia su posición inicial, tendiendo a la posición del sistema M_1	23
5. a) Modelos de interfase iniciales diseñados para el crecimiento epitaxial de α -Ta($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$) sobre Al_2O_3 , considerando tres posiciones de apilamiento sobre las superficies S_1 y S_{1-Va} . b) Estructuras resultantes tras la relajación estructural completa. Se observa que únicamente el modelo M_5 modifica su posición inicial, evolucionando hacia la configuración del modelo M_6	24
6. Representación tridimensional de la energía de formación de interfase ($\Delta_{\text{Ta}/\text{Al}_2\text{O}_3}^f$) para todos los modelos estudiados, incluyendo las interfases formadas sobre las superficies S_1 y S_{1-Va} , como función de las variaciones en los potenciales químicos del Ta y Al.	27
7. Energía de formación de interfase en función del potencial químico del Al. a) Estabilidad de los sistemas en condiciones ricas en Ta, b) condiciones pobres en Ta.	27
8. Energía de formación de interfase en función del potencial químico del Ta. a) Estabilidad de los sistemas en condiciones ricas en Al, b) condiciones pobres en Al.	28
9. Resultados de ELF en las interfases. a) Sistema $M_{5 6}$. b) Sistema M_{5-Va} . Las curvas representan interacciones Ta–O seleccionadas, mostrando variaciones en la localización electrónica según la distancia y la naturaleza química del entorno local.	31
10. Distribución de la diferencia de carga electrónica en la región de la interfase. a) Modelo $M_{5 6}$. b) Modelo M_{5-Va} . En ambas imágenes se presentan los modelos atómicos sin las regiones de carga, lo cual permite visualizar con mayor claridad los átomos involucrados en la redistribución de carga. Las regiones amarillas indican acumulación de carga, y las azules representan pérdida de carga.	32
11. Densidades de estados proyectadas de las superficies individuales. a) Superficie del α -Ta($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$). b) Superficie S_1 de Al_2O_3 . Las contribuciones de los orbitales s , p y d se representan en color azul, verde y rojo, respectivamente.	33

12. Densidades de estados electrónicas calculadas para la interfase $M_{5|6}$. a) Representación de la contribución orbital de los elementos presentes en la interfase. Las líneas azul, verde y roja corresponden a los orbitales s , p y d , respectivamente, mientras que la línea negra indica la densidad total de estados del sistema. b) Contribución total por parte del sistema: la línea morada representa la DOS del Al_2O_3 , la línea naranja corresponde al DOS del α -Ta. 34
13. Densidad de estados electrónica calculada para la superficie S_{1-Va} . a) Presenta la contribución de los orbitales s y p de la superficie, representados por las líneas de color azul y verde, respectivamente. La línea negra indica la densidad total de estados. b) Densidad de estados por capas, la curva morada corresponde a las tres primeras capas atómicas superficiales, mientras que la curva amarilla representa las capas restantes del sistema. . . 35
14. Densidad de estados electrónica de la interfase M_{5-Va} . a) Densidad de estados proyectada en los orbitales s , p y d del sistema, representados en color azul, verde y rojo, respectivamente. La línea negra indica la densidad total. b) Densidad de estados proyectada por contribución de materiales: la curva morada representa la contribución total del Al_2O_3 , la curva naranja corresponde al α -Ta, y la línea negra representa la densidad total. . . . 36
15. Comparación de las densidades de estados electrónicas del α -Ta en distintas condiciones estructurales. a) DOS total del α -Ta para los modelos $M_{5|6}$ (línea azul) y M_{5-Va} (línea roja), comparadas con la DOS de la superficie libre orientada en la dirección $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ (línea negra). b) DOS correspondiente a las tres capas inferiores del α -Ta en los mismos sistemas. 37

Lista de tablas

Tabla

Página

- | | | |
|----|---|----|
| 1. | Energía de formación de interfase bajo diferentes condiciones químicas de los 12 sistemas estudiados. | 26 |
|----|---|----|

Capítulo 1. Introducción

Desde el descubrimiento de la superconductividad en 1911 por Heike Kamerlingh Onnes en el mercurio, los superconductores han revolucionado nuestra comprensión de la materia y el electromagnetismo (Meijer, 1994). Un material superconductor es aquel que pierde su resistencia eléctrica cuando se enfría por debajo de una cierta temperatura crítica (T_c) y a su vez cumple con el efecto Meissner. Este efecto establece que en el estado superconductor, un material no permite que los campos magnéticos penetren en su interior, en lugar de ello, los campos magnéticos son expulsados del material, excepto en una delgada capa en la superficie del superconductor. Esto es conocido como diamagnetismo perfecto (Bardeen, 1955).

Otra propiedad característica de los superconductores es el campo crítico (H_c), un valor determinante para clasificar los superconductores como Tipo I o Tipo II (Strongin et al., 1964). Este campo representa el valor máximo de campo magnético que un superconductor puede soportar antes de perder su estado superconductor y volver a su estado conductor. El valor del H_c varía según el tipo de superconductor y de su temperatura. En los superconductores de Tipo I, el H_c es único y presenta valores bajos. En cambio, los superconductores de Tipo II presentan dos campos críticos distintos, al primero se denomina campo crítico inferior H_{c1} , este es el campo magnético por debajo del cual el material se comporta completamente como un superconductor. Al segundo se le denomina campo crítico superior H_{c2} , este representa el valor de campo magnético máximo en el cual el material pierde su estado superconductor, en esta transición del H_{c1} al H_{c2} , el material presenta vórtices de campo magnético y entra en un estado mixto. En este estado, el superconductor sigue siendo capaz de transportar corriente eléctrica sin resistencia, pero la presencia de los vórtices introduce una pequeña disipación de energía (Goodman, 1966).

Estos materiales son ampliamente utilizados en la fabricación de imanes potentes para la resonancia magnética y la investigación científica, en el transporte de energía eléctrica con eficiencia mejorada, y en sistemas de almacenamiento energético (Catterall, 1971). Además, posibilitan el transporte rápido mediante trenes de levitación magnética (Dong et al., 2019), contribuyen a la precisión en dispositivos superconductores de interferencia cuántica (SQUIDs, por sus siglas en inglés) (Clarke, 1989), los cuales son esenciales en el desarrollo de la computación cuántica, donde facilitan la creación de qubits superconductores. Diversos materiales presentan superconductividad, en este tipo se comprenden los elementos puros, las aleaciones y los compuestos cerámicos. Elementos como el Mercurio, Plomo, Aluminio, Estaño, entre otros, presentan superconductividad Tipo I. Además, elementos como el Niobio presentan superconductividad del Tipo II. Todos estos elementos operan a temperaturas muy bajas, generalmente por debajo de 10 K (Eisenstein, 1954). En contraste, los superconductores de alta temperatura crítica,

como el óxido de Itrio, Bario, Cobre (YBCO) y el óxido de Bismuto, Estroncio, Calcio, Cobre (BSCCO), muestran superconductividad por encima de los 30 K, alcanzando temperaturas críticas de hasta 110 K o más (Angurel et al., 1994). Además, los superconductores a base de hierro, descubiertos en 2006, como el FeSe (Sadovskii, 2016) y el FeAs (Izyumov & Kurmaev, 2008), son importantes por sus propiedades únicas y temperaturas críticas superiores a 50 K, expandiendo las posibilidades de aplicaciones tecnológicas y científicas de estos materiales extraordinarios. El mercado de superconductores de baja y alta temperatura crítica en 2023 cuenta con un valor de 2300 millones de dólares y se espera que en 2032 sea de 5500 millones de dólares. Se espera lograr aplicaciones en áreas médicas, fusión nuclear, electrónica, entre otras (Pulidindi & Ahuja, 2024).

La teoría que explica la superconductividad de baja temperatura crítica se formuló en 1957. La cual es conocida como BCS, que lleva el nombre de sus creadores: John Bardeen, Leon Cooper y John Robert Schrieffer. Esta teoría describe cómo los electrones en un superconductor de baja temperatura crítica forman los llamados pares de Cooper. Estos pares de electrones se comportan de manera diferente a los electrones individuales y son capaces de moverse a través de la red cristalina del material sin resistencia, lo que da lugar a la superconductividad (Bardeen et al., 1957). Actualmente, la superconductividad de alta temperatura sigue siendo uno de los temas más desafiantes y menos entendidos en la física de la materia condensada. A pesar de décadas de investigación intensiva, aún no existe una teoría completamente aceptada que explique por qué algunos materiales exhiben este comportamiento.

Entre los dispositivos que aprovechan las características electrónicas de los materiales superconductores, se encuentran los resonadores superconductores (RS), estos utilizan materiales superconductores para crear circuitos resonantes con propiedades únicas, permitiéndoles almacenar y transferir energía en forma de ondas electromagnéticas de manera extremadamente eficiente gracias a la ausencia de resistencia eléctrica, ya que permite que estas oscilaciones se propaguen con una mínima pérdida de energía, lo que se traduce en un factor de calidad (Q) excepcionalmente alto (Gao, 2008). Los RS son fundamentales debido a sus características electrónicas, las cuales podrían ser implementadas en la computación cuántica, comunicaciones, detección, entre otros (Goldie & Withington, 2012; Lee et al., 1995; Pechal et al., 2018; Frunzio et al., 2005).

El Ta es un metal de transición, el cual presenta una T_c superconductora de aproximadamente 4.2 K (Rairden & Neugebauer, 1964). Esta característica es crucial para reducir la complejidad y el costo de los sistemas de refrigeración necesarios para operar los resonadores. El α -Ta es la fase cristalina cúbica centrada en el cuerpo (BCC) del Ta y ha demostrado eficacia para reducir pérdidas dieléctricas, lo cual es esencial para aplicaciones donde se desea mitigar la pérdida de energía (Lozano et al., 2024). Esta fase

presenta una gran estabilidad a bajas temperaturas y altas presiones, asegurando un comportamiento predecible y confiable en dispositivos superconductores. Investigaciones reportadas como la de (Barends et al., 2007), demuestran que el Ta presenta un valor de Q similar al Niobio, un superconductor convencional con temperatura crítica de 9.2 K (Rairden & Neugebauer, 1964), lo cual hace que el Ta sea un excelente candidato para la fabricación de los RS. Sin embargo, crecer α -Ta sobre diversos sustratos presenta bastantes desafíos, ya que se desea conservar las propiedades superconductoras del material y cualquier cambio estructural o composicional puede ser clave en el comportamiento de los RS.

Por las razones antes mencionadas, estudiar los efectos de la oxidación en RS basados en α -Ta es fundamental para asegurar su rendimiento óptimo. La formación de una capa de óxido dieléctrico sobre su superficie puede alterar las propiedades electromagnéticas del dispositivo, provocando pérdidas de señal, disminución del factor Q y desplazamiento de la frecuencia de resonancia, como lo reporta (Lozano et al., 2024). En este contexto, comprender la interacción entre la superficie del α -Ta y sustratos basados en óxidos resulta clave para identificar posibles cambios estructurales y electrónicos inducidos durante el crecimiento epitaxial. Hasta donde se tiene conocimiento, existe poca información al respecto, lo cual limita la capacidad de predecir el impacto de la oxidación en las propiedades del sistema. Este problema se aborda mediante cálculos de primeros principios, basados en la mecánica cuántica, sin la necesidad de parámetros ajustables. Métodos como la Teoría del Funcional de la Densidad (DFT) permiten explorar con precisión la estabilidad, estructura y propiedades electrónicas del α -Ta oxidado sobre un sustrato. A través de este enfoque, se espera obtener una comprensión detallada de cómo la oxidación influye en el comportamiento del material, lo que permitirá optimizar el diseño y desempeño de dispositivos superconductores, con potencial aplicación en tecnologías emergentes como la computación cuántica. En el siguiente apartado se presentan antecedentes relevantes que permiten contextualizar el estudio, destacando avances previos en superconductividad, comportamientos en la interfase y efectos de oxidación en materiales utilizados en dispositivos cuánticos.

1.1. Antecedentes

Diversos materiales han sido ampliamente estudiados por sus propiedades superconductoras, entre ellos el mercurio, plomo y niobio, con T_c de 4.2 K, 7.2 K y 9.2 K, respectivamente (Yao & Ma, 2021). Estos materiales han sido utilizados en tecnologías como resonancia magnética y aceleradores de partículas, debido a su capacidad para generar campos magnéticos intensos y conducir electricidad sin pérdidas.

Como destaca (Wilson, 1981), la eliminación de pérdidas óhmicas y la alta densidad de corriente que permiten los superconductores ha sido clave para reducir el tamaño y peso de los imanes en aplicaciones tecnológicas. Estos resultados refuerzan la motivación por explorar nuevos materiales superconductores que satisfagan las crecientes demandas tecnológicas.

Entre estos materiales, el Ta ha recibido atención por sus propiedades estructurales y electrónicas. Estudios como el de (Rairden & Neugebauer, 1964) han demostrado que las películas delgadas de Ta pueden alcanzar una T_c superior a 4.2 K, próxima al valor en bulto, y que dicha T_c puede ser controlada mediante las condiciones de deposición y la pureza del material. El Ta puede cristalizar en dos fases principales: la fase metastable β -Ta, con estructura tetragonal, alta resistividad (150–200 $\mu\Omega\cdot\text{cm}$), alta dureza y baja estabilidad térmica; y la fase estable α -Ta, con estructura cúbica centrada en el cuerpo, baja resistividad (15–80 $\mu\Omega\cdot\text{cm}$) y buena ductilidad (Myers et al., 2013). Estas características hacen que el α -Ta sea preferido para aplicaciones electrónicas. Además, (Duff et al., 1979) reportaron que capacitores fabricados con α -Ta mostraron una excelente estabilidad térmica y un bajo factor de disipación, superando a los dispositivos construidos con β -Ta.

Gracias a estas ventajas, la fase α -Ta ha sido empleada en dispositivos electrónicos. Por ejemplo, (Shi et al., 2022) depositaron películas de α -Ta sobre sustratos de zafiro y silicio, fabricando resonadores de microondas que alcanzaron factores Q de hasta $6 \cdot 10^6$ a temperaturas del orden de milikelvin. Asimismo, (Barends et al., 2007) compararon resonadores de α -Ta y Nb, encontrando factores de calidad comparables y comportamientos de ruido de fase similares, lo que posiciona al Ta como una alternativa viable al Nb. (Wang et al., 2022) fueron más allá, fabricando qubits a partir de películas de α -Ta con una estructura cristalina altamente ordenada, logrando tiempos de coherencia de hasta 503 μs , superando significativamente a dispositivos basados en Nb.

En paralelo, los estudios computacionales han demostrado ser herramientas efectivas para investigar superficies e interfases a nivel atómico. Por ejemplo, (Qian et al., 1988a) y (Guerrero-Sánchez & Takeuchi, 2016) utilizaron DFT para analizar superficies de GaAs y heteroestructuras MnGa/Mn₄N, identificando configuraciones energéticamente estables y relaciones entre la estabilidad estructural y la química superficial. Aunque estos trabajos no se enfocan directamente en Ta, demuestran la capacidad de DFT para predecir propiedades relevantes en materiales funcionales complejos. En lo que respecta específicamente al Ta, (Mun et al., 2024) combinaron técnicas experimentales y simulaciones *ab initio* para estudiar la oxidación de películas delgadas de Ta. Sus resultados muestran que la superficie del Ta se oxida fácilmente formando capas amorfas de Ta₂O₅, lo que degrada las propiedades electrónicas y disminuye el desempeño de qubits superconductores.

Por su parte, (Zier et al., 2004) estudiaron sistemas Ta/Si y Ta/SiO₂, observando que en la interfase se forman compuestos como TaSi₂ y óxidos de Ta (TaO_x), los cuales alteran significativamente la conductividad eléctrica y la estabilidad térmica del sistema. Finalmente, (Crowley et al., 2023) analizaron pérdidas en resonadores de Ta asociadas a la oxidación superficial. Aunque ciertos óxidos pueden reducir pérdidas dieléctricas, la presencia de Ta₂O₅ genera mecanismos adicionales de disipación energética, afectando la coherencia de qubits y reduciendo la eficiencia de dispositivos superconductores. Estos trabajos subrayan la necesidad crítica de comprender la oxidación del Ta para garantizar el rendimiento óptimo en aplicaciones cuánticas avanzadas.

Por su parte, (Anbalagan et al., 2025) investigaron películas superconductoras de Ta depositadas sobre zafiro, mediante análisis estructurales y cálculos de primeros principios identificaron una capa de intermezcla con un espesor aproximado de 0.65 nm compuesta por átomos de Al, O y Ta, formada en la región de la interfase. Este estudio computacional permitió analizar distintas terminaciones superficiales del zafiro y predecir cómo estas afectan la estabilidad y estructura electrónica local de la interfase. Los resultados mostraron que las terminaciones atómicas superficiales influyen directamente en la formación de la capa de mezcla y en la redistribución de carga, destacando la utilidad de los cálculos de primeros principios para entender fenómenos en la interfase que impactan el rendimiento de dispositivos superconductores.

1.2. Justificación

El desarrollo de dispositivos cuánticos que emplean resonadores superconductores exigen materiales con mínima disipación de energía y alta estabilidad estructural. En este contexto, el α -Ta ha demostrado ser un candidato prometedor por su comportamiento superconductor estable, su resistencia a la difusión de O y su compatibilidad con aplicaciones electrónicas. Sin embargo, durante la etapa de crecimiento sobre sustratos dieléctricos como el Al₂O₃, es común la formación de capas de óxido en la interfase, lo que puede modificar sustancialmente la estructura electrónica y comprometer el desempeño del resonador, afectando directamente parámetros críticos como el factor de calidad. Esta problemática evidencia la necesidad de comprender, a nivel atómico, cómo se modifica el material bajo condiciones de oxidación en la interfase. Ante la falta de información que permita comprender los efectos de la oxidación en la interfase α -Ta/Al₂O₃, esta tesis propone un enfoque computacional empleando DFT para estudiar la estabilidad termodinámica y las propiedades electrónicas del sistema. A través de cálculos de energía

de formación de interfase, densidad de estados (DOS) y análisis de localización electrónica, se busca identificar configuraciones estructurales favorables para el crecimiento epitaxial, así como evaluar el impacto de vacancias superficiales y condiciones químicas variables como ambientes ricos o pobres en Ta y Al en la estabilidad del sistema. Este estudio ofrece información clave para el diseño de interfases, contribuyendo al desarrollo de resonadores para aplicaciones tecnológicas cuánticas.

1.3. Hipótesis

La formación de óxido de tantalio en la interfase α -tantalio/óxido induce una modificación en la densidad de estados electrónicos, que afecta el desempeño de los resonadores superconductores.

1.4. Objetivos

1.4.1. Objetivo general

Determinar mediante cálculos de primeros principios cómo la formación de óxido de tantalio en la interfase α -tantalio/óxido afecta la densidad de estados electrónicos.

1.4.2. Objetivos específicos

- Diseñar los modelos de superficie del α -Ta, del sustrato basado en óxidos y construir la interfase α -tantalio/óxido.
- Realizar un análisis termodinámico para determinar la estabilidad de los sistemas.
- Determinar como se presenta la oxidación del tantalio en la interfase.
- Calcular la densidad de estados electrónicos de los sistemas.

Capítulo 2. Marco teórico

En este capítulo se presentan los fundamentos teóricos esenciales de la mecánica cuántica y de DFT, los cuales sustentan el enfoque computacional empleado en esta investigación para el estudio de las propiedades electrónicas y estructurales de la interfase α -Ta/Al₂O₃. La descripción de estos conceptos se basa en fuentes especializadas de la literatura para cálculos computacionales de primeros principios, como lo es el libro publicado por (Koch & Holthausen, 2015).

2.1. Ecuación de Schrödinger

El estudio de cualquier sistema electrónico desde una perspectiva cuántica inicia con la solución de la ecuación de Schrödinger, la cual en su forma general independiente del tiempo puede escribirse como:

$$\hat{H}\Psi_i(\vec{x}_1, \vec{x}_2, \dots, \vec{x}_N, \vec{R}_1, \vec{R}_2, \dots, \vec{R}_M) = E_i\Psi_i(\vec{x}_1, \vec{x}_2, \dots, \vec{x}_N, \vec{R}_1, \vec{R}_2, \dots, \vec{R}_M), \quad (1)$$

donde $\hat{H}$ es el operador Hamiltoniano del sistema, Ψ_i es la función de onda que describe completamente el estado cuántico del sistema, y E_i es la energía asociada a dicho estado. Las variables $\vec{r}_i$ representan las coordenadas espaciales de los N electrones, mientras que $\vec{R}_A$ corresponden a las posiciones nucleares de los M núcleos atómicos involucrados en el sistema estudiado. El operador Hamiltoniano completo que describe un sistema molecular o sólido puede expresarse como:

$$\hat{H} = -\frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \nabla_i^2 - \frac{1}{2} \sum_{A=1}^M \frac{1}{M_A} \nabla_A^2 - \sum_{i=1}^N \sum_{A=1}^M \frac{Z_A}{r_{iA}} + \sum_{i=1}^N \sum_{j>i}^N \frac{1}{r_{ij}} + \sum_{A=1}^M \sum_{B>A}^M \frac{Z_A Z_B}{R_{AB}}. \quad (2)$$

En esta ecuación, el primer término representa la energía cinética de los electrones, el segundo término la energía cinética de los núcleos, el tercer término la interacción atractiva núcleo-electrón, mientras que los últimos dos términos describen las interacciones repulsivas electrón-electrón y núcleo-núcleo respectivamente. Aquí, Z_A y Z_B son las cargas de los núcleos involucrados, mientras que r_{ij} , r_{iA} y R_{AB} corresponden a las distancias electrón-electrón, electrón-núcleo y núcleo-núcleo, respectivamente. Finalmente, el operador Laplaciano general (∇_q^2), que aparece en las expresiones para la energía cinética, se define explícitamente como:

$$\nabla_{\mathbf{q}}^2 = \frac{\partial^2}{\partial x_q^2} + \frac{\partial^2}{\partial y_q^2} + \frac{\partial^2}{\partial z_q^2}. \quad (3)$$

Este operador permite evaluar cómo varía la función de onda en el espacio, siendo esencial para la determinación de las propiedades energéticas y estructurales del sistema estudiado mediante la ecuación de

Schrödinger. Sin embargo, debido a la complejidad computacional de resolver exactamente la ecuación de Schrödinger para sistemas con múltiples partículas, es necesario introducir aproximaciones que permitan simplificar el problema. Una de las más fundamentales es la aproximación de Born–Oppenheimer, descrita a continuación.

2.2. Aproximación de Born-Oppenheimer

La solución exacta de la ecuación de Schrödinger (1) resulta computacionalmente compleja debido al gran número de partículas involucradas en sistemas reales. Para simplificar este problema, se recurre a la aproximación de Born-Oppenheimer (BO), la cual separa los movimientos electrónicos y nucleares aprovechando la gran diferencia de masa entre electrones y núcleos. Dentro de esta aproximación, el Hamiltoniano electrónico, $\hat{H}_{\text{elec}}$, se define considerando fijas las posiciones nucleares:

$$\hat{H}_{\text{elec}} = -\frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \nabla_i^2 - \sum_{i=1}^N \sum_{A=1}^M \frac{Z_A}{r_{iA}} + \sum_{i=1}^N \sum_{j>i}^N \frac{1}{r_{ij}} = \hat{T} + \hat{V}_{\text{Ne}} + \hat{V}_{\text{ee}}, \quad (4)$$

donde $\hat{T}$ representa la energía cinética electrónica, $\hat{V}_{\text{Ne}}$ es el potencial debido a la interacción núcleo-electrón, y $\hat{V}_{\text{ee}}$ la interacción electrón-electrón. Asimismo, la energía nuclear E_{nuc} se expresa de manera independiente, como:

$$E_{\text{nuc}} = \sum_{A=1}^M \sum_{B>A}^M \frac{Z_A Z_B}{r_{AB}}. \quad (5)$$

Bajo la aproximación de BO, la ecuación electrónica se escribe como:

$$\hat{H}_{\text{elec}} \Psi_{\text{elec}} = E_{\text{elec}} \Psi_{\text{elec}}, \quad (6)$$

donde la función de onda electrónica Ψ_{elec} proporciona la distribución de probabilidad electrónica a través del cuadrado de su valor absoluto:

$$|\Psi(\vec{x}_1, \vec{x}_2, \dots, \vec{x}_N)|^2. \quad (7)$$

Dado que los electrones son partículas indistinguibles y fermiones, la función de onda electrónica debe satisfacer el principio de antisimetría:

$$\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_i, \dots, \vec{r}_j, \dots, \vec{r}_N) = -\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_j, \dots, \vec{r}_i, \dots, \vec{r}_N) \quad (8)$$

Esta propiedad implica que la función de onda cambia de signo al intercambiar dos electrones cualesquiera, reflejando la naturaleza fermiónica de los electrones. Esta aproximación permite simplificar enormemente el tratamiento computacional de sistemas moleculares y sólidos, facilitando el estudio de sus propiedades electrónicas y estructurales mediante cálculos numéricos. Esta simplificación establece las bases para abordar el problema electrónico, pero debido a su complejidad, se requieren estrategias aproximadas. Una de las más efectivas es el principio variacional, que se describe a continuación.

2.3. Principio Variacional y teoría de Hartree-Fock

El principio variacional es una herramienta fundamental para encontrar soluciones aproximadas a la ecuación de Schrödinger, especialmente en sistemas complejos donde no existe una solución analítica exacta. Este principio establece que el valor esperado de cualquier operador observable $\hat{O}$ para una función de onda prueba normalizada Ψ_{trial} se define como:

$$\langle \hat{O} \rangle = \int \cdots \int \Psi_{\text{trial}}^* \hat{O} \Psi_{\text{trial}} d\vec{x}_1 d\vec{x}_2 \cdots d\vec{x}_N \equiv \langle \Psi_{\text{trial}} | \hat{O} | \Psi_{\text{trial}} \rangle. \quad (9)$$

En particular, cuando se aplica al operador Hamiltoniano, el principio variacional afirma que la energía calculada con una función de onda prueba será siempre mayor o igual a la energía del estado fundamental exacto:

$$\langle \Psi_{\text{trial}} | \hat{H} | \Psi_{\text{trial}} \rangle = E_{\text{trial}} \geq E_0 = \langle \Psi_0 | \hat{H} | \Psi_0 \rangle. \quad (10)$$

En el contexto del principio variacional aplicado a sistemas electrónicos, el concepto matemático de funcional es fundamental. A diferencia de una función tradicional, que relaciona un valor numérico con otro, un funcional establece una relación entre una función completa y un número real. En términos simples, un funcional es una operación matemática que toma como entrada una función y genera un valor numérico específico como resultado. Este concepto es clave, ya que permite definir cómo la energía del estado fundamental depende de la forma específica de la función de onda electrónica utilizada. Mediante la aplicación del principio variacional, la energía del estado fundamental del sistema, E_0 , puede definirse como la energía mínima obtenida al evaluar todas las funciones de onda electrónicas permitidas:

$$E_0 = \min_{\Psi \rightarrow N} E[\Psi] = \min_{\Psi \rightarrow N} \langle \Psi | \hat{T} + \hat{V}_{\text{Ne}} + \hat{V}_{\text{ee}} | \Psi \rangle. \quad (11)$$

Aquí, $\Psi \rightarrow N$ indica que Ψ es una función de onda antisimétrica que describe un sistema de N electrones. Aunque en la práctica no es posible explorar el espacio completo de funciones de onda elegibles, se puede restringir la búsqueda a subconjuntos definidos algebraicamente. Un ejemplo común es la aproximación de Hartree-Fock (HF), donde se considera únicamente el conjunto de determinantes de Slater contruidos a partir de orbitales de espín. Una vez conocidos el número de electrones N y el potencial externo V_{ext} , definido completamente por $\vec{R}_A$ y Z_A , se puede construir el Hamiltoniano del sistema, obtener la función de onda del estado fundamental Ψ_0 y, en consecuencia, determinar la energía del sistema:

$$E_0 = E[N, V_{\text{ext}}]. \quad (12)$$

Esto resume el hecho de que la energía del estado fundamental es un funcional del número de electrones y del potencial externo, y por tanto, todas las propiedades del sistema pueden, en principio, derivarse a partir de esta dependencia. A partir de este principio, se han desarrollado diferentes métodos aproximados para obtener la función de onda del estado fundamental. Uno de los enfoques más representativos y ampliamente utilizados es la teoría de HF, la cual proporciona una forma sistemática de aplicar el principio variacional a sistemas de muchos electrones.

La teoría de HF es un método aproximado de la mecánica cuántica que describe el estado fundamental de sistemas de muchos electrones mediante una función de onda antisimétrica construida como un determinante de Slater, incorporando así el principio de exclusión de Pauli. Basada en una aproximación de campo medio, HF asume que cada electrón se mueve en el potencial promedio generado por los demás, sin considerar explícitamente la correlación electrónica. La energía total se expresa como un funcional que incluye la energía cinética, el potencial externo, y términos de Coulomb e intercambio, estos últimos derivados del requisito de antisimetría.

La minimización del funcional bajo condiciones de ortonormalidad conduce a las ecuaciones de HF, un conjunto de ecuaciones acopladas de una sola partícula:

$$\hat{F}\psi_i = \varepsilon_i\psi_i, \quad (13)$$

donde $\hat{F}$ es el operador de Fock, que incluye el operador de una sola partícula $\hat{h}$ y términos de interacción electrónica promedio:

$$\hat{F} = \hat{h} + \sum_{j=1}^N (\hat{J}_j - \hat{K}_j). \quad (14)$$

El operador $\hat{h}$ corresponde al operador de Hamiltoniano de una sola partícula, que contiene la energía cinética del electrón y su interacción con el potencial externo. El operador de Coulomb $\hat{J}_j$ representa la repulsión promedio entre el electrón i y el electrón j , mientras que el operador de intercambio $\hat{K}_j$ tiene origen puramente cuántico, derivado de la antisimetría del determinante de Slater, y describe los efectos del principio de exclusión de Pauli.

Estas ecuaciones se resuelven mediante un procedimiento autoconsistente, sigue presentando limitaciones importantes, como la omisión de la correlación electrónica dinámica, lo que lleva a una sobreestimación de las energías totales. No obstante, su formulación variacional rigurosa y su estructura conceptual sentaron las bases para el desarrollo de métodos más avanzados, entre ellos DFT, que se describe a continuación.

2.4. Teoría del Funcional de la Densidad

La Teoría del Funcional de la Densidad es una metodología ampliamente empleada para estudiar propiedades electrónicas de sistemas moleculares y sólidos mediante cálculos computacionales. La idea central de la DFT es que todas las propiedades del sistema electrónico están determinadas únicamente por su densidad electrónica $\rho(\vec{r})$, definida formalmente como:

$$\rho(\vec{r}) = N \int \cdots \int |\Psi(\vec{x}_1, \vec{x}_2, \dots, \vec{x}_N)|^2 dx_1 d\vec{x}_2 \cdots d\vec{x}_N. \quad (15)$$

Donde esta densidad electrónica cumple ciertas condiciones físicas fundamentales:

- Debe tender a cero cuando la distancia respecto al sistema aumenta:

$$\rho(\vec{r} \rightarrow \infty) = 0 \quad (16)$$

- La integración sobre todo el espacio debe igualar al número total de electrones N :

$$\int \rho(\vec{r}) d\vec{r}_1 = N \quad (17)$$

- En cercanías a cualquier núcleo atómico, la densidad electrónica presenta una singularidad matemática debido a la interacción núcleo-electrón ($V_{Ne}(r_{iA}) = -\frac{Z_A}{r_{iA}}$), la cual se vuelve infinita cuando la distancia electrón-núcleo (r_{iA}) tiende a cero. Esta singularidad se manifiesta en la condición de cúspide nuclear, también conocida como condición de Kato (Kato, 1957; March, 1986), la cual establece que el gradiente radial de la densidad electrónica esférica promedio ($\bar{\rho}(\vec{r})$) alrededor de un núcleo debe cumplir la siguiente condición:

$$\lim_{r_{iA} \rightarrow 0} \left[\frac{\partial}{\partial r} + 2Z_A \right] \bar{\rho}(\vec{r}) = 0 \quad (18)$$

Estas condiciones son esenciales para asegurar que la densidad electrónica sea físicamente consistente y permita obtener propiedades estructurales, electrónicas y energéticas con alta confiabilidad mediante métodos computacionales basados en DFT.

Una de las ventajas más significativas de utilizar la densidad como variable fundamental es que, a diferencia de la función de onda Ψ , que depende de $4N$ variables (tres coordenadas espaciales y una de espín por cada electrón), la densidad electrónica $\rho(\vec{r})$, incluso al incorporar la polarización de espín mediante funciones separadas $\rho_{\uparrow}(\vec{r})$ y $\rho_{\downarrow}(\vec{r})$, sigue dependiendo únicamente de 3 coordenadas espaciales. Esta reducción en la dimensionalidad permite simplificar drásticamente el tratamiento computacional del sistema, sin perder la capacidad de describir sus propiedades electrónicas fundamentales. Además, como se ha discutido previamente, si se conoce la densidad electrónica $\rho(\vec{r})$, se puede determinar el número total de electrones N , la posición de los núcleos $\vec{R}_A$ (dado que la densidad presenta cúspides precisamente en esas ubicaciones) y la carga nuclear Z_A a través de la condición de cúspide. Por lo visto anteriormente en la ecuación (12), conociendo estas tres cantidades, podemos construir el Hamiltoniano del sistema y conocer la energía del estado fundamental. Por lo tanto, la densidad electrónica contiene toda la información necesaria para describir el estado fundamental de un sistema, ya que permite derivar todas las propiedades observables del sistema a partir de una variable accesible, bien definida y dependiente únicamente del espacio tridimensional físico.

Hasta este punto se ha argumentado que la densidad electrónica constituye una variable fundamental capaz de describir por completo el estado fundamental de un sistema electrónico. Sin embargo, para que esta elección esté formalmente justificada, es necesario demostrar que la densidad electrónica contiene toda la información necesaria para determinar de manera única el estado fundamental del sistema, así como su energía asociada. Por esta razón en las siguientes subsecciones se presentan los teoremas fundamentales que constituyen la base formal de DFT.

2.4.1. Teoremas de Hohenberg-Kohn

La base teórica de DFT está establecida por dos teoremas fundamentales propuestos por Pierre Hohenberg y Walter Kohn en 1964 (Hohenberg & Kohn, 1964), los cuales definen el marco conceptual para describir sistemas de muchos electrones en términos de su densidad electrónica $\rho(\vec{r})$.

- **Primer Teorema de Hohenberg-Kohn:** Este teorema afirma que existe una correspondencia uno a uno entre la densidad electrónica del estado fundamental $\rho_0(\vec{r})$ y el potencial externo $V_{\text{ext}}(\vec{r})$ que actúa sobre el sistema. En otras palabras, la densidad determina de manera única al Hamiltoniano, y con ello, la función de onda y todas las propiedades observables del sistema. Esto implica que toda la física del sistema está contenida en $\rho_0(\vec{r})$, eliminando la necesidad de conocer Ψ explícitamente.
- **Segundo Teorema de Hohenberg-Kohn:** Este teorema define un funcional de energía $E[\rho]$ tal que, para cualquier densidad electrónica $\tilde{\rho}(\vec{r})$ asociada a un estado permitido, la energía total cumple la desigualdad:

$$E_0 \leq E[\tilde{\rho}] = T[\tilde{\rho}] + E_{\text{Ne}}[\tilde{\rho}] + E_{\text{ee}}[\tilde{\rho}], \quad (19)$$

donde $T[\tilde{\rho}]$ es la energía cinética, $E_{\text{Ne}}[\tilde{\rho}]$ la energía de interacción núcleo-electrón, y $E_{\text{ee}}[\tilde{\rho}]$ la energía de interacción electrón-electrón. La energía del estado fundamental se obtiene al minimizar este funcional con respecto a $\rho(\vec{r})$.

Estos teoremas fundamentan el enfoque de la DFT al garantizar que, en lugar de resolver la ecuación de Schrödinger para muchos cuerpos, es suficiente encontrar la densidad electrónica que minimiza el funcional de energía. Si bien los teoremas de Hohenberg-Kohn establecen la base formal de la DFT, no proporcionan un método práctico para determinar la densidad electrónica que minimiza el funcional de energía. Para superar esta limitación, Kohn y Sham propusieron un enfoque computacionalmente viable que permite obtener la densidad electrónica exacta mediante un sistema auxiliar de electrones no interactuantes, que se presenta a continuación.

2.4.2. Ecuaciones de Kohn-Sham

El enfoque de Kohn-Sham (KS), propuesto en 1965, ofrece una estrategia práctica para implementar la DFT, superando el desafío de no conocer la forma explícita del funcional de energía cinética $T[\rho]$ de un

sistema real de muchos electrones. La propuesta de KS consiste en reemplazar el sistema interactuante original por un sistema ficticio de electrones no interactuantes que reproduce exactamente la misma densidad electrónica $\rho(\vec{r})$ del sistema real.

Este planteamiento, conocido como el KS ansatz, permite transformar el complejo problema cuántico de muchos cuerpos en uno equivalente, pero mucho más manejable: un conjunto de partículas no interactuantes que obedecen ecuaciones de una sola partícula. Aunque el sistema auxiliar no representa físicamente las verdaderas interacciones electrón-electrón, se construye de tal manera que su densidad coincide exactamente con la del sistema real. A cambio, todos los efectos de la interacción se incorporan en un término adicional del potencial efectivo: el funcional de intercambio y correlación $E_{xc}[\rho]$, cuya forma exacta permanece desconocida y debe ser aproximada.

En este esquema, se introduce un conjunto de orbitales monoelectrónicos $\{\psi_i(\vec{r})\}$, denominados orbitales de Kohn-Koch y Holthausen-Sham, a partir de los cuales se construye la densidad electrónica total como:

$$\rho(\vec{r}) = \sum_{i=1}^N |\psi_i(\vec{r})|^2, \quad (20)$$

donde N es el número total de electrones del sistema. Los orbitales $\psi_i(\vec{r})$ se obtienen resolviendo las ecuaciones de KS:

$$\left[-\frac{1}{2}\nabla^2 + V_{\text{ext}}(\vec{r}) + V_{\text{H}}(\vec{r}) + V_{\text{xc}}(\vec{r}) \right] \psi_i(\vec{r}) = \varepsilon_i \psi_i(\vec{r}), \quad (21)$$

donde:

- $V_{\text{ext}}(\vec{r})$: potencial externo.
- $V_{\text{H}}(\vec{r}) = \int \frac{\rho(\vec{r}')}{|\vec{r}-\vec{r}'|} d\vec{r}'$: potencial de Hartree, que representa la interacción electrostática clásica electrón-electrón.
- $V_{\text{xc}}(\vec{r})$: potencial de correlación e intercambio, que contiene los efectos cuánticos más complejos.

Las energías ε_i no tienen un significado físico directo para todos los niveles, pero el orbital de más alta energía ocupado se aproxima bien al nivel de Fermi. Este formalismo permite calcular con alta precisión propiedades electrónicas del sistema sin necesidad de conocer la función de onda Ψ , utilizando únicamente la densidad $\rho(\vec{r})$ como variable fundamental.

2.4.3. Ciclo de autoconsistencia

El ciclo de autoconsistencia (SCF, por sus siglas en inglés) es el procedimiento iterativo mediante el cual se resuelven las ecuaciones de KS hasta alcanzar una solución convergente para la densidad electrónica $\rho(\vec{r})$. Este proceso es necesario porque los potenciales $V_H(\vec{r})$ y $V_{xc}(\vec{r})$ dependen explícitamente de la densidad, la cual, a su vez, se obtiene a partir de los orbitales $\psi_i(\vec{r})$ resultantes de resolver las ecuaciones de KS.

El procedimiento consiste en los siguientes pasos:

1. Se propone una densidad electrónica inicial $\rho^{(0)}(\vec{r})$, usualmente obtenida como una superposición de densidades atómicas de los elementos presentes en el sistema.
2. Con esta densidad, se calcula el potencial efectivo:

$$V_{\text{eff}}(\vec{r}) = V_{\text{ext}}(\vec{r}) + V_H[\rho^{(n)}](\vec{r}) + V_{xc}[\rho^{(n)}](\vec{r}). \quad (22)$$

3. Se resuelven las ecuaciones de KS con $V_{\text{eff}}(\vec{r})$ para obtener los orbitales $\psi_i^{(n)}(\vec{r})$.
4. A partir de estos orbitales, se construye una nueva densidad:

$$\rho^{(n+1)}(\vec{r}) = \sum_{i=1}^N |\psi_i^{(n)}(\vec{r})|^2. \quad (23)$$

5. Se verifica la convergencia de la densidad: si $\rho^{(n+1)}(\vec{r}) \approx \rho^{(n)}(\vec{r})$ (dentro de una tolerancia establecida), se considera que el sistema ha alcanzado la autoconsistencia. De lo contrario, se actualiza la densidad y se repite el ciclo.

Este ciclo garantiza que la solución final sea internamente coherente: los potenciales utilizados para resolver las ecuaciones de KS se corresponden con la densidad generada por los orbitales obtenidos en esa misma iteración.

2.4.4. Pseudopotenciales y funcionales de intercambio-correlación

Los pseudopotenciales permiten simplificar el problema cuántico al eliminar la necesidad de describir explícitamente los electrones fuertemente ligados al núcleo, los cuales presentan funciones de onda altamente oscilatorias y requieren una base numéricamente costosa para su representación. En lugar de tratar todos los electrones, se reemplaza el potencial coulombiano nuclear más los efectos de los electrones de núcleo por un potencial efectivo que reproduce fielmente la interacción entre los electrones de valencia y el núcleo. Este potencial suave es el *pseudopotencial*.

Entre las metodologías modernas más utilizadas se encuentra el método de ondas aumentadas mediante proyectores (*Projector Augmented-Wave*, PAW) (Kresse, 1999). Este enfoque combina la eficiencia de los pseudopotenciales con la exactitud de métodos *all-electron*, permitiendo reconstruir la densidad electrónica completa mediante una transformación lineal entre los estados pseudo y los estados reales. El método PAW conserva la información cuántica relevante sin necesidad de representar las singularidades cerca del núcleo, siendo particularmente eficaz para materiales con elementos pesados o propiedades electrónicas sensibles.

Por otro lado, para describir las interacciones de intercambio y correlación entre electrones, es necesario especificar un funcional $E_{xc}[\rho]$. En este trabajo se empleó el funcional de Perdew, Burke y Ernzerhof (PBE) (Perdew et al., 1996), basado en la aproximación de gradiente generalizado (GGA). A diferencia de la aproximación local (LDA), la cual supone que la densidad electrónica es localmente uniforme, la aproximación GGA incorpora el gradiente espacial de la densidad, mejorando la descripción de sistemas con enlaces heterogéneos y superficies. El funcional PBE es ampliamente reconocido por su buen equilibrio entre precisión y robustez numérica en simulaciones de sólidos y superficies.

La correcta selección tanto del pseudopotencial como del funcional E_{xc} es fundamental para garantizar una buena descripción de los sistemas y tener estabilidad de los cálculos computacionales en el estudio de propiedades electrónicas y estructurales de materiales.

Hasta este punto se han presentado las teorías que respaldan esta tesis. A continuación se presenta la metodología empleada.

Capítulo 3. Metodología

En este apartado se describe la metodología empleada en esta tesis. En primer lugar, se detallan los métodos computacionales implementados y, posteriormente, se explica el proceso llevado a cabo para el diseño y estudio de la interfase α -Ta/Al₂O₃.

3.1. Métodos computacionales

Los cálculos de primeros principios de este trabajo fueron realizados con DFT. Las interacciones electrón-electrón se trataron mediante el método de PAW (Kresse, 1999), integrado en el paquete de simulación ab initio de Viena (VASP) (Kresse & Furthmüller, 1996). La energía de intercambio correlación de los electrones se describió con el funcional Perdew-Burke-Ernzerhof (PBE) (Perdew et al., 1996). Para alcanzar la optimización de la geometría, se requería que las diferencias de energía y los componentes de fuerza fueran inferiores a 1.0×10^{-4} eV y 0.01 eV/Å, respectivamente. La visualización de las estructuras se realizó en el software Visualization for Electronics and Structural Analysis (VESTA) (Momma, 2011) y fue utilizada la herramienta VASPKIT (Wang et al., 2021), como apoyo para la extracción de los resultados de los archivos obtenidos al finalizar la simulación. Todos los cálculos de la tesis fueron realizados en la supercomputadora Miztli de la UNAM, la cual es una supercomputadora tipo clúster, que integra un conjunto de computadoras capaces de trabajar al mismo tiempo y de forma coordinada, que está conformada por un total de 430 nodos con procesadores Intel Xeon E5, que suman 8040 cores.

3.2. Diseño y optimización de los sistemas en bulto de α -Ta y Al₂O₃

Inicialmente, se emplearon las estructuras cristalinas en bulto de α -Ta y Al₂O₃, obtenidas de la base de datos Materials Project (Jain et al., 2013). La celda unitaria del α -Ta utilizada contiene 2 átomos de Ta, mientras que la del Al₂O₃ incluye 12 átomos de Al y 18 átomos de O, sumando un total de 30 átomos. Se realizaron cálculos preliminares para determinar los valores óptimos de energía de corte (encut) y del mallado de puntos- k centrado en el punto de alta simetría Γ . Para el sistema α -Ta, se establecieron valores óptimos de 400 eV para la energía de corte y una malla $11 \times 11 \times 11$ de puntos- k para Al₂O₃, los valores fueron de 360 eV y una malla $7 \times 7 \times 3$, respectivamente. La optimización de los parámetros encut y del mallado de puntos- k es fundamental para garantizar la convergencia y la precisión

de los cálculos de primeros principios. Un valor adecuado de encut asegura una base de ondas planas suficientemente completa para describir de forma adecuada las funciones de onda y la energía total del sistema. Por otro lado, una malla de puntos- k suficientemente densa permite muestrear correctamente la zona de Brillouin, lo cual es esencial para obtener propiedades electrónicas precisas y evitar errores sistemáticos en el cálculo de energías, fuerzas y densidades de estados. Posteriormente, se llevó a cabo la optimización estructural de ambos sistemas, obteniéndose los parámetros de red. Estos resultados proporcionaron las bases estructurales necesarias para el diseño de las superficies y de las interfases que serían analizadas en etapas posteriores del estudio.

3.3. Diseño de la superficies de $\alpha\text{-Ta}$ y Al_2O_3

Para llevar a cabo un crecimiento epitaxial de $\alpha\text{-Ta}$ sobre Al_2O_3 , se determinó que la estructura del $\alpha\text{-Ta}$ debía orientarse en las direcciones cristalográficas $[111]$ y $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$. A partir de esto, se procedió al diseño de las superficies de ambos sistemas. Primero, se generaron las superficies del $\alpha\text{-Ta}$ proyectando la estructura en bulto en las direcciones mencionadas, haciendo crecer la celda en la dirección $[001]$, con un total de 16 capas atómicas y añadiendo una región de vacío de aproximadamente 23 Å para evitar interacciones no deseadas entre las imágenes periódicas y simular correctamente el comportamiento superficial. Para la estructura de Al_2O_3 , debido a su complejidad estructural y con el objetivo de optimizar el costo computacional, se construyó una supercelda añadiendo un vacío equivalente de 23 Å a la estructura en bulto. Para simular el efecto del sustrato, se mantuvieron fijas las cuatro capas inferiores (compuestas por tres átomos de Al y seis átomos de O) durante la relajación. Para este sistema, se diseñaron dos terminaciones superficiales distintas: una rica en Al y otra rica en O. Finalmente, en todas las superficies diseñadas se realizaron cálculos de relajación estructural, permitiendo obtener configuraciones relajadas libres de tensiones residuales y representativas del comportamiento real de las capas atómicas superficiales.

3.4. Diseño de la interfase $\alpha\text{-Ta}/\text{Al}_2\text{O}_3$

Para modelar las interfases $\alpha\text{-Ta}/\text{Al}_2\text{O}_3$, se utilizaron las estructuras optimizadas previamente descritas. Las interfases se diseñaron siguiendo un enfoque de superceldas, empleando una periodicidad 1×1 en ambas superficies y considerando un desfase de red de aproximadamente 2.0%. Para cada una de las

dos orientaciones cristalográficas consideradas (α -Ta(111) y α -Ta($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$)), se simularon tres posiciones distintas de crecimiento epitaxial sobre las dos superficies de Al_2O_3 diseñadas: una superficie completa (S_1) y una superficie con una vacancia de Al ($S_{1-\text{Va}}$). Estas posiciones son llamadas, top 1, 2 y 3.

En total, se construyeron 12 modelos de interfase diferentes. Estos se designaron de la siguiente manera:

- M_i y $M_{i-\text{Va}}$, con $i = 1, 2, 3$, para las interfases formadas por α -Ta(111) sobre S_1 y $S_{1-\text{Va}}$, respectivamente.
- M_j y $M_{j-\text{Va}}$, con $j = 4, 5, 6$, para las interfases formadas por α -Ta($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$) sobre S_1 y $S_{1-\text{Va}}$, respectivamente.

Donde los modelos M_1 y M_4 corresponden a la posición top 1, M_2 y M_5 corresponden a la posición top 2 y M_3 y M_6 corresponden a la posición top 3, esto aplica de igual manera para los modelos con vacancia.

Estos modelos permitieron explorar los efectos de la orientación cristalográfica del α -Ta sobre Al_2O_3 , proporcionando información detallada sobre el comportamiento estructural de las interfases una vez que fueron completamente relajadas. Los valores de energía total obtenidos de estas configuraciones relajadas resultaron fundamentales para el cálculo de las energías de formación de interfase, las cuales constituyen el parámetro clave para evaluar la estabilidad termodinámica de los sistemas simulados. Este análisis permitió identificar las condiciones más favorables para el crecimiento epitaxial del α -Ta sobre Al_2O_3 y entender los efectos asociados a las diferentes orientaciones y configuraciones atómicas en la interfase. Por ultimo, en los sistemas mas estables se realizo el respectivo análisis de la densidad de estados electrónica, para determinar el efecto de la oxidación en la densidad de estados del Ta.

La metodología descrita permitió abordar de manera sistemática los objetivos planteados en este trabajo. A continuación, se presentan los resultados obtenidos a partir de su implementación.

Capítulo 4. Resultados

En este apartado se presentan y analizan los resultados obtenidos en esta tesis. Se exponen los valores obtenidos de las simulaciones realizadas y se discuten los principales hallazgos, proporcionando una interpretación de los fenómenos observados a partir de los modelos estudiados.

4.1. Estructuras en bulto de α -Ta y Al_2O_3

Los cálculos realizados sobre los sistemas en bulto permitieron obtener los parámetros de red finales para cada material. En el caso de α -Ta, se obtuvo un valor de 3.33 Å, en concordancia con lo reportado por (Abadias et al., 2019). Para Al_2O_3 , los parámetros obtenidos fueron $a, b = 4.80$ Å y $c = 13.12$ Å, los cuales coinciden con los valores presentados por (Zhang et al., 2013). En la Figura 1 se puede observar los dos sistemas cristalinos en bulto optimizados.

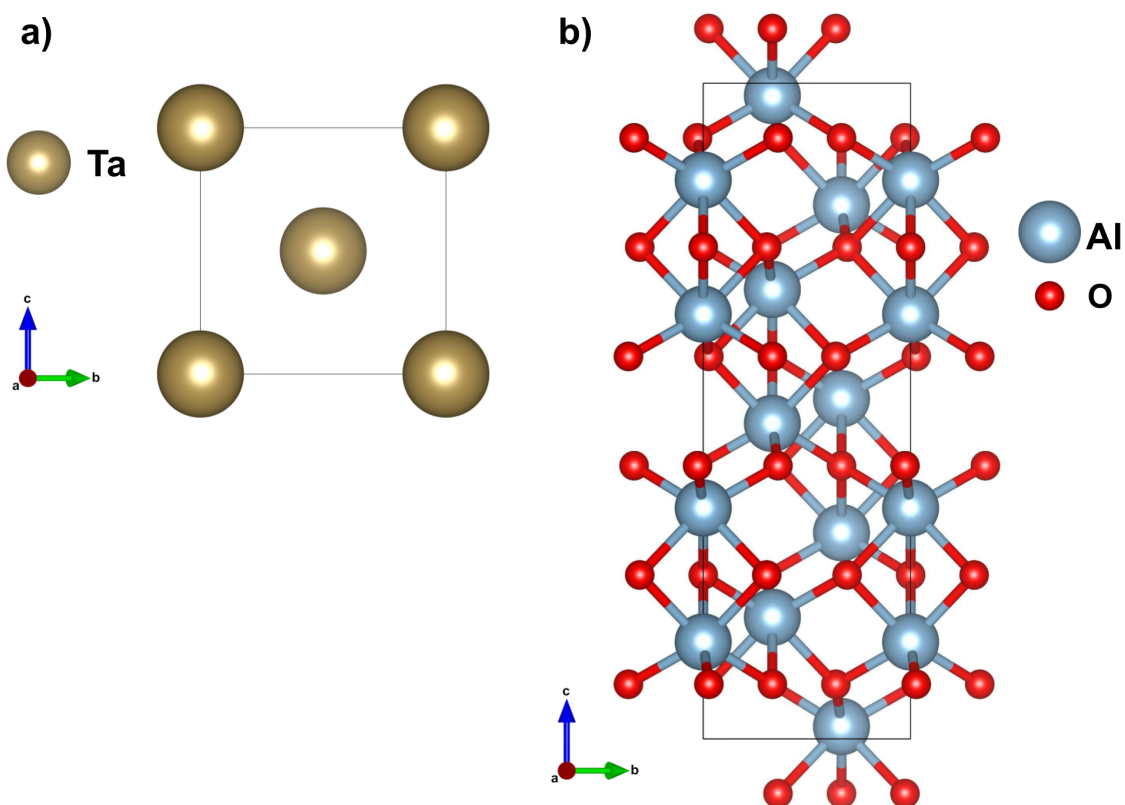


Figura 1. a) Estructura cristalina en bulto del α -Ta en su fase cúbica centrada en el cuerpo. b) Estructura en bulto del Al_2O_3 en su fase corindón. Ambas estructuras corresponden a las configuraciones optimizadas.

4.2. Superficies de α -Ta y Al_2O_3

Los resultados obtenidos de los cálculos computacionales para las superficies diseñadas del α -Ta revelan estructuras relajadas que conservan la orientación cristalográfica inicial, estas configuraciones se muestran en la Figura 2(a). En ambos casos, se observó que la relajación estructural ocurrió en las capas atómicas superficiales, mientras que las capas internas permanecieron prácticamente inalteradas debido al espesor total de 16 capas atómicas consideradas. Además, se incorporó una región de vacío de aproximadamente 23 Å, para evitar interacciones con sus respectivas repeticiones.

Por otra parte, para la estructura de Al_2O_3 , las dos terminaciones superficiales (S_1 y $S_{1-\text{Va}}$) presentaron cambios estructurales tras la relajación. Se mantuvieron fijas las cuatro capas inferiores (con tres átomos de Al y seis átomos de O), esto para simular el comportamiento de un sustrato. Mientras que las capas superiores experimentaron re-ordenamientos que estabilizaron ambas terminaciones superficiales. Para el sistema S_1 , se observa una relajación significativa del átomo superficial de Al, en comparación con su posición original en la estructura en bulto, tras la relajación estructural, dicho átomo adopta una nueva posición más cercana al plano atómico inferior, como se muestra en la Figura 2(b). Este desplazamiento se atribuye al reacomodo energético asociado a la minimización de las fuerzas superficiales, fenómeno característico de las superficies libres (Miller et al., 2009).

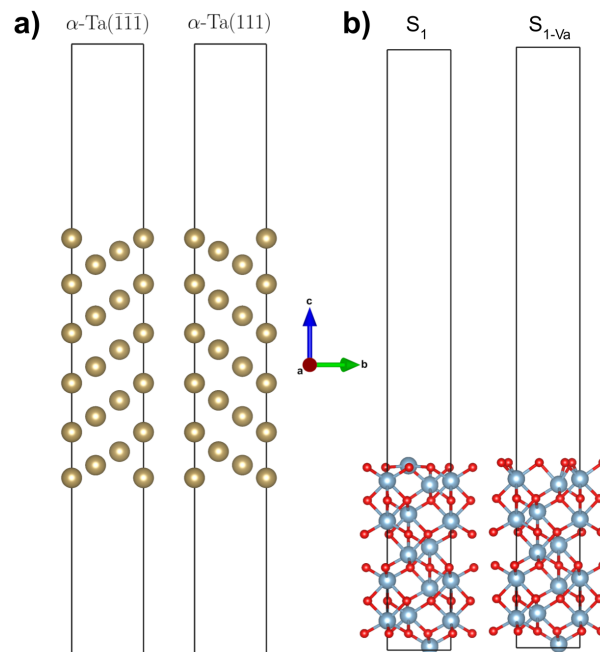


Figura 2. a) Superficies relajadas del α -Ta orientadas en las direcciones cristalográficas $[111]$ y $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$. b) Modelos superficiales relajados de Al_2O_3 [0001]: superficie completa (S_1) y superficie con vacancia de Al ($S_{1-\text{Va}}$).

4.3. Interfase de α -Ta y Al_2O_3

Una vez obtenidas y relajadas completamente las superficies de α -Ta y Al_2O_3 , se procedió a definir las posiciones de crecimiento epitaxial entre ambos materiales. Las tres configuraciones iniciales consideradas para este crecimiento, denominadas top 1, top 2 y top 3, se pueden ver en la Figura 3. En la configuración top 1, los átomos de Ta se posicionan directamente sobre los sitios de red del Al_2O_3 . Para las configuraciones top 2 y top 3 se realizan desplazamientos del Ta respecto a la red del Al_2O_3 , con el fin de explorar diferentes posiciones atómicas posibles de crecimiento epitaxial sobre los átomos del sustrato. Estas configuraciones fueron diseñadas con base en los modelos de superficie previamente optimizados, respetando una periodicidad 1×1 en el plano de la interfase. Se consideró un desajuste de red de aproximadamente 2.0 %, calculado como el error porcentual entre el parámetro de red a , b del α -Ta proyectado en las direcciones (111) y $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$, con un valor de 4.70 Å, en comparación con el parámetro de la red cristalina de Al_2O_3 , que tiene como valor 4.80 Å.

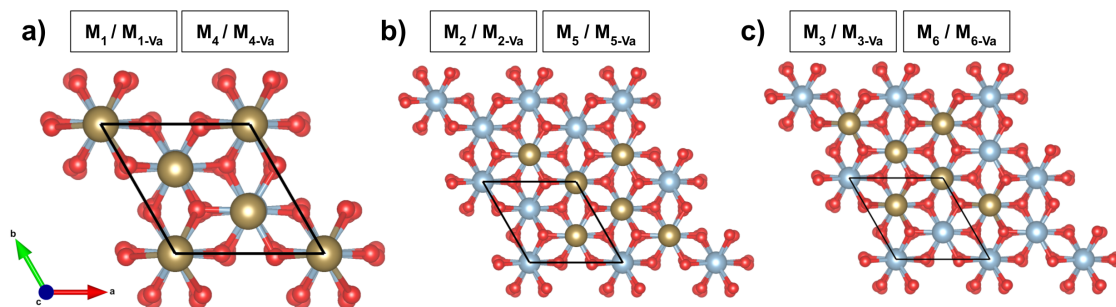


Figura 3. Vista superior de las configuraciones iniciales consideradas para el crecimiento epitaxial del α -Ta sobre la superficie de Al_2O_3 . a) Crecimiento en top 1 (sistemas M_1 , M_{1-Va} , M_4 , M_{4-Va}), b) crecimiento en top 2 (sistemas M_2 , M_{2-Va} , M_5 , M_{5-Va}), c) crecimiento en top 3 (sistemas M_3 , M_{3-Va} , M_6 , M_{6-Va}).

La Figura 4(a) muestra las seis interfaces diseñadas para el crecimiento de α -Ta(111) sobre Al_2O_3 . Además, la Figura 4(b) muestra las seis interfaces resultantes tras la relajación estructural, destacando las diferencias en el arreglo atómico según la posición de crecimiento. Tras la relajación, cinco de los seis modelos conservaron la geometría inicial establecida, manteniendo el registro atómico definido entre la película de Ta y la superficie del sustrato. No obstante, el modelo M_2 presentó un comportamiento estructural diferente: su configuración inicial se desplazó hasta una posición equivalente a la observada en el modelo M_1 . Este reordenamiento sugiere la existencia de interacciones atómicas preferenciales entre ciertas posiciones del Ta y los sitios superficiales del Al_2O_3 , lo que genera un desplazamiento a otras posiciones de mayor estabilidad estructural. Esta transición indica que la configuración original de M_2 no resulta estable bajo las condiciones geométricas impuestas por el sustrato, posiblemente debido a

desajustes locales en el empaquetamiento atómico o a fuerzas laterales que favorecen una configuración más energéticamente favorable. En conjunto, los resultados muestran que la película de α -Ta(111) crece de forma coherente sobre el sustrato, conservando una continuidad epitaxial sin rotaciones ni desalineamientos significativos.

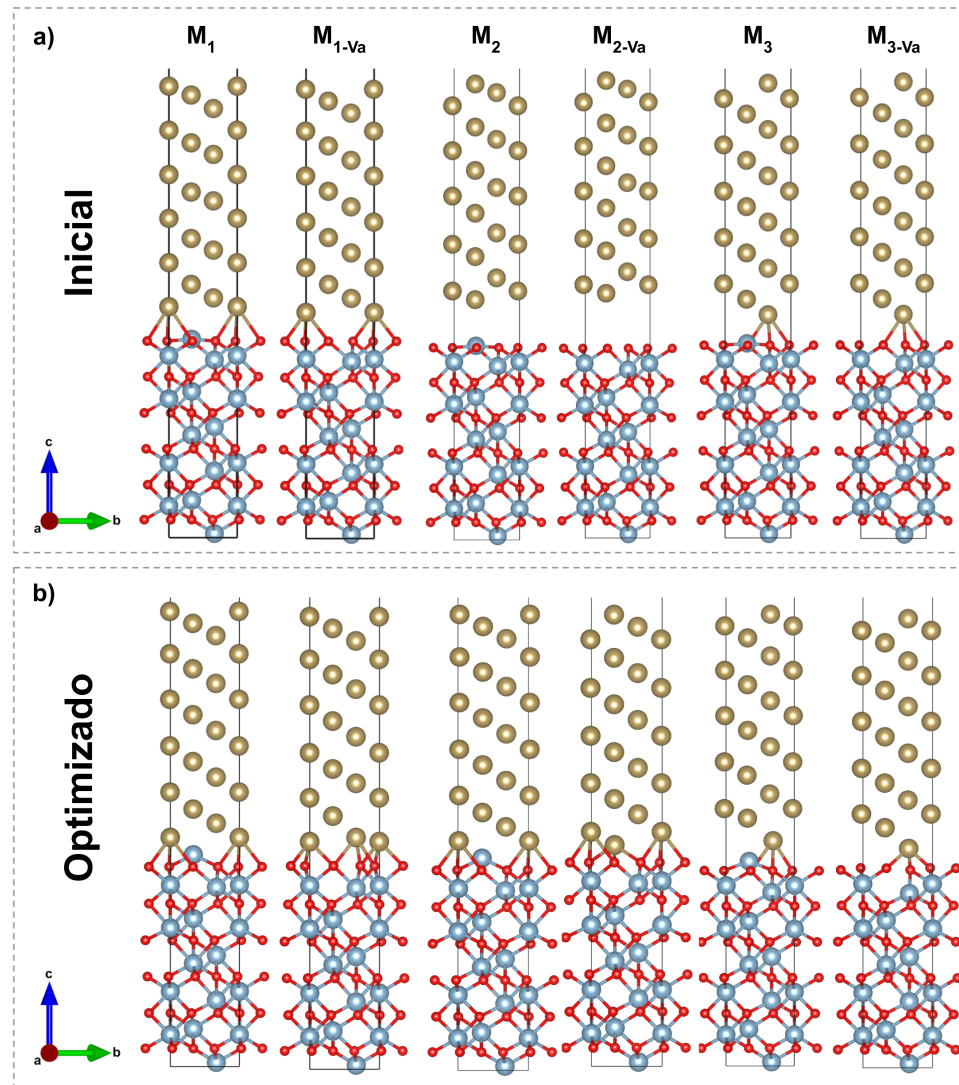


Figura 4. a) Modelos de interfase iniciales diseñados para el crecimiento epitaxial de α -Ta(111) sobre Al_2O_3 , considerando tres posiciones de apilamiento sobre las superficies S_1 y S_{1-Va} . b) Estructuras resultantes tras la relajación estructural completa. Se observa que solamente el modelo M_2 cambia su posición inicial, tendiendo a la posición del sistema M_1 .

Ahora, se puede apreciar en la Figura 5(a) los seis modelos de interfase diseñados para el crecimiento de α -Ta($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$) sobre Al_2O_3 , mientras que la Figura 5(b) presenta las configuraciones finales obtenidas tras la relajación estructural. En este caso, cinco modelos conservaron su geometría inicial, pero el modelo M_5 tendió hacia una configuración equivalente a la del modelo M_6 . Este comportamiento indica una preferencia energética clara hacia la posición del modelo M_6 , sugiriendo interacciones atómicas específicas

que favorecen dicha alineación en la interfase.

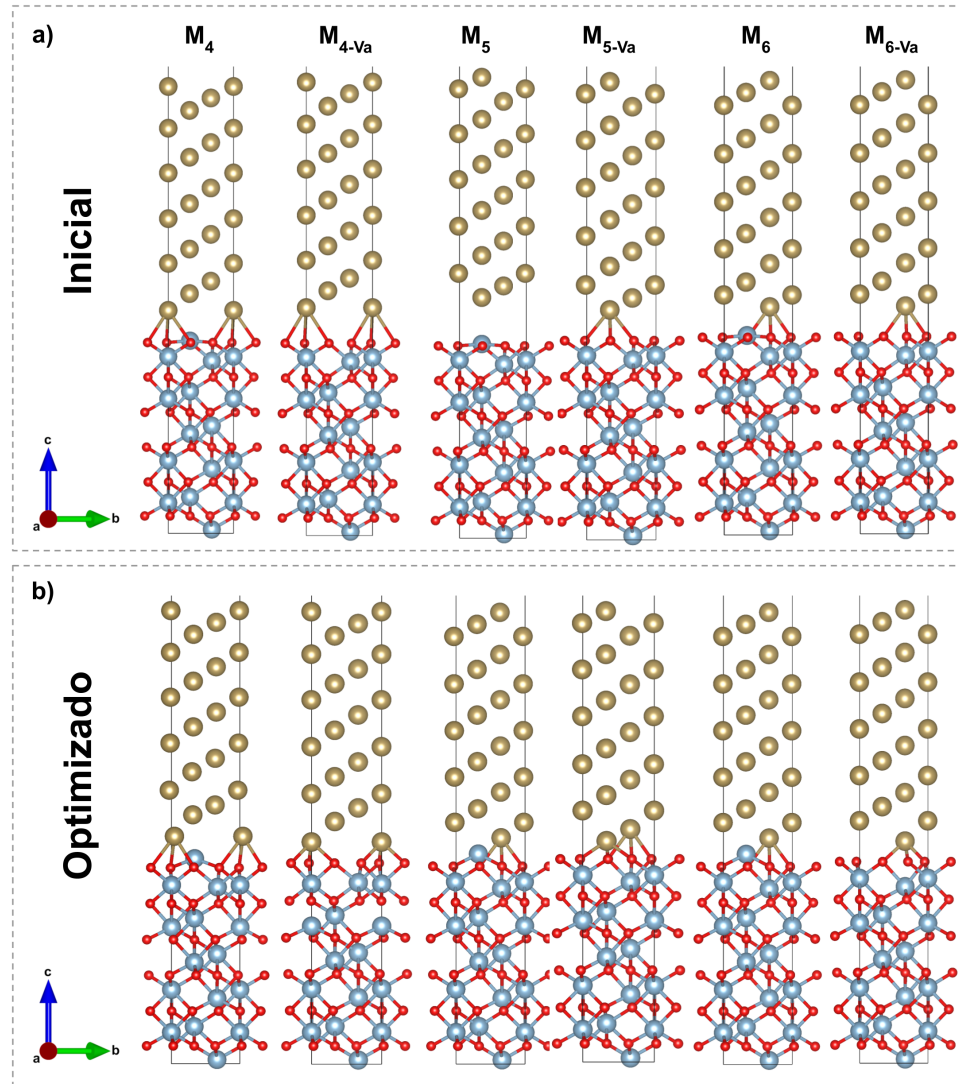


Figura 5. a) Modelos de interfase iniciales diseñados para el crecimiento epitaxial de $\alpha\text{-Ta}(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ sobre Al_2O_3 , considerando tres posiciones de apilamiento sobre las superficies S_1 y S_{1-Va} . b) Estructuras resultantes tras la relajación estructural completa. Se observa que únicamente el modelo M_5 modifica su posición inicial, evolucionando hacia la configuración del modelo M_6 .

4.3.1. Análisis de estabilidad termodinámica

Para evaluar la estabilidad termodinámica de los doce sistemas diseñados, se aplicó el formalismo de la energía de formación de interfase (Qian et al., 1988b). Esta se define como:

$$\Lambda_{\text{Ta}/\text{Al}_2\text{O}_3}^f = \frac{1}{A} \Delta E^{\text{slab}} + \Omega_{\text{Ta}}^f + \Omega_{\text{Al}_2\text{O}_3}^f. \quad (24)$$

Con $\Delta E^{\text{slab}} = E_{\text{Ta/Al}_2\text{O}_3}^{\text{slab}} - E_{\text{Ta}}^{\text{slab}} - E_{\text{Al}_2\text{O}_3}^{\text{slab}}$, donde $E_{\text{Ta/Al}_2\text{O}_3}^{\text{slab}}$, $E_{\text{Ta}}^{\text{slab}}$ y $E_{\text{Al}_2\text{O}_3}^{\text{slab}}$ representan las energías totales en eV de la interfase completa y de las superficies aisladas de α -Ta y Al_2O_3 , respectivamente. Además, A corresponde al área de la interfase en $\text{\AA}^2$. Y Ω_{Ta}^f , $\Omega_{\text{Al}_2\text{O}_3}^f$ denotan las energías de formación superficial de cada componente, definidas por:

$$\Omega_{\text{Ta}}^f = \frac{1}{2A} \left(E_{\text{Ta}}^{\text{slab}} - \eta_{\text{Ta}} \mu_{\text{Ta}} \right) \quad (25)$$

y

$$\Omega_{\text{Al}_2\text{O}_3}^f = \frac{1}{A} \left\{ E_{\text{Al}_2\text{O}_3}^{\text{slab}} - \frac{1}{2} \left(\frac{1}{2} \eta_{\text{Al}} + \frac{1}{3} \eta_{\text{O}} \right) \mu_{\text{Al}_2\text{O}_3}^{\text{bulk}} - \frac{1}{2} \left(\frac{1}{2} \eta_{\text{Al}} - \frac{1}{3} \eta_{\text{O}} \right) \Delta \mu \right\}, \quad (26)$$

donde η_i y μ_i corresponden al número de átomos y al potencial químico de Ta, Al y O, respectivamente. Este formalismo permite comparar la estabilidad de los diferentes modelos de interfase bajo condiciones químicas variables, teniendo en cuenta las contribuciones de energía superficial y la estequiometría atómica en la interfase.

Una de las principales aproximaciones del modelo consiste en asumir equilibrio termodinámico en ausencia de temperatura, lo cual permite reemplazar la energía libre de Gibbs por la energía total del sistema. Específicamente, para una superficie o interfase de composición variable, la energía libre se aproxima mediante:

$$G_{\text{superficie}}(n_i) - \sum_i \mu_i n_i \approx E_{\text{superficie}}(n_i) - \sum_i \mu_i n_i, \quad (27)$$

donde $E_{\text{superficie}}(n_i)$ representa la energía total del sistema calculada por primeros principios y μ_i los potenciales químicos de las especies involucradas. Esta igualdad aproximada es válida a temperatura $T = 0$ y corresponde al límite en el que los efectos entropicos son despreciables. En este contexto, minimizar la energía libre equivale a minimizar la energía total, lo cual justifica el uso de energías de formación obtenidas mediante DFT como criterio para evaluar la estabilidad relativa de las interfaces modeladas.

Implementando este formalismo, fue posible evaluar la estabilidad termodinámica de los sistemas diseñados bajo cuatro condiciones de potencial químico: (Ta-rico/Al-rico), (Ta-rico/Al-pobre), (Ta-pobre/Al-rico) y (Ta-pobre/Al-pobre). Los resultados correspondientes a las energías de formación de interfase se presentan en la Tabla 1, donde se reportan los valores obtenidos para las 12 interfaces consideradas. En esta tabla los sistemas M_1 y M_2 son presentados como $M_{1|2}$, dado que sus configuraciones relajadas resultaron ser equivalentes y, por tanto presentan la misma energía de formación. Asimismo, los sistemas M_5 y M_6 se presentan como $M_{5|6}$.

Tabla 1. Energía de formación de interfase bajo diferentes condiciones químicas de los 12 sistemas estudiados.

Configuración	Energía de formación de interfase (eV/Å ²)			
	Ta-ricas / Al-ricas	Ta-ricas / Al-pobres	Ta-pobres / Al-ricas	Ta-pobres / Al-pobres
M _{1 2}	0.30	0.30	3.17	3.17
M _{1-Va}	0.41	0.07	3.28	2.94
M _{2-Va}	0.36	0.02	3.23	2.89
M ₃	0.32	0.32	3.18	3.18
M _{3-Va}	0.43	0.08	3.29	2.95
M ₄	0.34	0.34	3.21	3.21
M _{4-Va}	0.47	0.13	3.34	2.99
M _{5 6}	0.28	0.28	3.14	3.14
M _{5-Va}	0.34	0.00	3.21	2.87
M _{6-Va}	0.43	0.08	3.29	2.95

La Figura 6 muestra una representación tridimensional de la energía de formación de interfase en función de las variaciones del potencial químico de Ta y Al para todos los modelos estudiados, incluyendo las interfases formadas sobre las superficies S_1 y S_{1-Va} . Para el Ta, el potencial químico varía desde condiciones ricas en Ta ($\mu_{Ta} = \mu_{Ta}^{bulk}$) hasta condiciones pobres en Ta ($\mu_{Ta} = \mu_{Ta}^{bulk} - E_{coh}^{Ta}$), siendo E_{coh}^{Ta} la energía de cohesión del Ta. Por otro lado, los potenciales químicos del Al y O están relacionados entre sí debido a la estequiometría del Al_2O_3 , mediante la siguiente relación: $2\mu_{Al} + 3\mu_O = \mu_{Al_2O_3}^{bulk}$ (Kurita et al., 2010). De este modo, condiciones ricas en Al implican condiciones pobres en O, mientras que condiciones pobres en Al corresponden a ambientes ricos en O. Este análisis permite identificar claramente las condiciones termodinámicas más favorables para la formación de cada interfase estudiada.

Esta representación permite visualizar cómo varía la energía de formación de interfase bajo diferentes condiciones estequiométricas para el crecimiento epitaxial. No obstante, en las Figuras 7 y 8 se presentan gráficos 2D que permiten una visualización más clara de las condiciones evaluadas.

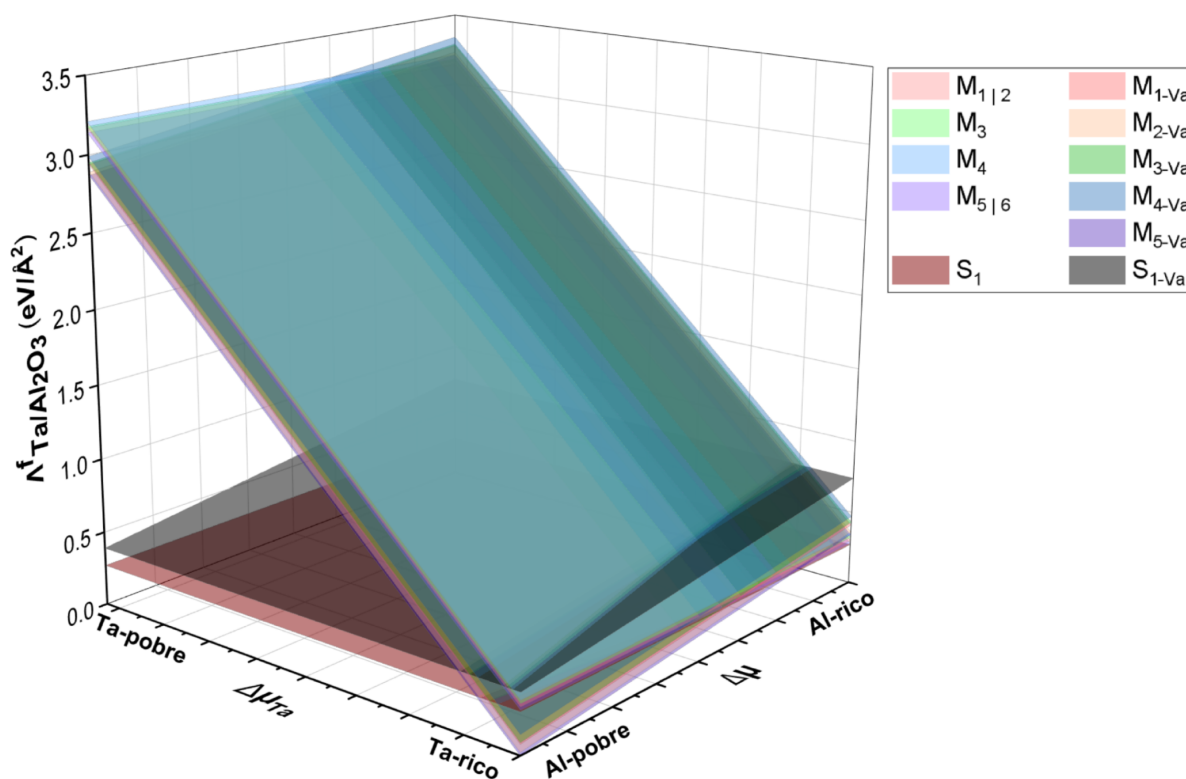


Figura 6. Representación tridimensional de la energía de formación de interfase ($\Lambda^f_{\text{Ta}/\text{Al}_2\text{O}_3}$) para todos los modelos estudiados, incluyendo las interfaces formadas sobre las superficies S_1 y $S_{1-\text{Va}}$, como función de las variaciones en los potenciales químicos del Ta y Al.

Estos gráficos representan el mismo comportamiento mostrado en la Figura 6, pero proyectado sobre vistas en 2D a lo largo de sus respectivos ejes. Esto facilita una comparación más directa entre los diferentes modelos de interfase y permite identificar con mayor claridad las configuraciones más estables bajo cada conjunto de potenciales químicos considerados.

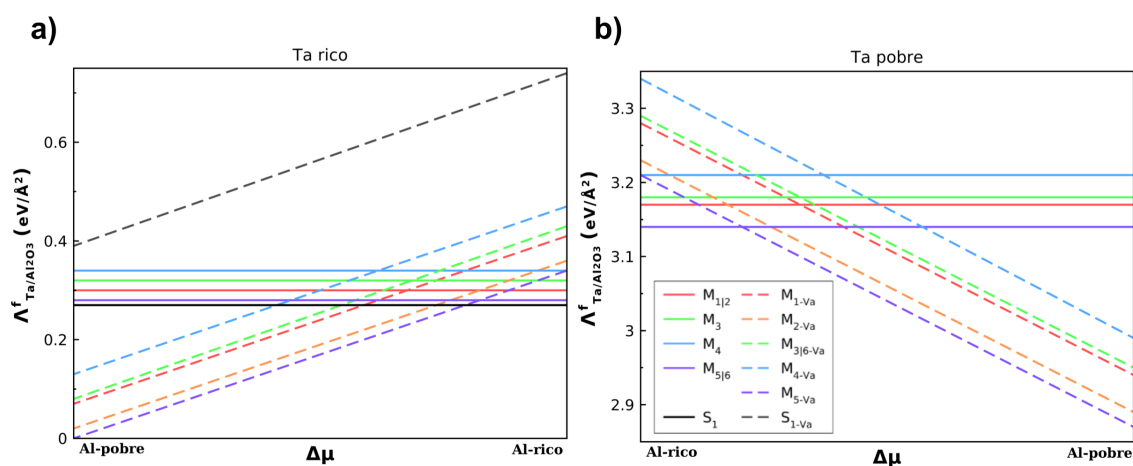


Figura 7. Energía de formación de interfase en función del potencial químico del Al. a) Estabilidad de los sistemas en condiciones ricas en Ta, b) condiciones pobres en Ta.

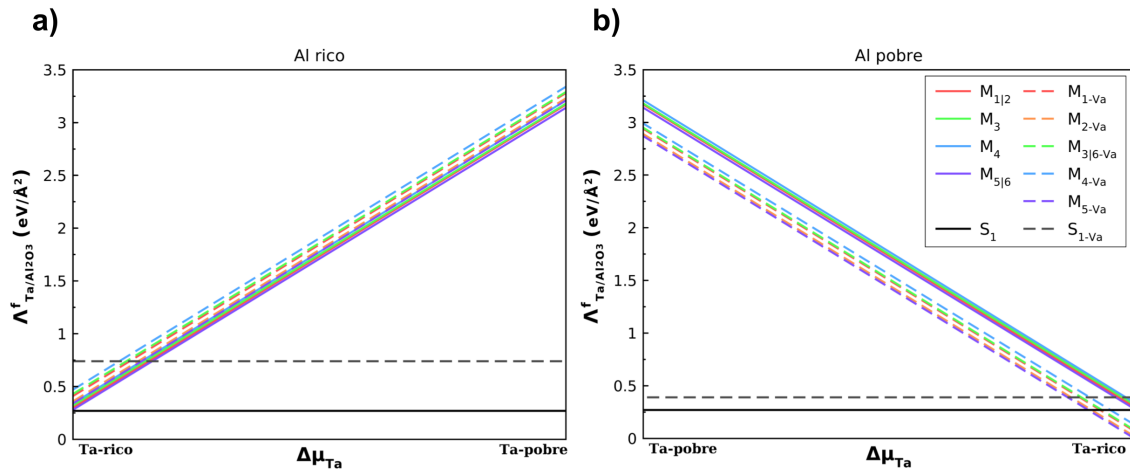


Figura 8. Energía de formación de interfase en función del potencial químico del Ta. a) Estabilidad de los sistemas en condiciones ricas en Al, b) condiciones pobres en Al.

En los casos analizados, las condiciones ricas en Ta continúan siendo las que favorecen las menores energías de formación de interfase, lo que indica que un entorno químico rico en Ta promueve una mayor estabilidad estructural en la interfase α -Ta/ Al_2O_3 . Esto sugiere una mejor compatibilidad de crecimiento bajo estas condiciones, posiblemente debido a una coordinación atómica más favorable entre las capas de Ta y el sustrato de Al_2O_3 . Entre todos los modelos evaluados, en la Tabla 1) se observa que los modelos $M_{5|6}$ y M_{5-Va} presentan las menores energías de formación comparadas con las otras configuraciones estudiadas. El modelo $M_{5|6}$ exhibe la mayor estabilidad al simular el crecimiento de α -Ta sobre el sustrato S_1 , mientras que el modelo M_{5-Va} resulta ser el más estable en las configuraciones correspondientes al crecimiento sobre el sistema S_{1-Va} .

En detalle, para el modelo $M_{5|6}$, bajo condiciones ricas en Ta con el entorno Al-rico como Al-pobre, se obtiene una energía de formación de $0.28 \text{ eV}/\text{\AA}^2$. En contraste, bajo condiciones pobres en Ta, sin importar el entorno de Al, la energía aumenta significativamente hasta $3.14 \text{ eV}/\text{\AA}^2$. Por otra parte, el modelo M_{5-Va} presenta también una mayor estabilidad en condiciones ricas en Ta, con energías de $0.34 \text{ eV}/\text{\AA}^2$ (Al-rico) y $0.00 \text{ eV}/\text{\AA}^2$ (Al-pobre). Para condiciones pobres en Ta, las energías de formación se incrementan a $3.21 \text{ eV}/\text{\AA}^2$ (Al-rico) y $2.87 \text{ eV}/\text{\AA}^2$ (Al-pobre). Aunque ambos modelos muestran las menores energías de formación, se evidencia una diferencia relevante según el entorno químico del sustrato. Cuando no hay vacancias de Al, las condiciones Al-ricas favorecen la menor energía de formación para el modelo $M_{5|6}$. En cambio, cuando el sustrato contiene una vacancia de Al, la menor energía de formación se alcanza en condiciones Al-pobres para el modelo M_{5-Va} .

Esta tendencia sugiere una fuerte correlación entre el entorno químico superficial y la naturaleza del sus-

trato, ya que la ausencia de átomos de Al modifica la afinidad energética con el Ta según la disponibilidad relativa de especies durante el crecimiento. En particular, el modelo M_{5-Va} , que incorpora una vacancia de Al en la superficie, resulta ser el más estable bajo condiciones pobres en Al, es decir, en un entorno rico en O. Este comportamiento indica que dicha vacancia contribuye a aliviar tensiones estructurales en la interfase, permitiendo que el crecimiento del α -Ta compense su efecto y estabilice la configuración total del sistema. Así, se refuerza que tanto la disposición atómica como la composición química local influyen de manera determinante en la estabilidad termodinámica de las interfases consideradas.

Por otro lado, en la Figura 7(a), se puede apreciar que para los sistemas crecidos sobre el sustrato S_1 , la energía de formación de interfase es ligeramente mayor que la energía de formación de la superficie correspondiente. Esto sugiere que la formación de la interfase implica un pequeño aumento en la energía del sistema, atribuible a tensiones estructurales o desajustes atómicos originados por el contacto con la película de Ta. Este comportamiento indica que, si bien la formación de la interfase no es espontáneamente más favorable que la superficie libre, las condiciones químicas ricas en Al logran minimizar dicha penalización energética, mostrando una compatibilidad estructural más alta bajo estos entornos.

Por el contrario, en el caso del sistema con vacancia de Al (S_{1-Va}), se observa un comportamiento inverso: la energía de formación superficial es considerablemente mayor que las energías de formación de interfase. Esta diferencia energética refleja que el crecimiento del Ta sobre esta superficie con vacancia contribuye de manera significativa a estabilizar el sistema, compensando los efectos negativos de la vacancia. En particular, las condiciones pobres en Al (ricas en O) favorecen energéticamente la formación de la interfase para estos modelos, indicando que la presencia de la vacancia alivia tensiones estructurales bajo estas condiciones químicas. En conjunto, estos resultados muestran que la interacción del α -Ta con los distintos sustratos puede modificar de manera significativa la estabilidad del sistema, dependiendo tanto de la estructura superficial como del entorno químico durante el crecimiento.

Finalmente, tras analizar los resultados obtenidos, inicialmente se identifica que los sistemas $M_{5|6}$ y M_{5-Va} presentan las menores energías de formación, siendo así los modelos más estables en sus respectivas configuraciones. No obstante, al observar la Tabla 1, se aprecia que los modelos $M_{1|2}$ y M_{2-Va} presentan diferencias de apenas $0.02 \text{ eV}/\text{\AA}^2$ y $0.03 \text{ eV}/\text{\AA}^2$ con respecto a $M_{5|6}$ y M_{5-Va} bajo las cuatro condiciones químicas evaluadas, lo cual indica una estabilidad similar. Un aspecto adicional a considerar es que sistemas M_{3-Va} y M_{6-Va} muestran energías de formación iguales a pesar de presentar direcciones de crecimiento distintas. Este resultado sugiere que la orientación cristalina del α -Ta en las direcciones (111) y ($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$) no genera diferencias energéticas significativas. Asimismo, las Figuras 7 y 8 muestran que todos los sistemas siguen tendencias similares, con variaciones menores en los valores de energía. En conjunto,

estos resultados sugieren que las dos direcciones de crecimiento son energéticamente equivalentes, y que las diferencias en el acomodo estructural asociadas a la orientación del α -Ta no afectan de manera sustancial el proceso de crecimiento epitaxial.

Con esto, se concluye la sección de análisis de estabilidad termodinámica para las doce interfaces simuladas. Aunque no se observa una dirección de crecimiento preferencial, el análisis posterior se centrará en los sistemas $M_{5|6}$ y M_{5-Va} , por ser representativos como las configuraciones que presentaron la energía de formación de menor valor.

4.3.2. Estudio de la distribución de carga en la interfase

La Figura 9 muestra los resultados del análisis de la Función de Localización Electrónica (ELF) aplicado en la interfase de los sistemas $M_{5|6}$ y M_{5-Va} . En la Figura 9(a) se presenta el resultado correspondiente al sistema $M_{5|6}$, mientras que la Figura 9(b) muestra el análisis para M_{5-Va} . Este análisis tiene como objetivo determinar el tipo de enlace químico formado entre los átomos de Ta y los átomos de O más cercanos. En ambos casos, las gráficas de ELF muestran claramente dos máximos bien definidos: el primero asociado a los átomos de Ta y el segundo a los átomos de O. Estos máximos reflejan regiones de alta localización electrónica alrededor de los núcleos atómicos.

En la Figura 9(a), se observa la localización de los electrones entre un átomo de Ta y tres átomos de O, representada por las curvas Ta–O(1–3). Estas curvas presentan una distancia interatómica Ta–O de ~ 2.3 Å y valores de ELF cercanos a 0.2 entre ambos máximos. Estos valores indican una interacción de carácter predominantemente iónico, con escasa compartición electrónica entre los átomos involucrados. En contraste, la Figura 9(b) muestra interacciones correspondientes a dos átomos distintos de Ta, cada uno coordinado con tres átomos de O, generando un total de seis curvas ELF. Las curvas Ta–O(1–3), asociadas al primer átomo de Ta, presentan distancias más cortas de ~ 2.0 Å y valores de ELF de ~ 0.32 , lo que sugiere interacciones más covalentes con una compartición electrónica mayor.

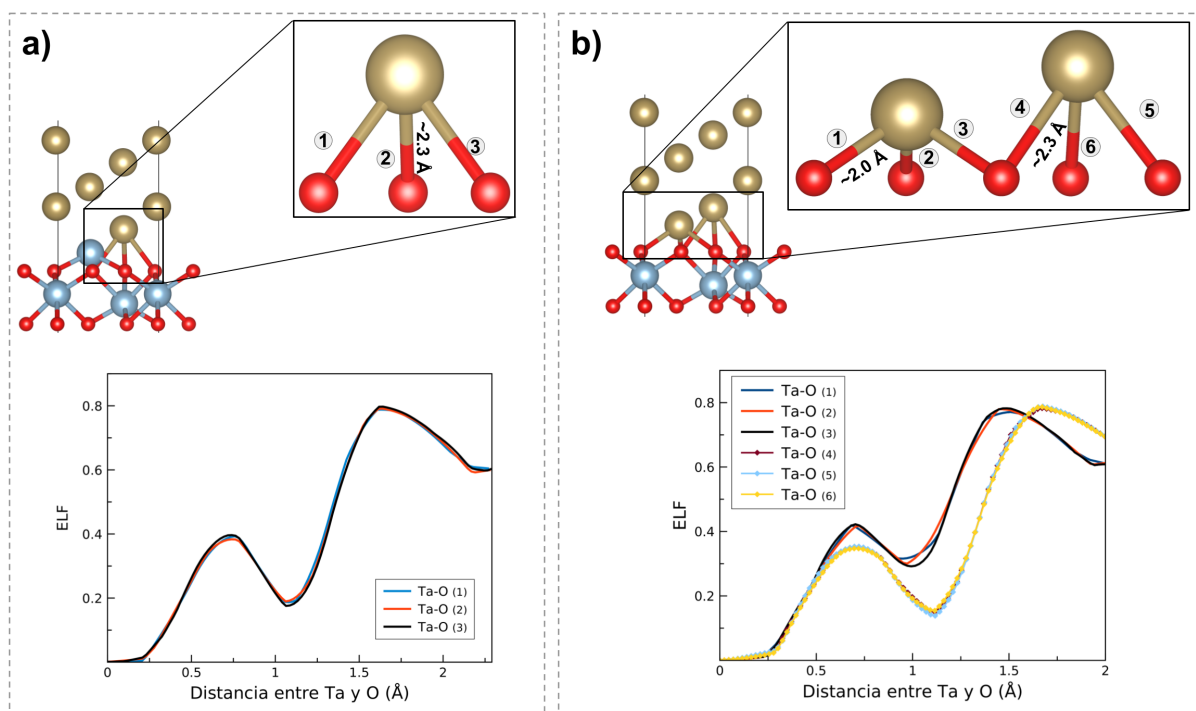


Figura 9. Resultados de ELF en las interfaces. a) Sistema $M_{5|6}$. b) Sistema M_{5-Va} . Las curvas representan interacciones Ta-O seleccionadas, mostrando variaciones en la localización electrónica según la distancia y la naturaleza química del entorno local.

Por otro lado, las curvas Ta-O(4-6), correspondientes al segundo átomo de Ta, presentan distancias interatómicas mayores de ~ 2.3 Å y valores de ELF de ~ 0.17 , similares al carácter iónico observado en el sistema $M_{5|6}$. Estas diferencias en la localización electrónica evidencian que la presencia de una vacancia de Al en la superficie introduce una heterogeneidad sustancial en las interacciones químicas locales en la interfase, generando simultáneamente regiones con enlaces covalentes más cortos y fuertes, junto con regiones dominadas por interacciones iónicas más largas y débiles.

Luego, el estudio de las interfaces α -Ta/ Al_2O_3 permitió identificar una redistribución significativa de carga electrónica en la zona de contacto entre el metal y el óxido, lo que sugiere un cambio en el entorno electrostático originado por la formación de la interfase. En la Figura 10 se muestran los mapas de diferencia de carga para los modelos $M_{5|6}$ y M_{5-Va} , donde se aprecia una transferencia electrónica entre las especies Ta y O presentes en la interfase.

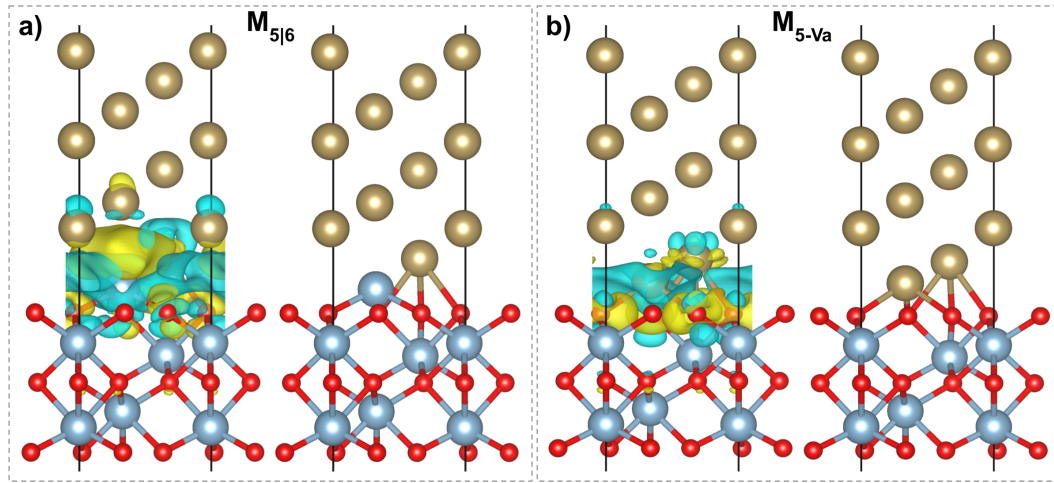


Figura 10. Distribución de la diferencia de carga electrónica en la región de la interfase. a) Modelo $M_{5|6}$. b) Modelo M_{5-Va} . En ambas imágenes se presentan los modelos atómicos sin las regiones de carga, lo cual permite visualizar con mayor claridad los átomos involucrados en la redistribución de carga. Las regiones amarillas indican acumulación de carga, y las azules representan pérdida de carga.

Este comportamiento es coherente con los hallazgos experimentales y teóricos reportados por (Anbalagan et al., 2025), quienes identificaron una capa en la interfase en sistemas Ta/zafiro, compuesta por átomos de Al, O y Ta. Su análisis reveló que esta capa que se encuentra mezclada, modifica tanto la estabilidad termodinámica como las propiedades electrónicas del sistema y los efectos de redistribución de carga pueden afectar directamente las propiedades del resonador superconductor y puede impactar directamente el rendimiento de los qubits superconductores al alterar el entorno local en el que estos operan. Estos hallazgos refuerzan la importancia de comprender la distribución de carga en la interfase Ta/ Al_2O_3 , ya que incluso capas atómicamente delgadas pueden ejercer una influencia crítica sobre el comportamiento electrónico del sistema y, en consecuencia, sobre la eficiencia de dispositivos cuánticos basados en superconductores.

A continuación, se presentan y analizan los resultados obtenidos del estudio de la densidad de estados electrónicos en las distintas interfases modeladas.

4.3.3. Densidad de estados

La Figura 11(a) muestra la DOS proyectada en la contribución de los orbitales moleculares para la superficie del α -Ta($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$). En esta gráfica se observa que la región cercana al nivel de Fermi está dominada por la contribución de los orbitales d del Ta, lo cual es característico de los metales de transición. Esta

alta densidad de estados en el entorno del nivel de Fermi confirma el comportamiento metálico esperado de esta superficie del Ta. Por otro lado, en la Figura 11(b) se presenta la DOS proyectada correspondiente a la superficie S_1 del Al_2O_3 . En este caso, los estados están formados principalmente por orbitales s , p del O y del Al. La gráfica evidencia un comportamiento típicamente de un aislante, con un claro intervalo de 4.2 eV entre los estados ocupados y desocupados.

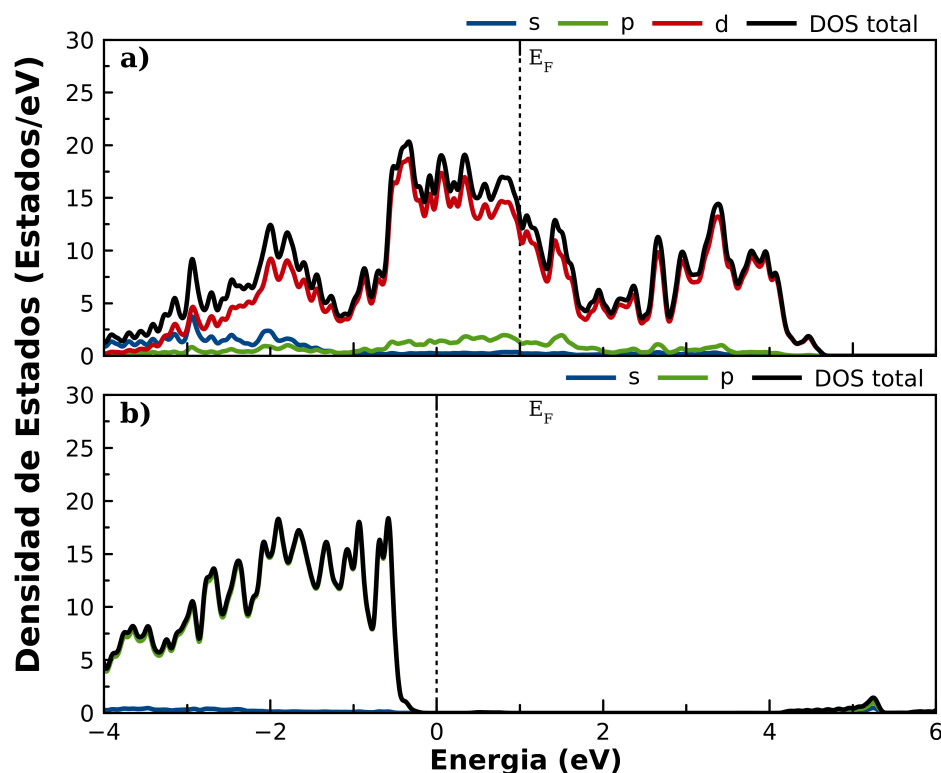


Figura 11. Densidades de estados proyectadas de las superficies individuales. a) Superficie del $\alpha\text{-Ta}(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$. b) Superficie S_1 de Al_2O_3 . Las contribuciones de los orbitales s , p y d se representan en color azul, verde y rojo, respectivamente.

Luego, en la Figura 12 se presentan los resultados del análisis de densidad de estados para la interfase $\text{M}_{5|6}$. En la Figura 12(a), se muestra la DOS proyectada sobre los orbitales atómicos individuales de los elementos que conforman la interfase. Se observa que los orbitales d del Ta mantienen una densidad significativa cerca del nivel de Fermi, reflejando su naturaleza metálica incluso en contacto con el sustrato.

En la Figura 12(b), se presenta la DOS agrupada por contribuciones elementales: por un lado, la del $\alpha\text{-Ta}$ y, por otro, la del Al_2O_3 . Esta visualización permite identificar claramente la contribución dominante del Ta en la región cercana al nivel de Fermi, mientras que el Al_2O_3 conserva su carácter aislante, con una ausencia significativa de estados electrónicos en dicha región. Esta separación indica una interfase con débil hibridación electrónica en el nivel de Fermi, preservando las propiedades individuales de cada material.

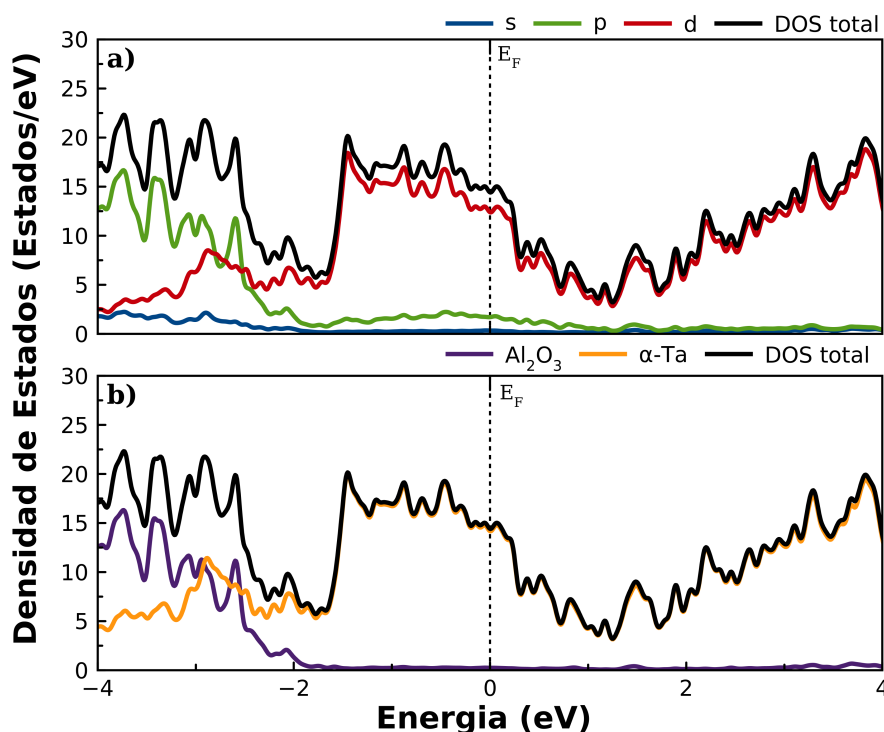


Figura 12. Densidades de estados electrónicas calculadas para la interfase $M_{5|6}$. a) Representación de la contribución orbital de los elementos presentes en la interfase. Las líneas azul, verde y roja corresponden a los orbitales s , p y d , respectivamente, mientras que la línea negra indica la densidad total de estados del sistema. b) Contribución total por parte del sistema: la línea morada representa la DOS del Al_2O_3 , la línea naranja corresponde al DOS del α -Ta.

En la Figura 13 se presentan los resultados de densidad de estados para la superficie S_{1-Va} . En la Figura 13(a), se muestra la densidad de estados proyectada en los orbitales s y p de los átomos que componen la superficie. A diferencia del comportamiento típicamente aislante del Al_2O_3 , se observa la aparición de estados disponibles en el nivel de Fermi, indicando una modificación local del carácter electrónico de la superficie. Para analizar el origen de estos estados, la Figura 13(b) presenta la densidad de estados proyectada por capas. En esta figura se comparan dos curvas: una que agrupa las contribuciones electrónicas de las tres primeras capas atómicas superficiales, y otra que corresponde al resto de las capas del sistema. Se observa que los estados presentes en el nivel de Fermi provienen de las capas superficiales, lo que sugiere que son inducidos por la relajación estructural generada tras la eliminación del átomo de Al. Por el contrario, las capas internas conservan el comportamiento aislante característico del Al_2O_3 , lo que indica que la vacancia afecta localmente la estructura electrónica sin modificar el carácter del material en profundidad.

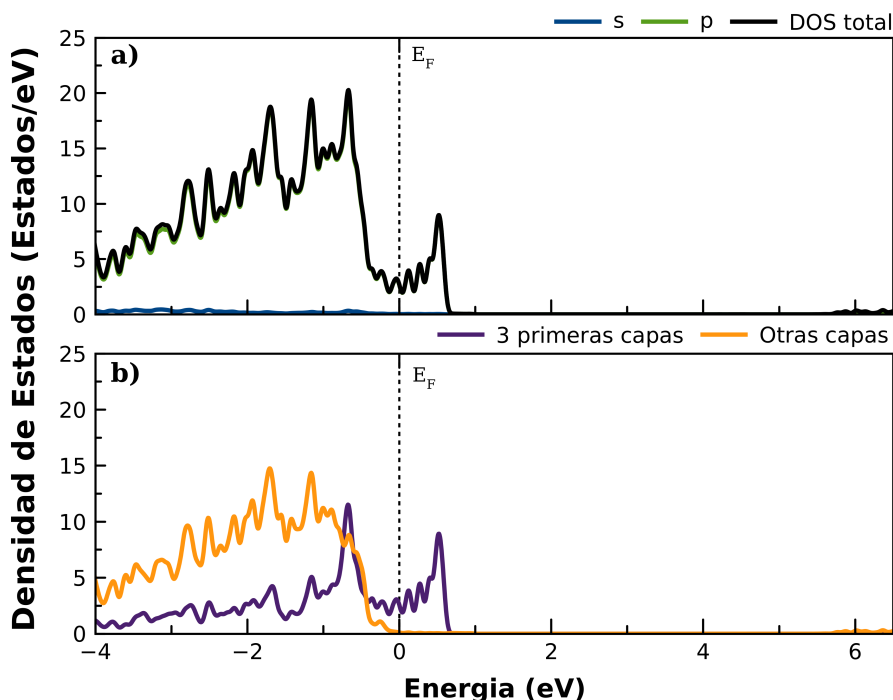


Figura 13. Densidad de estados electrónica calculada para la superficie S_{1-Va} . a) Presenta la contribución de los orbitales s y p de la superficie, representados por las líneas de color azul y verde, respectivamente. La línea negra indica la densidad total de estados. b) Densidad de estados por capas, la curva morada corresponde a las tres primeras capas atómicas superficiales, mientras que la curva amarilla representa las capas restantes del sistema.

La Figura 14 presenta los resultados de densidad de estados calculada para la interfase M_{5-Va} . En la Figura 14(a) se muestra la densidad de estados proyectada por orbitales, donde se observa nuevamente que los orbitales d del Ta dominan la región cercana al nivel de Fermi, manteniendo su carácter metálico a pesar de la presencia de la vacancia superficial en el sustrato. En la Figura 14(b) se presenta la densidad de estados proyectada por contribuciones de cada parte del sistema. La densidad total del α -Ta exhibe una alta intensidad en el nivel de Fermi, mientras que la correspondiente al Al_2O_3 muestra una región sin estados disponibles, reflejando su comportamiento típicamente aislante. Esto indica que, a pesar de la vacancia de Al en la superficie del sustrato, las propiedades electrónicas globales de ambos materiales se mantienen localmente diferenciadas en la interfase.

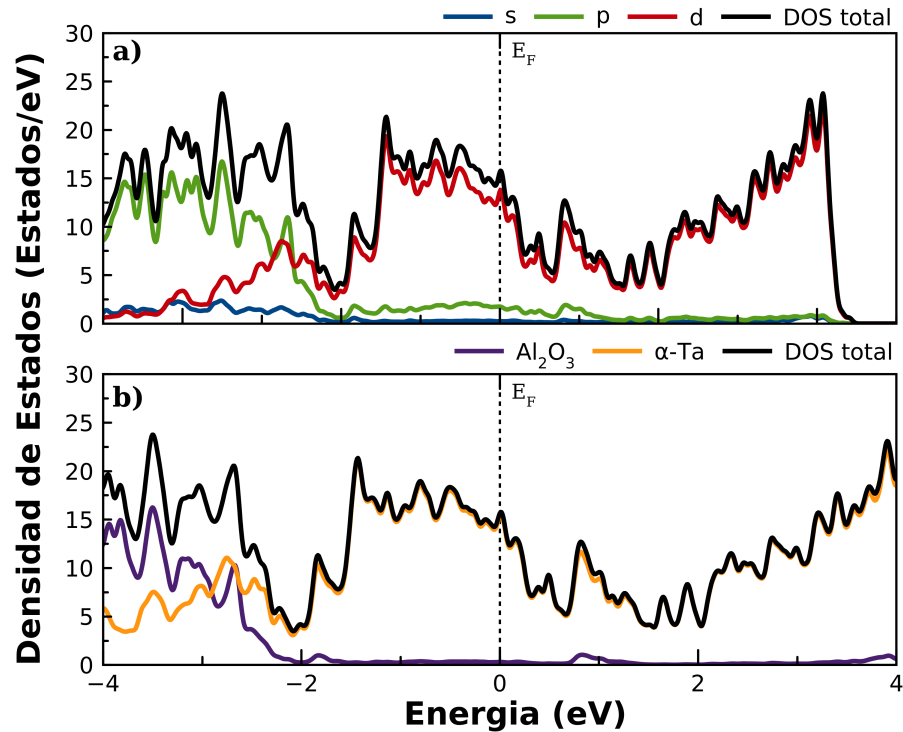


Figura 14. Densidad de estados electrónica de la interfase M_{5-Va} . a) Densidad de estados proyectada en los orbitales s , p y d del sistema, representados en color azul, verde y rojo, respectivamente. La línea negra indica la densidad total. b) Densidad de estados proyectada por contribución de materiales: la curva morada representa la contribución total del Al_2O_3 , la curva naranja corresponde al $\alpha-Ta$, y la línea negra representa la densidad total.

La Figura 15 presenta un análisis comparativo de la densidad de estados electrónicos del $\alpha-Ta$ en diferentes condiciones, con el objetivo de evaluar cómo la interacción con el sustrato de Al_2O_2 modifica su comportamiento electrónico. En ambos casos, se incluye como referencia la DOS de la superficie libre del $\alpha-Ta$ orientada en la dirección $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$, lo cual permite establecer una línea base para identificar las alteraciones inducidas por la formación de la interfase. En la Figura 15(a) se muestran las densidades de estados totales correspondientes al $\alpha-Ta$ en las interfases $M_{5|6}$ y M_{5-Va} , comparadas con la DOS de la superficie. Esta comparación permite observar que, si bien se presentan variaciones en las densidades de estado del $\alpha-Ta$ debido a la interacción con el sustrato, la tendencia general de su comportamiento electrónico se mantiene. En particular, se conserva la presencia de estados disponibles en el nivel de Fermi, lo cual indica que el carácter metálico del $\alpha-Ta$ persiste a pesar de la formación de la interfase.

Por otro lado, en la Figura 15(b) se presenta un análisis más localizado, considerando únicamente las tres capas inferiores del $\alpha-Ta$ en la superficie y en los dos interfases anteriormente mencionadas. Este enfoque permite identificar con mayor precisión los cambios locales en la DOS del metal inducidos directamente por la proximidad al sustrato. Al comparar estos resultados con la DOS de las tres capas más internas de la superficie, se evidencian diferencias en la intensidad y forma de los picos cercanos al nivel de

Fermi, lo cual indica una redistribución electrónica local asociada a la interacción en la interfase. En conjunto, estos resultados revelan que, aunque el carácter metálico del α -Ta se conserva, su DOS se ve modificada por la presencia del sustrato y por las características estructurales específicas de cada modelo de interfase.

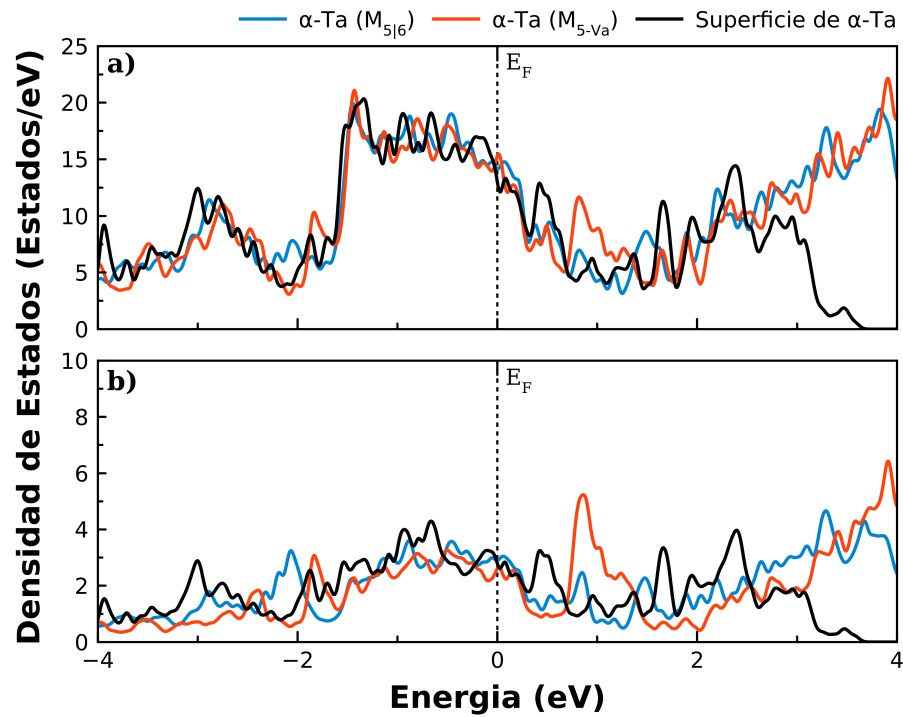


Figura 15. Comparación de las densidades de estados electrónicas del α -Ta en distintas condiciones estructurales. a) DOS total del α -Ta para los modelos $M_{5|6}$ (línea azul) y M_{5-Va} (línea roja), comparadas con la DOS de la superficie libre orientada en la dirección $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ (línea negra). b) DOS correspondiente a las tres capas inferiores del α -Ta en los mismos sistemas.

Hasta aquí se han explicado los resultados obtenidos en este trabajo de maestría, en el cual por medio de cálculos de primeros principios, se estudiaron diferentes modelos de interfase entre α -Ta/ Al_2O_3 para determinar el comportamiento de la densidad de estados en la interfase. Las conclusiones de este trabajo se presentan en el siguiente apartado.

Capítulo 5. Conclusiones

En este trabajo se llevó a cabo un estudio computacional detallado de la interfase α -Ta/Al₂O₃ mediante cálculos de primeros principios, con el objetivo de analizar su estabilidad termodinámica, caracterizar los procesos de oxidación en la interfase y evaluar su impacto sobre la densidad de estados electrónicos del sistema. Se construyeron y analizaron doce modelos de interfase considerando distintas orientaciones cristalinas del α -Ta y distintas configuraciones superficiales del sustrato de Al₂O₃, incluyendo superficies con y sin vacancias de Al. Esta diversidad estructural permitió simular condiciones realistas de crecimiento epitaxial y evaluar sus efectos sobre la estabilidad de los sistemas.

Mediante el análisis termodinámico de la energía de formación de interfase bajo distintas condiciones estequiométricas, se identificaron las configuraciones más estables en función de la riqueza relativa de Ta y Al. Se concluyó que las condiciones estequiométricas ricas en Ta favorecen la estabilidad estructural, y que las configuraciones más estables varían dependiendo de la presencia o ausencia de vacancias de Al en la superficie del sustrato. Además, se evidenció que las interfases α -Ta(111)/Al₂O₃ y α -Ta($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$)/Al₂O₃ presentaron comportamientos de energía de formación de interfase similares, lo que sugiere que no existe una orientación preferencial del Ta en términos de estabilidad termodinámica.

El análisis de diferencias de densidad de carga permitió identificar la redistribución electrónica en la zona de interfase, en particular la formación de enlaces entre átomos de Ta y O, confirmando el inicio de procesos de oxidación en la interfase. Este efecto fue más notable en modelos con vacancia superficial, donde se observó una transferencia de carga localizada que modifica el entorno electrostático de la interfase.

Los cálculos de densidad de estados proyectada mostraron que el α -Ta conserva su carácter metálico en la interfase, mientras que el Al₂O₃ mantiene un comportamiento aislante, excepto en configuraciones con vacancia, donde aparecen estados adicionales cercanos al nivel de Fermi. Este comportamiento se atribuye a la relajación estructural inducida por los defectos y demuestra que la oxidación superficial puede modificar las propiedades electrónicas locales.

Finalmente, los resultados obtenidos muestran que la interacción del α -Ta con el sustrato de Al₂O₃, induce modificaciones en la densidad de estados electrónicos del Ta, revelando una redistribución de carga localizada en la interfase. Estos efectos alteran el entorno electrónico del sistema y tienen el potencial de influir directamente en el desempeño de resonadores superconductores.

Literatura citada

- Abadias, G., Colin, J., Tingaud, D., Djemia, P., Belliard, L., & Tromas, C. (2019). Elastic properties of - and -tantalum thin films. *Thin Solid Films*, 688, 1–10. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.tsf.2019.06.053>.
- Anbalagan, A. k., Cummings, R., Zhou, C., Mun, J., Stanic, V., Jordan-Sweet, J., Yao, J., Kisslinger, K., Weiland, C., Nykypanchuk, D., Hulbert, S. L., Li, Q., Zhu, Y., Liu, M., Sushko, P. V., Walter, A. L., & Barbour, A. M. (2025). Revealing the Origin and Nature of the Buried Metal-Substrate Interface Layer in Ta/Sapphire Superconducting Films. *Advanced Science*, 12(17), 1–9. <https://doi.org/https://doi.org/10.1002/advs.202413058>.
- Angurel, L., Lera, F., Rillo, C., & Navarro, R. (1994). Intergranular properties of YBCO and BSCCO ceramic superconductors at low fields. *Physica C: Superconductivity*, 230(3), 361–370. [https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0921-4534\(94\)90852-4](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0921-4534(94)90852-4).
- Bardeen, J. (1955). Theory of the Meissner Effect in Superconductors. *Physical Review*, 97, 1724–1725. <https://doi.org/10.1103/PhysRev.97.1724>.
- Bardeen, J., Cooper, L. N., & Schrieffer, J. R. (1957). Theory of Superconductivity. *Physical Review*, 108, 1175–1204. <https://doi.org/10.1103/PhysRev.108.1175>.
- Barends, R., Baselmans, J. J. A., Hovenier, J. N., Gao, J. R., Yates, S. J. C., Klapwijk, T. M., & Hoevers, H. F. C. (2007). Niobium and Tantalum High Q Resonators for Photon Detectors. *IEEE Transactions on Applied Superconductivity*, 17(2), 263–266. <https://doi.org/10.1109/TASC.2007.898541>.
- Catterall, J. A. (1971). Superconducting materials and their engineering applications. *Contemporary Physics*, 12(5), 495–514. <https://doi.org/10.1080/00107517108230230>.
- Clarke, J. (1989). Principles and applications of SQUIDs. *Proceedings of the IEEE*, 77(8), 1208–1223. <https://doi.org/10.1109/5.34120>.
- Crowley, K. D., McLellan, R. A., Dutta, A., Shumiya, N., Place, A. P. M., Le, X. H., Gang, Y., Madhavan, T., Bland, M. P., Chang, R., Khedkar, N., Feng, Y. C., Umbarkar, E. A., Gui, X., Rodgers, L. V. H., Jia, Y., Feldman, M. M., Lyon, S. A., ... , & de Leon, N. P. (2023). Disentangling Losses in Tantalum Superconducting Circuits. *Physical Review X*, 13, 1–31. <https://doi.org/10.1103/PhysRevX.13.041005>.
- Dong, F., Huang, Z., Hao, L., Xu, X., Jin, Z., & Shao, N. (2019). An on-board 2G HTS magnets system with cooling-power-free and persistent-current operation for ultrahigh speed superconducting maglevs. *Scientific Reports*, 9, 1–12. <https://doi.org/10.1038/s41598-019-48136-x>.
- Duff, O., Koerckel, G., Mayer, E., & Worobey, W. (1979). A High-Stability RC Circuit Using High Nitrogen Doped Tantalum. *IEEE Transactions on Components, Hybrids, and Manufacturing Technology*, 2(2), 221–225. <https://doi.org/10.1109/TCHMT.1979.1135446>.
- Eisenstein, J. (1954). Superconducting Elements. *Rev. Mod. Phys.*, 26, 277–291. <https://doi.org/10.1103/RevModPhys.26.277>.
- Frunzio, L., Wallraff, A., Schuster, D., Majer, J., & Schoelkopf, R. (2005). Fabrication and characterization of superconducting circuit QED devices for quantum computation. *IEEE Transactions on Applied Superconductivity*, 15(2), 860–863. <https://doi.org/10.1109/TASC.2005.850084>.
- Gao, J. (2008). The physics of superconducting microwave resonators. [Tesis de Doctorado, California Institute of Technology].

- Goldie, D. J. & Withington, S. (2012). Non-equilibrium superconductivity in quantum-sensing superconducting resonators. *Superconductor Science and Technology*, 26(1), 1–11. <https://doi.org/10.1088/0953-2048/26/1/015004>.
- Goodman, B. B. (1966). Type II superconductors. *Reports on Progress in Physics*, 29(2), 1–44. <https://doi.org/10.1088/0034-4885/29/2/302>.
- Guerrero-Sánchez, J. & Takeuchi, N. (2016). Antiferromagnetic MnN layer on the MnGa(001) surface. *Applied Surface Science*, 390, 328–332. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2016.08.076>.
- Hohenberg, P. & Kohn, W. (1964). Inhomogeneous Electron Gas. *Physical Review*, 136, B864–B871. <https://doi.org/10.1103/PhysRev.136.B864>.
- Izyumov, Y. A. & Kurmaev, E. Z. (2008). FeAs systems: a new class of high-temperature superconductors. *Physics-Uspekhi*, 51(12), 1–26. <https://doi.org/10.1070/PU2008v051n12ABEH006733>.
- Jain, A., Ong, S. P., Hautier, G., Chen, W., Richards, W. D., Dacek, S., Cholia, S., Gunter, D., Skinner, D., Ceder, G., & Persson, K. A. (2013). Commentary: The Materials Project: A materials genome approach to accelerating materials innovation. *APL Materials*, 1(1), 1–12. <https://doi.org/10.1063/1.4812323>.
- Kato, T. (1957). On the eigenfunctions of many-particle systems in quantum mechanics. *Communications on Pure and Applied Mathematics*, 10(2), 151–177. <https://doi.org/https://doi.org/10.1002/cpa.3160100201>.
- Koch, W. & Holthausen, M. (2015). *A Chemist's Guide to Density Functional Theory*. Wiley.
- Kresse, G. & Furthmüller, J. (1996). Efficient iterative schemes for ab initio total-energy calculations using a plane-wave basis set. *Physical Review B*, 54, 11169–11186. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.54.11169>.
- Kresse, G., J. D. (1999). From ultrasoft pseudopotentials to the projector augmented-wave method. *Physical Review B*, 59, 1758–1775. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.59.1758>.
- Kurita, T., Uchida, K., & Oshiyama, A. (2010). Atomic and electronic structures of α -Al₂O₃ surfaces. *Physical Review B*, 82, 1–14. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.82.155319>.
- Lee, S. Y., Kang, K. Y., & Ahn, D. (1995). Fabrication of YBCO superconducting dual mode resonator for satellite communication. *IEEE Transactions on Applied Superconductivity*, 5(2), 2563–2566. <https://doi.org/10.1109/77.403113>.
- Lozano, D. P., Mongillo, M., Piao, X., Couet, S., Wan, D., Canvel, Y., Vadiraj, A. M., Ivanov, T., Verjauw, J., Acharya, R., Van Damme, J., Mohiyaddin, F. A., Jussot, J., Gowda, P. P., Pacco, A., Raes, B., Van de Vondel, J., Radu, I. P., ... , & De Greve, K. (2024). Low-loss -tantalum coplanar waveguide resonators on silicon wafers: fabrication, characterization and surface modification. *Materials for Quantum Technology*, 4(2), 1–11. <https://doi.org/10.1088/2633-4356/ad4b8c>.
- March, N. H. (1986). Spatially dependent generalization of Kato's theorem for atomic closed shells in a bare Coulomb field. *Physical Review A*, 33, 88–89. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.33.88>.
- Meijer, P. H. E. (1994). Kamerlingh Onnes and the discovery of superconductivity. *American Journal of Physics*, 62(12), 1105–1108. <https://doi.org/10.1119/1.17669>.

- Miller, S., E., N., & N., M. (2009). Surface energies, work functions, and surface relaxations of low-index metallic surfaces from first principles. *Physical Review B*, 80, 1–9. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.80.235407>.
- Momma, Koichi, I. F. (2011). VESTA3 for three-dimensional visualization of crystal, volumetric and morphology data. *Journal of Applied Crystallography*, 44(6), 1272–1276. <https://doi.org/10.1107/S0021889811038970>.
- Monkhorst, H. J. & Pack, J. D. (1976). Special points for Brillouin-zone integrations. *Physical Review B*, 13, 5188–5192. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.13.5188>.
- Mun, J., Sushko, P. V., Brass, E., Zhou, C., Kisslinger, K., Qu, X., Liu, M., & Zhu, Y. (2024). Probing Oxidation-Driven Amorphized Surfaces in a Ta(110) Film for Superconducting Qubit. *ACS Nano*, 18(1), 1126–1136. <https://doi.org/10.1021/acsnano.3c10740>.
- Myers, S., Lin, J., Souza, R. M., Sproul, W. D., & Moore, J. J. (2013). The to phase transition of tantalum coatings deposited by modulated pulsed power magnetron sputtering. *Surface and Coatings Technology*, 214, 38–45. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2012.10.061>.
- Pechal, M., Arrangoiz-Arriola, P., & Safavi-Naeini, A. H. (2018). Superconducting circuit quantum computing with nanomechanical resonators as storage. *Quantum Science and Technology*, 4(1), 1–10. <https://doi.org/10.1088/2058-9565/aadc6c>.
- Perdew, J. P., Burke, K., & Ernzerhof, M. (1996). Generalized Gradient Approximation Made Simple. *Physical Review Lett.*, 77, 3865–3868. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.77.3865>.
- Pulidindi, K. & Ahuja, K. (2024). Superconducting Materials Market – by Product (Low Temperature, High Temperature), by End-User (Medical, Research & Development [Nuclear Fusion], Electronics, Transportation, Energy, Power) & Forecast, 2024–2032. In *Global Market Insights Inc.* <https://www.gminsights.com/industry-analysis/superconducting-materials-market>.
- Qian, G.-X., Martin, R. M., & Chadi, D. J. (1988a). First-principles study of the atomic reconstructions and energies of Ga- and As-stabilized GaAs(100) surfaces. *Physical Review B*, 38, 7649–7663. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.38.7649>.
- Qian, G.-X., Martin, R. M., & Chadi, D. J. (1988b). First-principles study of the atomic reconstructions and energies of Ga- and As-stabilized GaAs(100) surfaces. *Physical Review B*, 38, 7649–7663. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.38.7649>.
- Rairden, J. & Neugebauer, C. (1964). Critical temperature of niobium and tantalum films. *Proceedings of the IEEE*, 52(10), 1234–1238. <https://doi.org/10.1109/PROC.1964.3311>.
- Sadovskii, M. V. (2016). High-temperature superconductivity in FeSe monolayers. *Physics-Uspekhi*, 59(10), 1–21. <https://doi.org/10.3367/UFNe.2016.06.037825>.
- Shi, L., Guo, T., Su, R., Chi, T., Sheng, Y., Jiang, J., Cao, C., Wu, J., Tu, X., Sun, G., Chen, J., & Wu, P. (2022). Tantalum microwave resonators with ultra-high intrinsic quality factors. *Applied Physics Letters*, 121(24), 1–8. <https://doi.org/10.1063/5.0124821>.
- Strongin, M., Paskin, A., Schweitzer, D. G., Kammerer, O. F., & Craig, P. P. (1964). Surface Superconductivity in Type I and Type II Superconductors. *Physical Review Lett.*, 12, 442–444. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.12.442>.

- Wang, C., Li, X., Xu, H., Li, Z., Wang, J., Yang, Z., Mi, Z., Liang, X., Su, T., Yang, C., Wang, G., Wang, W., Li, Y., Chen, M., Li, C., Linghu, K., Han, J., Zhang, Y., ... , & Yu, H. (2022). Towards practical quantum computers: transmon qubit with a lifetime approaching 0.5 milliseconds. *npj Quantum Information*, 8(1), 1–6. <https://doi.org/10.1038/s41534-021-00510-2>.
- Wang, V., Xu, N., Liu, J.-C., Tang, G., & Geng, W.-T. (2021). VASPKIT: A user-friendly interface facilitating high-throughput computing and analysis using VASP code. *Computer Physics Communications*, 267, 1–19. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.cpc.2021.108033>.
- Wilson, M. N. (1981). *Practical Superconducting Materials*. Springer US, Boston, MA.
- Yan, W.-L., Sygnatowicz, M., Lu, G.-H., Liu, F., & Shetty, D. K. (2016). First-principles study on surface stability of tantalum carbides. *Surface Science*, 644, 24–28. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.susc.2015.09.003>.
- Yao, C. & Ma, Y. (2021). Superconducting materials: Challenges and opportunities for large-scale applications. *iScience*, 24(6), 1–17. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.isci.2021.102541>.
- Zhang, G., Wang, X., Xiong, Y., Shi, Y., Song, J., & Luo, D. (2013). Mechanism for adsorption, dissociation and diffusion of hydrogen in hydrogen permeation barrier of -Al₂O₃: A density functional theory study. *International Journal of Hydrogen Energy*, 38(2), 1157–1165. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2012.10.108>.
- Zier, M., Oswald, S., Reiche, R., Kozłowska, M., & Wetzig, K. (2004). Interface formation and reactions at Ta–Si and Ta–SiO₂ interfaces studied by XPS and ARXPS. *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, 137–140, 229–233. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.elspec.2004.02.060>.

Anexos

Certificados de las participaciones en congresos y eventos científicos.



Certificate of Attendance

APS Global Physics Summit 2025
3/16/2025 - 3/21/2025

This is to certify that

Jose Gutierrez Londoño

attended the American Physical Society's
APS Global Physics Summit 2025.

Ligette Rogers
APS Meetings Department

The Center for Nanoscience and Nanotechnology of UNAM
extends the

Certificate
of Participation
awarded to

Jose Daniel Gutierrez

For his participation in the VII Colloquium on Computational Simulations in Virtual
Sciences, and successfully complete the short course of "Non-Covalent Interactions"

August 26-30, 2024

JONATHAN GUERRERO SÁNCHEZ
President of the Organizing
Committee

FERNANDO ROJAS ÍÑIGUEZ
Director of CNyN-UNAM

Certificado

DE RECONOCIMIENTO A:

Jose Daniel Gutierrez Londoño

Por completar el curso corto "Introducción a la Teoría del Funcional de la Densidad (DFT)" los días 30/07/24 y 01/08/24 impartido por el Dr. Héctor Noé Fernández Escamilla.



Dr. Héctor Noé Fernández Escamilla
UANL




Dr. Fernando Rojas Íñiguez
Director CNyN-UNAM



Sociedad Mexicana de Ciencia y Tecnología de Superficies y Materiales A. C.

La Sociedad Mexicana de Ciencia y Tecnología de Superficies y Materiales, A.C., otorga el presente reconocimiento a:

Jose Daniel Gutiérrez Londoño

CNyN-UNAM

Por su valiosa participación con el tema: Simulaciones Computacionales: Comprendiendo Interacciones entre Materiales **Science Outreach**, "XVII International Conference on Surfaces, Materials and Vacuum".



Cristo Manuel Yee Rendón
Presidente SMCTSM

