

UNIVERSIDAD NACIONAL DE LA PLATA

TRABAJO DE DIPLOMA

---

**Orden de carga en un sistema  
puramente magnético: *hielos de spin***

---

Pamela C. GURUCIAGA

*Director:* Dr. Rodolfo A. BORZI

*Trabajo de diploma presentado para optar  
por el título de Licenciada en Física*

Departamento de Física - INIFTA  
Facultad de Ciencias Exactas



Marzo de 2013



## *Resumen*

En el año 1931, P. A. M. Dirac postuló la existencia de monopolos magnéticos, partículas fuente del campo magnético. De esta manera, la equivalencia entre campo eléctrico y campo magnético resulta total, dotando de una belleza aún más grande a la teoría del electromagnetismo. Si bien estos monopolos magnéticos nunca han sido detectados, recientemente se han encontrado entidades con características similares en materia condensada, que nacen del comportamiento colectivo de los componentes de un cierto tipo de materiales magnéticos frustrados conocidos como *hielos de spin*.

¿Hasta qué punto puede extenderse la analogía entre estos monopolos magnéticos y las cargas eléctricas? ¿Será posible la existencia de cristales magnéticos, similares a los cristales iónicos? Para responder estas y otras preguntas, estudiamos los hielos de spin a través de simulaciones computacionales utilizando tanto el modelo a primeros vecinos como el dipolar, que se reinterpretan como monopolos no interactuantes, el primero, y monopolos que interactúan coulombianamente, el segundo. De este modo, obtenemos los diagramas de fases temperatura vs. densidad de carga magnética en ambos casos, y analizamos las fases y transiciones presentes.



# *Agradecimientos*

A Chufo, por la paciencia y el apoyo durante la realización de este trabajo, y por ser uno de los mejores docentes que he tenido.

A Tomás Grigera y Daniel Cabra, por aceptar ser jurados de este Trabajo de Diploma.

A la Comisión de Investigaciones Científicas, por financiar este plan de investigación con una Beca de Entrenamiento.

A mis compañeros de la facu, por hacer estos años de carrera mucho más divertidos e interesantes. A Ale, especialmente, por ser el mejor compañero de estudio que podría haber pedido.

A mis amigos del colegio, de la facu, del ETT, de Shan Miguel y de la vida, por distraerme de toda esta locura.

A mi familia, por darme las oportunidades y la libertad para elegir mi camino.

A Martín, por ser y estar.



# Índice general

<b>Resumen</b>	<b>III</b>
<b>Agradecimientos</b>	<b>V</b>
<b>Índice de figuras</b>	<b>IX</b>
<b>1. Introducción</b>	<b>1</b>
1.1. Frustración . . . . .	5
1.2. Hielo y entropía de Pauling . . . . .	8
1.3. Hielos de spin . . . . .	9
1.3.1. Modelo a primeros vecinos . . . . .	11
1.3.2. Modelo dipolar . . . . .	12
1.3.3. Monopolos magnéticos en hielos de spin . . . . .	13
<b>2. Transiciones de fase y simulaciones computacionales</b>	<b>17</b>
2.1. Transiciones de fase . . . . .	17
2.1.1. Exponentes críticos y clases de universalidad . . . . .	19
2.1.2. Un caso especial: percolación . . . . .	21
2.2. Método Monte Carlo . . . . .	22
2.2.1. Cadenas de Markov, ergodicidad y balance detallado . . . . .	23
2.2.2. Algoritmo de Metropolis para sistemas magnéticos . . . . .	23
2.2.3. Sumas de Ewald . . . . .	25
2.2.4. El programa utilizado . . . . .	26
2.3. Análisis de sistemas de tamaño finito . . . . .	27
2.4. Dinámica de tiempos cortos . . . . .	31
<b>3. Estudio a primeros vecinos</b>	<b>33</b>
3.1. Primer acercamiento . . . . .	33
3.2. De la naturaleza de la transición . . . . .	34
3.2.1. Efectos de tamaño finito . . . . .	35
3.2.2. Estudios de dinámica crítica . . . . .	35
3.3. Diagrama de fases a primeros vecinos . . . . .	36
<b>4. Estudio con interacciones de largo alcance</b>	<b>45</b>
4.1. Primer acercamiento . . . . .	45
4.2. Orden de las transiciones . . . . .	47
4.3. Diagrama de fases con interacciones de largo alcance . . . . .	48
4.4. Interacciones y correlaciones entre monopolos . . . . .	49

---

4.5. Sobre el equilibrio . . . . .	51
<b>5. Conclusiones y perspectivas</b>	<b>63</b>
<b>Bibliografía</b>	<b>65</b>

# Índice de figuras

1.1. Magnetización en ZFC-FC para $Ho_2Sn_2O_7$ . . . . .	3
1.2. Posición de los hielos de spin conocidos en el diagrama de fases . . . . .	4
1.3. Diagrama de fases a número de monopolos simples fijo . . . . .	5
1.4. Ejemplos sencillos de sistemas con y sin frustración . . . . .	6
1.5. Degeneración en una red tetraédrica de spines con gran anisotropía . . . . .	7
1.6. Estructura hidrógenos-oxígenos en el hielo convencional . . . . .	8
1.7. Celda unidad de la red de pirocloro . . . . .	10
1.8. Mapeo hielo convencional - hielo de spin . . . . .	11
1.9. Calor específico y entropía de $Dy_2Ti_2O_7$ . . . . .	13
1.10. Diagrama de fases de los hielos de spin . . . . .	14
1.11. Mapeo esquema de spines - modelo de mancuernas . . . . .	15
1.12. Monopolos separados al invertir una cadena de spines/mancuernas . . . . .	16
2.1. Parámetro de orden en transiciones de fase . . . . .	18
2.2. Energía libre en transiciones de fase . . . . .	19
2.3. Efectos de tamaño finito en transiciones de fase de segundo orden . . . . .	28
2.4. Susceptibilidades en transiciones de fase de primer orden en sistemas in- finitos . . . . .	30
2.5. Dinámica de tiempos cortos desde el orden . . . . .	31
3.1. Resultados en función de la temperatura para distintos $J_{nn}$ a primeros vecinos . . . . .	38
3.2. Calor específico y entropía con $J_{nn} = -1,24K$ a primeros vecinos . . . . .	39
3.3. Resultados y efectos de tamaño finito con $J_{nn} = -2,5K$ a primeros vecinos . . . . .	40
3.4. Comparación simulaciones - predicción Ising 3D a primeros vecinos . . . . .	41
3.5. Escaleo del parámetro de orden y la susceptibilidad . . . . .	42
3.6. Dinámica de tiempos cortos para determinar la temperatura crítica . . . . .	42
3.7. Diagrama de fases $T/D_{nn}$ vs. $J_{nn}/D_{nn}$ a primeros vecinos . . . . .	43
4.1. Resultados en función de la temperatura para $ J_{nn}  \leq 2,14K$ con IDLA . . . . .	46
4.2. Resultados en función de la temperatura para $ J_{nn}  \geq 2,147K$ con IDLA . . . . .	52
4.3. Calor específico y entropía con $J_{nn} = -2,06K$ con IDLA . . . . .	53
4.4. Efectos de tamaño finito en transición de segundo orden con IDLA . . . . .	53
4.5. Comparación simulaciones - predicción Ising 3D con IDLA . . . . .	54
4.6. Efectos de tamaño finito en transición de primer orden con IDLA . . . . .	55
4.7. Escaleo en transición de primer orden con IDLA . . . . .	55
4.8. Resultados en función de la densidad de carga magnética con IDLA . . . . .	56
4.9. Diagrama de fases $T$ vs. $\rho_Q$ con interacciones dipolares . . . . .	57

---

4.10. Diagrama de fases temperatura vs. densidad de carga <i>real</i> . . . . .	58
4.11. Diagrama de fases densidad de monopolos vs. temperatura con modelo de plasma de dos componentes . . . . .	58
4.12. Resultados en función de la densidad de carga magnética a primeros vecinos	59
4.13. Diagrama de fases $T$ vs. $\rho_Q$ a primeros vecinos . . . . .	60
4.14. Corridas ZFC-FC en función de la temperatura para algunos $J_{nn}$ . . . . .	61
4.15. Corridas ZFC-FC en función de la densidad de carga para algunos $J_{nn}$ . .	62

# Capítulo 1

## Introducción

La descripción de un material en términos de excitaciones fundamentales o cuasipartículas es una técnica clave en el campo de la materia condensada. La utilidad de este acercamiento estriba en que permite simplificar el estudio de un sistema de muchos cuerpos interactuantes al reemplazarlo por unas pocas partículas ficticias que interactúan débilmente. Por ejemplo, el movimiento de los electrones viajando a través de un semiconductor se ve afectado de forma muy compleja por las interacciones con los demás constituyentes; sin embargo, este mismo problema puede interpretarse como uno en el que electrones de masa distinta a la convencional viajan libremente por el espacio. Otros casos tradicionales son los fonones (excitaciones colectivas asociadas con la vibración de los átomos en una red cristalina), los huecos (cuasipartículas definidas como la ausencia de un electrón en la banda de valencia de un semiconductor), los magnones (excitaciones colectivas del spin de los electrones en una red cristalina), etc.

El segundo motivo en que se basa el éxito de este acercamiento no es cualitativamente inferior al primero. Distintos materiales, con distintos estados fundamentales, pueden dar lugar a nuevas cuasipartículas, algunas de ellas con características sorprendentes. Existe así el fenómeno de *fraccionalización*, en el que los números cuánticos de las excitaciones fundamentales de un sistema de muchos cuerpos resultan no ser múltiplos enteros de los de los constituyentes [1]. El caso más conocido de fraccionalización corresponde al efecto Hall cuántico, en el que se encuentran cuasipartículas con carga fraccionaria  $e/q$ ,  $q \in Z$  [2]. Otro ejemplo es el que mencionaremos a continuación, y que nos ocupará por el resto del trabajo.

Recientemente, se han encontrado partículas análogas a los monopolos magnéticos predichos por P. A. M. Dirac en 1931 [3]. No se encuentran en el vacío, sin embargo, sino como entidades que emergen del comportamiento colectivo de los componentes de un tipo de materiales magnéticos frustrados (reales y teóricos), llamados *hielos de*

*spin*.<sup>1</sup> Debido a la frustración de las interacciones presentes, estos sistemas presentan una degeneración del estado fundamental que crece exponencialmente con el tamaño del sistema. Las excitaciones asociadas a estos múltiples estados fundamentales son defectos locales en la estructura magnética, que tienen la peculiaridad de interactuar entre sí obedeciendo aproximadamente una ley de Coulomb. Esto las asemeja a cargas magnéticas no conservadas o *monopolos magnéticos*, con cuatro tipos posibles de carga: positiva o negativa, simple o doble, en ambos casos. La rotación de momentos magnéticos resulta así equivalente a la creación, aniquilación o traslación de monopolos en una red discreta.

Los primeros hielos de spin descubiertos fueron  $Ho_2Ti_2O_7$  [4] y  $Dy_2Ti_2O_7$  [5]. En el primer caso, M. J. Harris y colaboradores mostraron, a través de scattering de neutrones, que no había evidencias de ninguna clase de ordenamiento del material hasta temperaturas del orden de  $350mK$ , en ausencia de campo magnético aplicado. A través de espectroscopía de relajación de spin de muones ( $\mu SR$ ), lograron verificar esto hasta  $50mK$  [6].

Posteriormente, se demostró que también  $Ho_2Sn_2O_7$  [7] y  $Dy_2Sn_2O_7$  [8] eran hielos de spin. En su trabajo del año 2000, K. Matsuhura y colaboradores estudiaron experimentalmente la dinámica de  $Ho_2Sn_2O_7$  a través de medidas ZFC-FC<sup>2</sup> [7]. Allí, encontraron que por debajo de los  $750mK$ , aproximadamente, el material se encuentra fuera del equilibrio (figura 1.1). Esto da cuenta de que el estado fundamental degenerado de estos hielos de spin no es, realmente, el estado fundamental; a bajas temperaturas, se produce un congelamiento de la dinámica que no permite al sistema recorrer satisfactoriamente el espacio de fases y encontrar, así, el verdadero mínimo de la energía.

En 2009, D. J. P. Morris *et al.* detectaron por primera vez experimentalmente monopolos magnéticos, unidos por cuerdas de Dirac, en muestras de  $Dy_2Ti_2O_7$  [9]. Esto despierta numerosas nuevas preguntas sobre estas cuasipartículas, entre ellas una que intentaremos ayudar a responder a lo largo de este trabajo: ¿cuánto se parecen los monopolos magnéticos a cargas convencionales?

La cantidad de monopolos presentes en un dado material se encuentra gobernada por el potencial químico de monopolos, determinado por la estructura y la química del material. Si fuera posible tener una densidad lo suficientemente alta de monopolos, las

<sup>1</sup>El nombre se debe al isomorfismo existente entre estos sistemas y el hielo convencional, que explicaremos más adelante.

<sup>2</sup>*Zero-field cooling - field cooling*, en inglés. Esta técnica consiste en enfriar un material en ausencia de campo magnético externo por debajo de su temperatura de bloqueo  $T_b$ . Luego, se aplica un campo magnético pequeño y se calienta el sistema hasta  $T > T_b$ , para luego volver a enfriarlo con campo hasta  $T < T_b$ . Por debajo de la temperatura de bloqueo la dinámica del material se encuentra “congelada”, en el sentido de que no es capaz de seguir al campo externo en el tiempo de observación y por eso puede verse en las curvas una dependencia con la historia (histéresis).

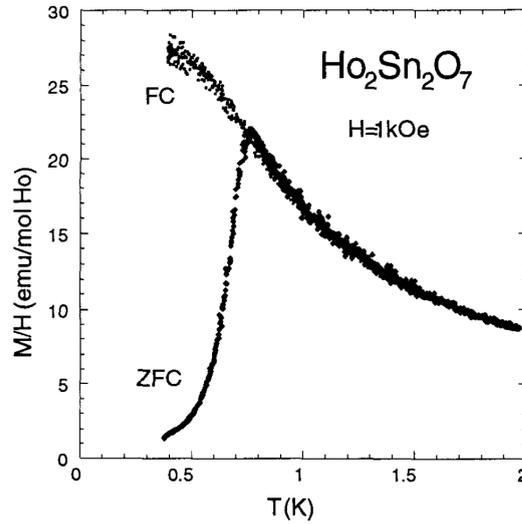


FIGURA 1.1: Comportamiento de la magnetización en medidas experimentales ZFC-FC en  $Ho_2Sn_2O_7$  [7]. Se observa que el material se encuentra fuera del equilibrio a temperaturas menores a  $750mK$ .

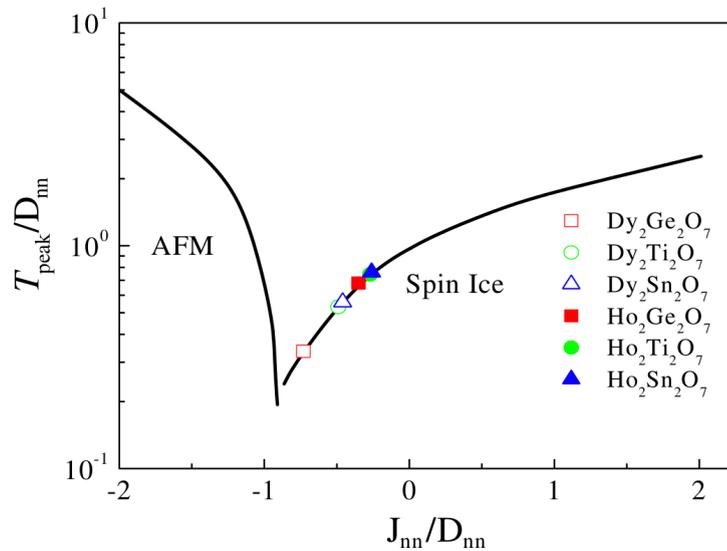


FIGURA 1.2: Dónde se encuentran los hielos de spin conocidos en el diagrama de fases teórico [10]. Mientras más negativo sea el parámetro  $J_{nn}$ , mayor será la densidad de monopolos magnéticos en el material.

correlaciones entre ellos podrían dar lugar a nuevos fenómenos magnéticos, como por ejemplo el ordenamiento de cargas como si se tratara de cargas eléctricas en un cristal iónico. En los materiales mencionados hasta ahora, el potencial químico resulta muy pequeño y los coloca en el régimen de baja correlación. Recientemente, H. D. Zhou y colaboradores desarrollaron una técnica para sintetizar dos nuevos hielos de spin,  $Dy_2Ge_2O_7$  y  $Ho_2Ge_2O_7$ , el primero de ellos con un potencial químico mucho mayor [11]. En la figura 1.2 se observa la posición de todos estos materiales [10] en el diagrama de fases teórico, del cual hablaremos más adelante. Por ahora, sólo comentaremos que el

parámetro  $J_{nn}$  es quien juega el papel de potencial químico, y que mientras más negativo resulte éste, mayor será la densidad de monopolos.

Desde el punto de vista teórico, R. A. Borzi *et al.* encontraron un rico diagrama de fases realizando simulaciones a densidad de monopolos simples fija (figura 1.3) [12], utilizando los parámetros correspondientes al  $Dy_2Ti_2O_7$ . A bajas temperaturas (pero superiores a  $180mK$ ), encontraron una transición de primer orden entre un fluido con una muy baja concentración de monopolos y un cristal de cargas magnéticas, que pueden coexistir; a temperaturas mayores a  $450mK$  hallaron una transición de segundo orden entre el fluido de monopolos “común”, completamente desordenado, y un “fluido de Néel”, en el que la densidad es homogénea pero existe una tendencia de los monopolos positivos y negativos a ocupar preferentemente subredes distintas.<sup>3</sup> En el domo (línea punteada), esta transición de segundo orden se transforma en la de primer orden mencionada anteriormente. Finalmente, en los  $180mK$  y a bajas densidades encontraron una transición de ordenamiento en el sistema de spines, que desde el punto de vista de monopolos se interpreta como un cambio en la estructura interna del vacío en aquellos sectores del material libres de monopolos. Un aspecto un tanto artificial de este trabajo, en que se gobierna la densidad de monopolos simples en lugar del potencial químico de monopolos, es que el modelo explícitamente prohíbe la aparición de monopolos dobles, que resultarían más favorecidos a baja temperatura para  $J_{nn}$  lo bastante negativo.

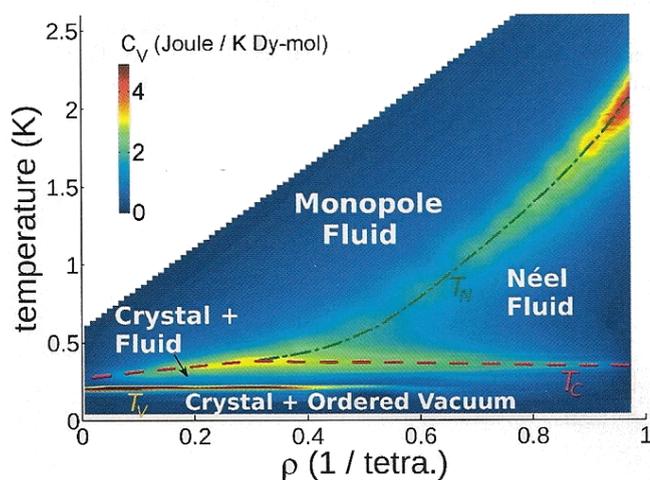


FIGURA 1.3: Diagrama de fases a número de monopolos simples fijo [12]. Las distintas fases y transiciones se explican en el texto principal.

En este contexto se enmarca el presente trabajo. Nuestro objetivo es estudiar, a través de simulaciones computacionales, el diagrama de fases temperatura vs. densidad de carga magnética, no con una cantidad de monopolos fija como en [12] sino más realísticamente,

<sup>3</sup>A lo largo del trabajo hablamos de un “orden de Néel” refiriéndonos a un ordenamiento alternado de monopolos magnéticos  $+ - + -$  análogo al orden antiferromagnético de spines  $\uparrow\downarrow\uparrow\downarrow$ .

dejando evolucionar el sistema con la libertad de crear y aniquilar monopolos según dicte la competencia entre energía y entropía.

En lo que sigue de este capítulo, pasamos a discutir el marco teórico que será necesario para comprender el trabajo. Así, introducimos el concepto de frustración y lo aplicamos al caso del hielo convencional, extendiéndolo luego a los hielos de spin. Desarrollamos varios modelos que aplicaremos más adelante y explicamos de forma sencilla cómo aparecen las cuasipartículas (monopolos) que dominan la física a bajas temperaturas en el problema que queremos atacar.

## 1.1. Frustración

En general, en Física tratamos con interacciones de a pares de partículas. En un sistema de muchas partículas, no siempre es posible encontrar el mínimo de la energía de interacción de todos los pares; en ese caso, se dice que el sistema se encuentra *frustrado*. Este fenómeno es especialmente común en el contexto del magnetismo, manifestándose en las interacciones entre momentos dipolares magnéticos (que a lo largo de este trabajo llamaremos simplemente *spines*) en una red cristalina.

El modelo más sencillo para la interacción entre spines es el modelo de Ising. Allí, cada spin puede solamente tomar dos valores,  $S_i = \pm 1$ , y el hamiltoniano del sistema está dado por

$$H = -J \sum_{\langle i,j \rangle} S_i S_j \quad (1.1)$$

donde  $J$  es la energía de intercambio y la suma se realiza sobre todos los primeros vecinos. Si  $J > 0$ , la interacción es ferromagnética (FM) y los spines tienden a alinearse paralelos, minimizando así la energía. Por el contrario, si  $J < 0$  los spines prefieren ubicarse antiparalelos, respondiendo a una interacción antiferromagnética (AF).

Una manera de inducir frustración en un sistema es combinando adecuadamente interacciones FM y AF. Otra forma es la conocida como geométrica, donde la frustración proviene de la topología de la red en la que se encuentran los spines. En la figura 1.4 se muestra un ejemplo sencillo de cada una.

Un caso de frustración geométrica un poco más complejo es el de spines acoplados ferromagnéticamente en una red tetraédrica. Supondremos, por la relevancia de este caso particular en el trabajo que sigue, que existe una fuerte anisotropía que los obliga a ubicarse a lo largo del eje fácil de cada vértice (esto es, cada spin sólo puede apuntar hacia

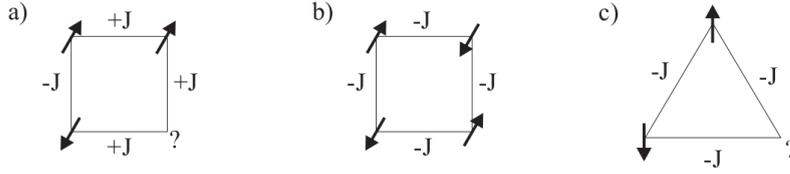


FIGURA 1.4: Ejemplos de sistemas (a) con frustración debida a la mezcla de interacciones AF y FM, y (b) sin frustración. (c) Frustración geométrica en un triángulo. Figura extraída de [13].

adentro o hacia afuera del tetraedro). Con estas condiciones, la configuración de menor energía es un arreglo de spines no colineales en el que dos apuntan hacia adentro y dos hacia afuera.<sup>4</sup> Como se observa en la figura 1.5, existen seis configuraciones de mínima energía. Esta degeneración del estado fundamental es otra característica de los sistemas frustrados.

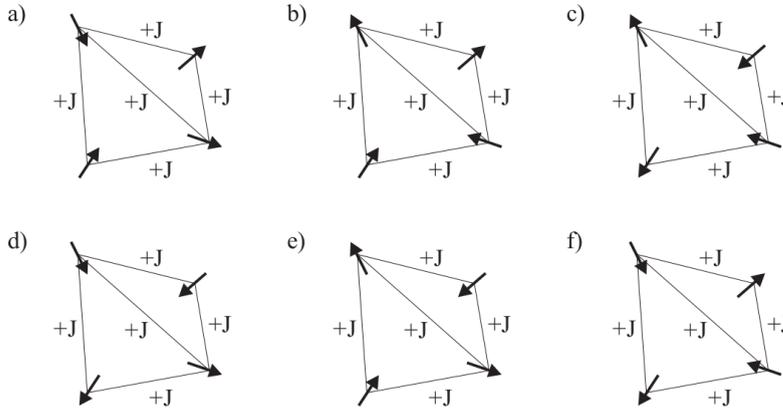


FIGURA 1.5: El caso de spines con acoplamiento FM en un tetraedro con gran anisotropía a lo largo del eje [111] local posee seis configuraciones de mínima energía distintas. Figura extraída de [13].

En el ensamble canónico, la probabilidad del microestado  $\mu$  está dada por

$$p_\mu = \frac{e^{-\beta E_\mu}}{\sum_\nu e^{-\beta E_\nu}} = \frac{1}{Z} e^{-\beta E_\mu} \quad (1.2)$$

con  $\beta = \frac{1}{k_B T}$ . De este modo, vemos que a medida que  $T \rightarrow 0$  los estados con energía mayor a la del estado fundamental ( $E_0 = 0$ ) mueren exponencialmente. En este límite, la entropía está dada por

$$S \equiv k_B \ln \Omega \quad (1.3)$$

<sup>4</sup>Con un acoplamiento AF, el estado fundamental sería todos los spines hacia adentro o todos los spines hacia afuera.

donde  $\Omega$  es el número de microestados accesibles del sistema a  $T = 0$ . Si el estado fundamental es no degenerado, el número de microestados accesibles decrecerá con la temperatura hasta alcanzar  $\Omega = 1$  y, por lo tanto,  $S(T \rightarrow 0) = 0$ . Lo mismo ocurre si el estado fundamental tiene una degeneración finita  $\Omega_0$ , donde la entropía por sitio es igual a cero en el límite termodinámico. Esto está de acuerdo con la Tercera Ley de la Termodinámica. Una aparente ruptura de esa ley surge en los sistemas donde la degeneración del estado fundamental crece con el tamaño del sistema. Este fenómeno da lugar a una entropía residual  $S(T \rightarrow 0) \neq 0$ , hecho que analizaremos a continuación en un ejemplo.

## 1.2. Hielo y entropía de Pauling

El hielo convencional, es decir, agua sólida, es un ejemplo clásico de un material frustrado fuera del campo del magnetismo. Como veremos a continuación, la gran diferencia en las escalas de energía implicadas logra frustrar grados de libertad de baja energía y da por resultado un estado fundamental degenerado.

La energía de enlace de las moléculas de  $H_2O$  es tan grande, que su estructura se mantiene prácticamente inalterada al solidificar: en la fase hexagonal  $I_h$  del hielo (la más común), los aniones  $O^{2-}$  forman una estructura tetraédrica, cuyos ángulos de  $109^\circ$  permiten acomodar casi perfectamente el ángulo de  $104,5^\circ$  del enlace  $H - O - H$ . Como la distancia entre aniones es de  $2,76\text{\AA}$ , mientras que la longitud del enlace  $H - O$  en una molécula de  $H_2O$  es de tan solo  $0,96\text{\AA}$ , resulta que los protones  $H^+$  no deben ubicarse en el punto medio del enlace  $O - O$ , sino que existen dos posiciones equivalentes, cerca de uno u otro oxígeno. Por otro lado, debido a que en la estructura hexagonal cada anión se encuentra rodeado por otros cuatro, hay en promedio un hidrógeno por enlace  $O - O$ . En la figura 1.6 se muestra la estructura que forman las moléculas de agua en la fase  $I_h$ .

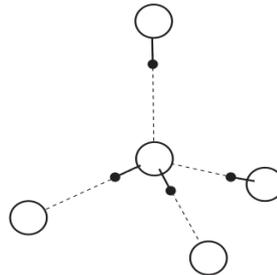


FIGURA 1.6: Ubicación de los hidrógenos en torno a un oxígeno en el hielo convencional, respetando las reglas del hielo de Bernal-Fowler. Figura extraída de [14].

Si el problema fuera sólo electrostático, los protones se acomodarían de modo de estar lo más lejos posible; sin embargo, la integridad de la molécula de  $H_2O$  le confiere

a la interacción protón-protón una energía efectiva baja, frustrando el sistema. Todo lo anterior queda expresado en las *reglas del hielo* de Bernal-Fowler [15]:

1. Hay un único hidrógeno por enlace  $O - O$ .
2. Hay solamente dos hidrógenos cerca de cada oxígeno.

Estas reglas, que pueden reescribirse como “dos protones cerca y dos lejos de cada oxígeno”, pueden ser satisfechas por muchas configuraciones distintas, dando lugar a un estado fundamental cuya degeneración crece con el tamaño del sistema.

En el año 1935, Pauling publicó el cálculo teórico de la entropía residual del hielo [16], que ya había sido medida por Giauque [17] en 1933. El argumento es el siguiente. Supongamos que tenemos un cristal de  $N$  moléculas de  $H_2O$ . La primera regla del hielo permite seis orientaciones para cada molécula ubicada en un lugar de la red, de forma que, si olvidamos la segunda regla, hay  $6^N$  posibles arreglos. Existen  $2N$  enlaces  $O - O$ ; cada uno, en cada arreglo, se encuentra en uno de cuatro estados equiprobables:  $HH$  (dos protones),  $H-$  (protón cerca de un oxígeno),  $-H$  (protón cerca del otro oxígeno) o  $--$  (ningún protón). Sólo dos de estas posibilidades satisfacen la segunda regla del hielo, así que hay una probabilidad  $1/2$  de que un enlace esté correctamente formado y, por lo tanto, la cantidad de configuraciones aceptables, dentro de los  $6^N$  posibles arreglos originales, será

$$\Omega = 6^N \left(\frac{1}{2}\right)^{2N} = \left(\frac{3}{2}\right)^N \quad (1.4)$$

Este número de microestados da una entropía residual por mol de moléculas de  $H_2O$  de  $S(T \rightarrow 0) = R \ln \frac{3}{2} = 0,81 \text{ cal mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$ , donde  $R$  es la constante universal de los gases ideales. Este resultado, conocido como entropía de Pauling, se encuentra perfectamente de acuerdo con el valor de  $0,85 \pm 0,05 \text{ cal mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$  determinado por Giauque y Stout [18]. Esto no representa una contradicción con la Tercera Ley de la Termodinámica, sin embargo, puesto que alrededor de los  $60K$  debería ocurrir una transición de fase entre el hielo  $I_h$  y una fase ordenada, sin entropía de Pauling [14]. La entropía residual es, en realidad, la entropía de un sistema que se encuentra fuera del equilibrio puesto que no ha podido alcanzar la fase ordenada que le corresponde a  $T \rightarrow 0$ .

### 1.3. Hielos de spin

En los óxidos de la forma  $A_2B_2O_7$  (donde  $A$  es una tierra rara como  $Gd$ ,  $Dy$  o  $Ho$ , y  $B = Ti, Sn$ ) los iones trivalentes  $A^{3+}$  y los tetravalentes no magnéticos  $B^{4+}$  residen en

dos subredes de pirocloro independientes e interpenetradas. Esta estructura de pirocloro está formada por una red cúbica centrada en las caras con una base tetradrica de cuatro sitios, y puede entenderse como un conjunto de tetraedros “hacia arriba” y otros “hacia abajo” que comparten los vértices (figura 1.7). Debido al gran campo cristalino presente, el estado fundamental de los iones magnéticos consiste en un doblete con  $m_J = \pm J$ ,<sup>5</sup> con un primer grupo de estados excitados alejado unos  $300K$  [19]. Esto genera una gran anisotropía que, a bajas temperaturas, obliga a los momentos magnéticos a apuntar a lo largo de sus correspondientes ejes de cuantificación  $\hat{e}_i$  en las direcciones locales equivalentes por simetría a 111 (por ejemplo, -111, 1-11, etc.), y permite modelarlos como spines clásicos de Ising  $\boldsymbol{\mu}_i = \mu S_i \hat{e}_i$ , con  $S_i = \pm 1$  donde el signo + (-) corresponde al spin apuntando hacia afuera (adentro) de un tetraedro “hacia arriba”.

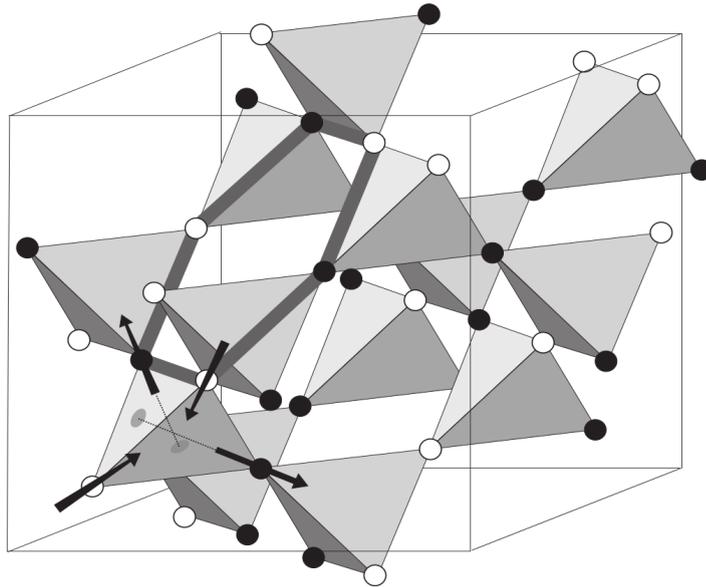


FIGURA 1.7: La red de pirocloro consiste de tetraedros unidos por sus vértices, en los cuales se ubican los spines. Por simplicidad, se simboliza con círculos blancos a los spines que apuntan hacia adentro de un tetraedro “hacia abajo” como el de la esquina inferior izquierda, y con círculos negros a los que apuntan hacia afuera. Figura extraída de [13].

Como se dijo previamente, los hielos de spin reciben este nombre por analogía con el hielo convencional, ya que puede establecerse un mapeo directo entre la ubicación de los  $H^+$  en el hielo y la dirección en la que apuntan los spines en la red de pirocloro (figura 1.8). De este modo, como veremos, la regla de Bernal-Fowler “dos protones cerca y dos protones lejos de cada oxígeno” se transforma en “dos spines hacia adentro y dos spines hacia afuera de cada tetraedro”.

<sup>5</sup>El momento angular total de un ion libre está caracterizado por dos números cuánticos,  $J$  y  $m_J = J, J-1, \dots, -(J-1), -J$ . El momento magnético observable es  $\mu = -g_J \mu_B m_J$ , donde  $g_L$  es el factor de Landé; si  $m_J = \pm J$ , se tiene un momento  $\mp g_J \mu_B J$  a lo largo del eje de cuantificación. Para el caso de  $Dy^{3+}$  y  $Ho^{3+}$  esto da aproximadamente  $10\mu_B$ , valor que usaremos a lo largo de este trabajo.

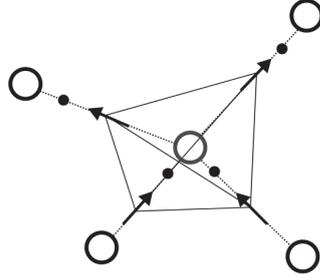


FIGURA 1.8: El desplazamiento de los átomos de hidrógeno (círculos negros) de la posición media entre oxígenos (círculos blancos) se mapea a los spines en la red de pirocloro. Figura extraída de [13].

El hamiltoniano utilizado para describir estos sistemas, que tiene en cuenta las interacciones de intercambio a primeros vecinos y las dipolares de largo alcance, es [20]

$$H = -J \sum_{\langle i,j \rangle} \hat{\mathbf{e}}_i \cdot \hat{\mathbf{e}}_j S_i S_j + Da^3 \sum_{i>j} \left[ \frac{\hat{\mathbf{e}}_i \cdot \hat{\mathbf{e}}_j}{|\mathbf{r}_{ij}|^3} - \frac{3(\hat{\mathbf{e}}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\hat{\mathbf{e}}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{|\mathbf{r}_{ij}|^5} \right] S_i S_j \quad (1.5)$$

La distancia entre primeros vecinos en la red de pirocloro es  $a \approx 3,54\text{\AA}$  en  $Dy_2Ti_2O_7$  y  $Ho_2Ti_2O_7$ , con lo que la constante de acoplamiento de las interacciones dipolares resulta  $D = \mu_0 \mu^2 / (4\pi a^3) \approx 1,4K$ . Debido a la orientación de los ejes locales,  $\hat{\mathbf{e}}_i \cdot \hat{\mathbf{e}}_j = -1/3$  y  $(\hat{\mathbf{e}}_i \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij})(\hat{\mathbf{e}}_j \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij}) = -2/3$ . Podemos entonces reescribir (1.5) como

$$H = \left( \frac{J}{3} + \frac{5D}{3} \right) \sum_{\langle i,j \rangle} S_i S_j + H_{>a}^{dip} \quad (1.6)$$

donde  $5D/3 \equiv D_{nn} \approx 2,35K$  y hemos separado el término a primeros vecinos de la interacción dipolar y agrupado el resto en  $H_{>a}^{dip}$  [14]. Por comodidad, definimos  $J_{eff} = (J + 5D)/3 = J_{nn} + D_{nn}$ .

### 1.3.1. Modelo a primeros vecinos

Trabajamos sobre el primer término de la ecuación (1.6), reescribiéndolo como

$$H_{nn} = \frac{J_{eff}}{6} \sum_{\Delta} (L_{\Delta})^2 - \frac{2N_{\Delta} J_{eff}}{3} \quad (1.7)$$

La suma se realiza sobre los  $N_{\Delta}$  tetraedros  $\Delta$ ;  $L_{\Delta}$  es el spin total en cada uno, definido como la suma del spin  $S_{\Delta}^{e_i}$  en cada vértice  $i$ ,

$$L_{\Delta} \equiv S_{\Delta}^{e_1} + S_{\Delta}^{e_4} + S_{\Delta}^{e_3} + S_{\Delta}^{e_4} \quad (1.8)$$

El estado fundamental de este sistema dependerá del signo de  $J_{eff}$ . Como adelantamos en la sección 1.1, si  $J_{eff} < 0$  ( $J_{nn}/D_{nn} < -1$ ), tenemos un AF efectivo y la mínima energía se obtiene cuando  $(L_{\Delta})^2$  es máximo: o bien todos los spines apuntan hacia adentro del tetraedro, o bien todos apuntan hacia afuera. Esto significa que, al enfriar el sistema, debería ocurrir (y lo estudiaremos en detalle en el capítulo 3) una transición de segundo orden hacia un estado ordenado de Néel [20]. Si  $J_{eff} > 0$  ( $J_{nn}/D_{nn} > -1$ ), por el contrario, se trata de un FM efectivo, en el cual el estado fundamental se obtiene a partir de la condición  $S_{\Delta}^{e_1} + S_{\Delta}^{e_4} + S_{\Delta}^{e_3} + S_{\Delta}^{e_4} = 0$ , es decir, dos spines hacia adentro y dos spines hacia afuera. Como hemos visto en la figura 1.5, existen seis maneras de obtener este resultado en cada tetraedro, lo cual da lugar a la entropía de Pauling de los hielos de spin.

### 1.3.2. Modelo dipolar

En el año 2000, B. C. den Hertog y M. J. P. Gingras utilizaron el método de sumas de Ewald para tener en cuenta la interacción de largo alcance entre los dipolos, y ajustaron el valor de  $J_{nn}$  del modelo teórico con los datos experimentales de  $Dy_2Ti_2O_7$  (figura 1.9) y  $Ho_2Ti_2O_7$ , obteniendo  $-1,24K$  y  $-0,55K$ , respectivamente [20]. Ambos materiales resultan ser FM efectivos y presentan entropía residual a bajas temperaturas. Ahora bien, resulta llamativo que las interacciones de largo alcance contenidas en  $H_{>a}^{dip}$  no sean capaces de levantar la degeneración del estado fundamental generada, como vimos antes, por la parte de primeros vecinos, y que el sistema no pueda ordenarse. Más aún, en presencia de interacciones de largo alcance, la transición hacia un orden “todos hacia adentro / todos hacia afuera” se extiende ligeramente sobre la región donde la interacción dipolar FM a primeros vecinos es mayor que el intercambio AF a primeros vecinos (es decir, a  $J_{nn}/D_{nn} > -1$ , que corresponde a  $J_{eff}$  positivo aunque muy pequeño).

Al igual que el material real, el modelo dipolar cae fuera del equilibrio para muy bajas temperaturas cuando es implementado con una dinámica en la que se rotan los spines de a uno. En la figura 1.10 se muestra el diagrama de fases hallado por R. G. Melko y colaboradores a través de simulaciones computacionales con un algoritmo utilizado también en el caso del hielo convencional, en el que varios spines son rotados simultáneamente (*algoritmo de gusano*) [13]. De este modo, lograron estabilizar los hielos de spin por debajo de  $180mK$  (recordemos la figura 1.1), descubriendo que el sistema se ordena a

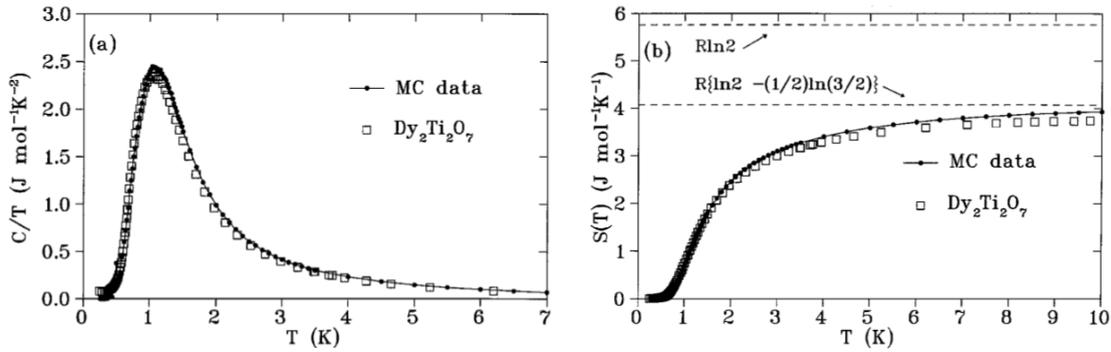


FIGURA 1.9: Datos experimentales [5] y resultados de simulaciones computacionales [20] para (a) el calor específico y (b) la entropía de  $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ .

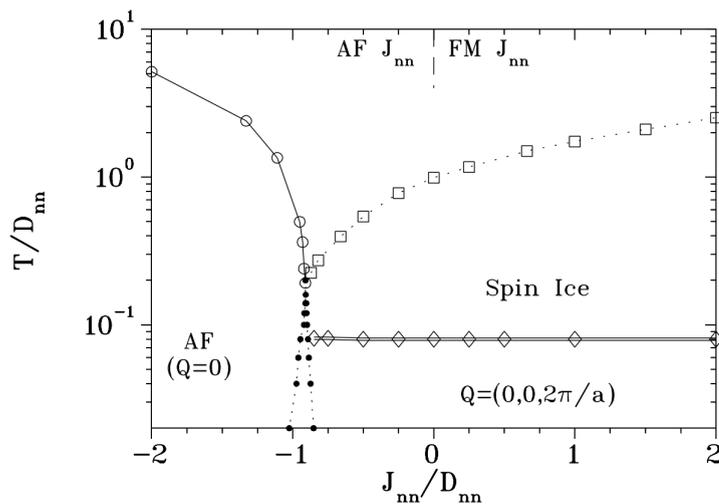


FIGURA 1.10: R. G. Melko utilizó un algoritmo computacional novedoso [13] para obtener este nuevo diagrama de fases. Se encuentran presentes la transición de segundo orden hacia el orden de Néel predicha por el modelo a primeros vecinos, que se extiende ligeramente hasta  $J_{nn}/D_{nn} > -1$ , y dos transiciones de primer orden: entre entre la fase de hielo de spin y el estado fundamental no degenerado, y la región  $J_{nn}/D_{nn} \approx -0,9$ , donde la transición de segundo orden pasa a ser de primero.

través de una transición de fase de primer orden.<sup>6</sup> Además, encontraron una transición de fase de primer orden hacia el orden de Néel en la región en  $J_{nn}/D_{nn} \approx -0,9$ .

### 1.3.3. Monopolos magnéticos en hielos de spin

Hemos mencionado anteriormente que los hielos de spin sirven de hogar a entidades con propiedades similares a las de monopolos magnéticos. Puesto que uno de nuestros objetivos es interpretar el diagrama de fases de los hielos de spin en términos de la densidad de estas cargas magnéticas, nos detenemos ahora a explicar brevemente su origen. Una manera sencilla de visualizar esto es a través de una formulación aproximada:

<sup>6</sup>Esta transición es la misma señalada a baja temperatura en la figura 1.3.

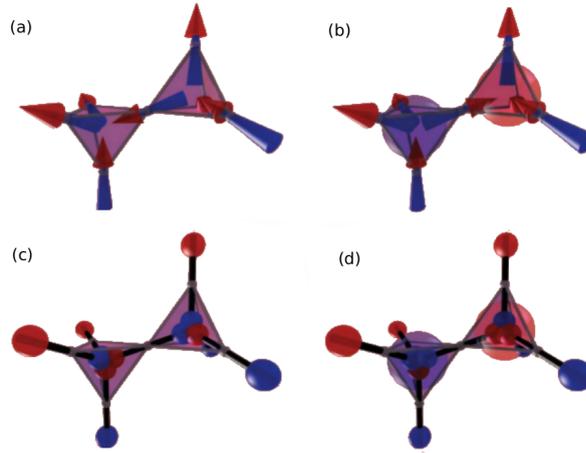


FIGURA 1.11: Pasaje del esquema de spines al modelo de mancuernas: (a) spines en la configuración dos hacia adentro y dos hacia afuera se mapean a (c) tetraedros neutros, mientras que (b) spines que no respetan las reglas del hielo (tres hacia afuera y uno hacia adentro, y viceversa) forman (d) monopolos simples. Un monopol doble corresponde a una configuración todos hacia adentro o todos hacia afuera. Figura extraída de [21].

el *modelo de mancuernas* (*dumbbell model*, en inglés) [21]. La idea es reemplazar cada momento magnético  $\mu_i$  en la red de pirocloro por una mancuerna formada por dos monopolos de carga igual y opuesta  $q_m = \pm\mu/a_d$ , donde  $a_d$  es la longitud de los enlaces de la red de diamante que forman los centros de los tetraedros. Estos monopolos se ubican a una distancia  $a_d/2$  del sitio de la red de pirocloro, en direcciones contrarias sobre los ejes [111] locales (en otras palabras, viven en el centro de los tetraedros). Las dos posibles maneras de acomodar las mancuernas en cada enlace de diamante reproducen las dos posibles orientaciones del dipolo original. En la figura 1.11 se muestra gráficamente este mapeo.

En este nuevo esquema, la energía antes dada por el hamiltoniano (1.5) pasa a estar representada por

$$H = \frac{\mu_0}{4\pi} \sum_{\alpha < \beta} \frac{Q_\alpha Q_\beta}{r_{\alpha\beta}} + \frac{v_0}{2} \sum_{\alpha} Q_\alpha^2 \quad (1.9)$$

donde  $Q_\alpha \equiv \sum_{i \in \alpha} q_i = 0, \pm 2q_m, \pm 4q_m$  es la carga total en el centro del tetraedro  $\alpha$  [1] y actúa como fuente del campo magnético  $\mathbf{B}$  [9]. El primer término corresponde a las interacciones de pares de las cargas magnéticas, dadas por la ley de Coulomb magnética; la auto-energía del segundo es necesaria para mapear correctamente la interacción a primeros vecinos de los spines. Existen correcciones  $O(1/r^5)$ , pero resultan despreciables debido a la distancia  $a_d$  entre los monopolos.

El estado fundamental de este sistema se obtiene cuando  $Q_\alpha = 0 \forall \alpha$ , es decir, cuando se orientan las mancuernas de forma que todos los tetraedros resultan neutros. Esta es la

realización de la vieja regla del hielo “dos hacia adentro y dos hacia afuera”. El modelo de mancuernas nos permite entonces sacar una primera conclusión: la entropía a bajas temperaturas coincide con la de Pauling (derivada a partir de las reglas del hielo, que dan cuenta de las interacciones a primeros vecinos), a pesar de estar presentes interacciones dipolares de largo alcance.

Pasemos ahora a los estados excitados. El cambio más sencillo a partir del estado fundamental consiste en invertir un dipolo, rompiendo así la regla del hielo para dos tetraedros vecinos. Visto desde el esquema de mancuernas, esto equivale a crear dos cargas  $Q_\alpha = \pm 2q_m$  (monopolo-antimonopolo) en dos sitios contiguos de la red de diamante. Ahora bien, estas cargas no tienen que ser vecinas necesariamente, sino que pueden estar separadas si se invierte una cadena de spines/mancuernas formando el análogo a una cuerda de Dirac (figura 1.12). De (1.9), la energía de dos cargas opuestas separadas una distancia  $r$  es

$$E(r) = 2\frac{v_0}{2} (2\mu/a_d)^2 + \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{(2\mu/a_d)(-2\mu/a_d)}{r} \quad (1.10)$$

Puesto que el término coulombiano se anula cuando  $r \rightarrow \infty$ , se necesita una energía finita para separar los monopolos hasta el infinito. Esta característica explica porqué utilizamos el modelo de mancuernas en los hielos de spin y no definimos monopolos magnéticos en, por ejemplo, un ferromagneto de Ising bidimensional. En este sistema, invertir una cadena de spines requiere una energía proporcional a su longitud, de forma que los monopolos están confinados y no es posible detectarlos.

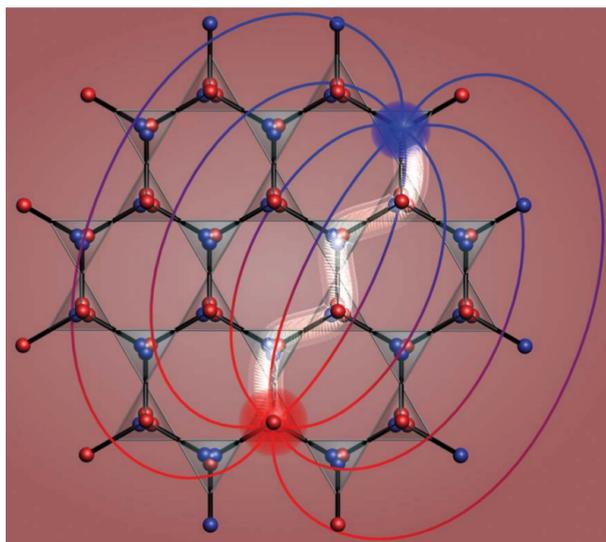


FIGURA 1.12: Los monopolos pueden estar alejados, atrayéndose a través de una fuerza coulombiana. Figura extraída de [21].

## Capítulo 2

# Transiciones de fase y simulaciones computacionales

A lo largo de este trabajo pretendemos tratar con sistemas donde puedan estar presentes numerosos monopolos. Puesto que cuando se tiene un número suficientemente grande de partículas pueden ocurrir transiciones de fase, mencionamos en este capítulo algunos conceptos básicos sobre este tema.

A su vez, nuestro trabajo se basa exclusivamente en simulaciones computacionales. Es por esto que describimos brevemente el método Monte Carlo y discutimos las condiciones de ergodicidad y balance detallado que debe satisfacer una cadena de Markov. También mostramos cómo calcular el valor de algunos observables de interés en sistemas magnéticos en un algoritmo de Metrópolis y comentamos sobre el programa utilizado y la técnica de sumas de Ewald, a través de la cual es posible computar las interacciones de largo alcance.

Finalmente, introducimos algunas herramientas de análisis de los resultados que serán empleadas en los capítulos siguientes. Puesto que la teoría de transiciones de fase se refiere a sistemas macroscópicos, mientras que en las simulaciones utilizamos una cantidad de spines relativamente pequeña, abordamos el estudio de sistemas de tamaño finito. También comentamos brevemente la dinámica de tiempos cortos como una técnica complementaria para determinar los parámetros críticos de la transición.

### 2.1. Transiciones de fase

El estado de equilibrio de un sistema se determina a través de la minimización del potencial termodinámico correspondiente. Si tomamos como caso un sistema que puede

intercambiar energía con un baño y analizamos la energía libre de Helmholtz  $F = U - TS$ , resulta evidente que para altas temperaturas es favorable un estado con la mayor entropía posible (esto es, desordenado), mientras que a bajas temperaturas la entropía no es tan importante y prevalece un orden que minimiza la energía. Este orden puede verse como un cambio apreciable en alguna magnitud termodinámica, que actúa como *parámetro de orden* de la transición. En la figura 2.1 se muestran los comportamientos típicos del parámetro de orden  $\eta$  de un sistema, los cuales nos permiten establecer una clasificación de las transiciones de fase: si  $\eta$  cambia bruscamente, con un salto, se trata de una transición *de primer orden*, mientras que si lo hace de forma continua se trata de una transición *de segundo orden*. La temperatura a la que ocurren estos cambios es conocida como *temperatura crítica*,  $T_c$ .

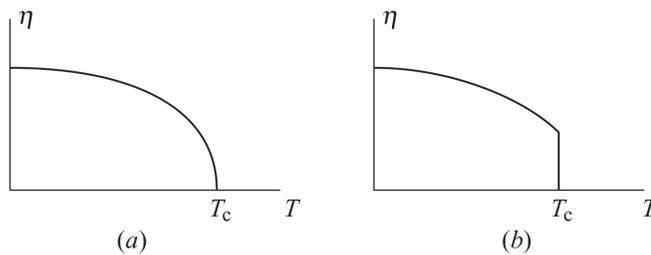


FIGURA 2.1: Comportamiento clásico del parámetro de orden en función de la temperatura, para (a) transiciones de segundo orden y (b) transiciones de primer orden. Figura extraída de [22].

Si graficamos la energía libre (previa a la minimización) para una transición de segundo orden, tendremos algo como la figura 2.2(a). Como puede verse, a altas temperaturas existe un único mínimo, correspondiente a una única fase. A medida que  $T \rightarrow T_c$ , la energía libre se va “achatando”, lo que permite fluctuaciones del parámetro de orden cada vez mayores. A temperaturas menores a la crítica existen dos mínimos de idéntica altura, lo que significa que, en principio, el sistema puede elegir igualmente encontrarse en cualquiera de los dos estados. Partiendo de altas temperaturas y llegando a  $T_c$ , las fluctuaciones en uno u otro sentido van creciendo, hasta que alguna se vuelve lo bastante grande y el sistema elige la fase correspondiente. Esto es conocido como *ruptura espontánea de simetría*.

En las transiciones de primer orden, por su parte, la energía libre presenta a temperaturas distintas de la crítica un mínimo absoluto y otro relativo (figura 2.2(b)), que denotan respectivamente las fases estable y metaestable. Cuando  $T \rightarrow T_c$ , la diferencia de altura entre los mínimos se hace cada vez más pequeña, hasta anularse; en ese punto, ambas fases pueden existir simultáneamente en distintas regiones del material. Sin embargo, la transición no ocurrirá instantáneamente al atravesar la temperatura de coexistencia, ya que el sistema puede quedar atrapado en su fase metaestable. El cambio se dará solamente cuando ocurra una fluctuación lo bastante grande que le permita

explorar otras regiones del parámetro de orden y así descubrir la fase estable. En ese instante, el sistema en su totalidad pasará a este estado. Puede ocurrir también que el cambio de fase no ocurra a la misma temperatura en un sentido u otro; en ese caso, se dice que el sistema presenta *histéresis*.

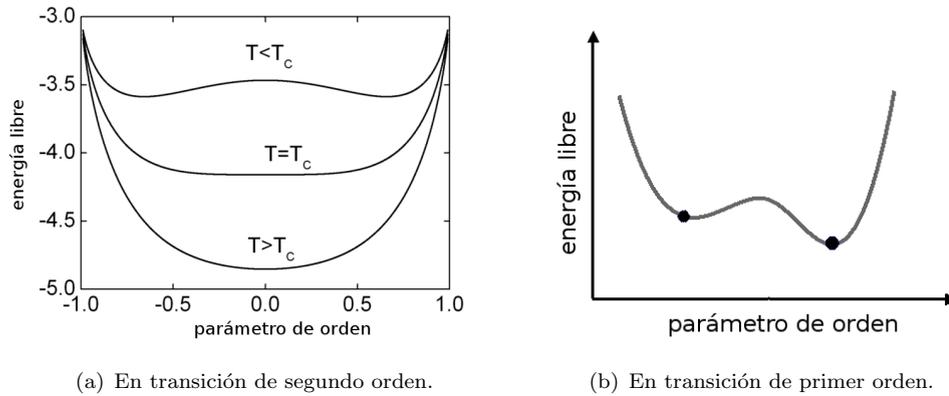


FIGURA 2.2: Forma de la energía libre en los dos tipos de transiciones de fase.

### 2.1.1. Exponentes críticos y clases de universalidad

Otra manera de distinguir el tipo de transición es a través del comportamiento de las susceptibilidades. Mientras que en las de primer orden las susceptibilidades se mantienen finitas,<sup>1</sup> las de segundo orden se caracterizan precisamente por la divergencia de estas cantidades en el punto de transición, llamado *punto crítico*. En este punto, la longitud de correlación (distancia máxima por encima de la cual los spines no están correlacionados) y otras cantidades termodinámicas pueden ser pensadas como la suma de una parte regular, que se mantiene finita (no necesariamente continua), y una parte singular, que diverge [23]. Esta última depende de los parámetros que miden la distancia al punto crítico como una ley de potencias, caracterizada por su *exponente crítico*. El parámetro de orden, por ejemplo, depende de  $\tau = (T - T_c)/T_c$  como

$$\eta \sim |\tau|^\beta \quad (2.1)$$

para  $\tau < 0$  ( $\eta = 0$  para  $\tau \geq 0$ ). Otros exponentes críticos son los de la susceptibilidad

$$\chi = \frac{\partial \eta}{\partial \Phi} \sim |\tau|^{-\gamma} \quad (2.2)$$

con  $\Phi$  el campo conjugado al parámetro de orden, y el calor específico

<sup>1</sup>A decir verdad, presentan una singularidad tipo Dirac.

$$C = \frac{dQ}{dT} \sim |\tau|^{-\alpha} \quad (2.3)$$

donde  $dQ$  es el calor transferido al cambiar la temperatura en  $dT$ . Estas cantidades serán de gran interés en nuestro trabajo puesto que, a través del teorema de fluctuación-disipación, coinciden con las fluctuaciones espontáneas del parámetro de orden y de la energía, respectivamente [24].

Los exponentes críticos restantes son el de la longitud de correlación

$$\xi \sim |\tau|^{-\nu}, \quad (2.4)$$

$\delta$  que relaciona el parámetro de orden con el campo conjugado ( $\eta \sim \Phi^{1/\delta}$ ),  $\eta$  que surge de la relación  $p = d - 2 + \eta$ , donde  $d$  es la dimensión del sistema y  $p$  es el exponente del decaimiento como ley de potencia de la función de correlación  $\Gamma(r) \sim r^{-p} e^{-r/\xi}$  cuando  $\tau = 0$ , y  $z$  que expresa el crecimiento del tiempo de correlación ( $t_{correl} \sim |\tau|^z$ ). Sin embargo, de esta gran colección de exponentes sólo dos resultan independientes, puesto que están relacionados entre sí por cuatro identidades conocidas como “leyes de escala”. En la tabla 2.1 se muestran los valores aproximados de los exponentes críticos para el modelo de Ising tridimensional<sup>2</sup> según [23], puesto que resultarán de utilidad más adelante.

Exponente	Valor
$\alpha$	0,12
$\beta$	0,31
$\gamma$	1,25
$\delta$	5
$\nu$	0,64
$\eta$	0,05
$z$	2,04

CUADRO 2.1: Exponentes críticos del modelo de Ising tridimensional según [23].

La importancia de estos exponentes radica en su universalidad. Se ha visto experimental y teóricamente que sistemas de naturaleza muy diversa comparten aproximadamente los mismos exponentes críticos; se dice, entonces, que pertenecen a la misma *clase de universalidad*. ¿De qué depende esto? En primer lugar, de la dimensionalidad espacial del sistema y la dimensionalidad del parámetro de orden (si es escalar, vectorial, etc.), pero también del tipo de interacciones presentes. Los exponentes críticos de un modelo a primeros vecinos no cambian al incluir vecinos más lejanos, siempre que la interacción

<sup>2</sup>No existe aún solución exacta para este problema. Los valores reportados son resultados numéricos.

decaiga lo suficientemente rápido con la distancia, pero sí lo hacen si se incluyen interacciones dipolares (que decaen como  $1/r^3$ ) en un sistema FM. En un AF, en cambio, las interacciones dipolares de largo alcance resultan irrelevantes, puesto que los spines alternados contribuyen a cancelarlas [25].

### 2.1.2. Un caso especial: percolación

Las transiciones de fase son fenómenos asociados a las interacciones entre partículas. El modelo del gas ideal, por ejemplo, no presenta ninguna transición; es necesario agregar la atracción entre partículas del modelo de Van der Waals para que puedan condensar y aparezca la transición líquido-gas de los gases reales. Existe, sin embargo, una clase de transiciones donde la energía no juega ningún papel: las transiciones geométricas.

El ejemplo más conocido es la percolación. Se tiene una red infinita donde cada sitio está ocupado con una probabilidad  $p$  y vacío con una probabilidad  $1 - p$ . Si dos o más sitios vecinos se encuentra ocupados, se dice que forman un *cluster* (“racimo”). Existe una concentración crítica  $p_c$  tal que para  $p < p_c$  sólo existen clusters de tamaño finito, mientras que para  $p \geq p_c$  se forma un cluster infinito que atraviesa toda la red de un extremo a otro. En este problema, efectivamente, no aparecen escalas de energías ni interacciones entre partículas (excepto por la exclusión: no puede haber más de una partícula por sitio); es puramente geométrico. Sin embargo, puede definirse un parámetro de orden y también susceptibilidades. Se observa que en  $p = p_c$ , las mismas muestran comportamientos singulares como ocurre en una transición de fase convencional.

## 2.2. Método Monte Carlo

Un problema básico de la Mecánica Estadística consiste en calcular promedios de cantidades termodinámicas de un sistema cuyo hamiltoniano es conocido. Recordando la expresión para la probabilidad de un microestado en el ensamble canónico (1.2), el valor medio del observable  $A$  puede calcularse como

$$\langle A \rangle = \sum_{\mu} A_{\mu} p_{\mu} = \frac{\sum_{\mu} A_{\mu} e^{-\beta E_{\mu}}}{\sum_{\mu} e^{-\beta E_{\mu}}} \quad (2.5)$$

En la fórmula anterior, ambas sumas se realizan sobre la totalidad de los microestados. El corazón del método Monte Carlo es hallar un subconjunto característico de esos microestados a partir de alguna distribución de probabilidad  $\rho_{\mu}$ , de forma de aproximar la ecuación (2.5) por

$$A_M = \frac{\sum_{i=1}^M A_{\mu_i} \rho_{\mu_i}^{-1} e^{-\beta E_{\mu_i}}}{\sum_{j=1}^M \rho_{\mu_j}^{-1} e^{-\beta E_{\mu_j}}} \quad (2.6)$$

donde  $\{\mu_1, \dots, \mu_M\}$  es la muestra estadística utilizada [26]. Así definido,  $A_M$  es un estimador de  $\langle A \rangle$  y satisface que  $A_M \rightarrow \langle A \rangle$  cuando  $M \rightarrow \infty$ .

Cabe preguntarse ahora cuál es la mejor elección de  $\rho_{\mu}$ . La más sencilla es hacer todos los  $\rho_{\mu}$  iguales, lo que equivale a elegir los microestados totalmente al azar. Este método es conocido como *muestreo simple* y tiene como desventaja que, mientras que para la simulación numérica todos los estados son igualmente probables, en muchas situaciones reales el valor de  $\langle A \rangle$  es dominado por un pequeña cantidad de estados.<sup>3</sup> En estas condiciones, el estimador se aleja notablemente del valor esperado excepto para  $M$  muy grande, con lo que ésta resulta una elección poco eficiente computacionalmente.

Una alternativa es el *importance sampling*, donde se presupone un conocimiento sobre cuáles microestados son los que más contribuyen al promedio (2.5). Eligiendo  $\rho_{\mu} = p_{\mu}$ , (2.6) se reduce a

$$A_M = \frac{1}{M} \sum_{i=1}^M A_{\mu_i} \quad (2.7)$$

Ahora bien, ¿cómo se hace para elegir estados de forma tal que cada uno aparezca con la probabilidad de Boltzmann deseada?

### 2.2.1. Cadenas de Markov, ergodicidad y balance detallado

Un proceso de Markov es una manera de pasar de un microestado  $\mu$  a otro  $\nu$  con alguna probabilidad de transición  $P(\mu \rightarrow \nu)$ . Esta probabilidad debe ser independiente del tiempo y de la historia del sistema (es decir, de lo ocurrido antes de alcanzado el microestado  $\mu$ ). También debe satisfacer, obviamente,  $\sum_{\nu} P(\mu \rightarrow \nu) = 1$ . Nótese que  $P(\mu \rightarrow \mu)$  no tiene porqué ser nula, de modo que existe una probabilidad de que el nuevo estado sea el mismo que el de partida.

Una sucesión de procesos de Markov constituye una *cadena de Markov*. Al cabo de una cantidad lo suficientemente grande de pasos, si se satisfacen las condiciones de *ergodicidad y balance detallado*, puede garantizarse que los nuevos microestados aparecen

<sup>3</sup>Esto ocurre, por ejemplo, en sistemas a bajas temperaturas, donde el sistema se encuentra prácticamente todo el tiempo en el estado fundamental o, a lo sumo, en alguno de los primeros excitados, ya que no hay suficiente energía térmica para promoverlo a niveles superiores.

con la probabilidad de Boltzmann buscada [26]. En ese momento, se dice que el sistema ha alcanzado el equilibrio.

La condición de ergodicidad requiere que, dado el suficiente tiempo, la cadena de Markov sea capaz de alcanzar cualquier microestado partiendo de cualquier otro. Esto es importante puesto que todos aparecen con una  $p_\mu \neq 0$  en la distribución de Boltzmann; si, por alguna razón, algún microestado resultara inaccesible, quedaría fuera del conjunto sobre el que tomamos la muestra estadística.

El balance detallado, por su parte, es la condición que asegura que que, una vez alcanzado el equilibrio, efectivamente estamos generando una distribución de probabilidad de Boltzmann. Esto queda garantizado si se satisface que

$$p_\mu P(\mu \rightarrow \nu) = p_\nu P(\nu \rightarrow \mu) \quad (2.8)$$

(véase [26] para una demostración de esta afirmación). Esto significa que el ritmo al que ocurren transiciones desde el microestado  $\mu$  al  $\nu$  y viceversa debe ser el mismo.

### 2.2.2. Algoritmo de Metropolis para sistemas magnéticos

Después de una introducción más bien general al método Monte Carlo, pasamos a describir su aplicación a un sistema magnético descrito por el hamiltoniano de Ising (1.1). Como se dijo previamente, cada spin puede tomar dos valores,  $+1$  o  $-1$ , lo que en una red de  $N$  spines da un total de  $2^N$  microestados, cada uno con probabilidad  $p_\mu$  dada por (1.2) en el ensamble canónico. El algoritmo de Metropolis funciona de la siguiente manera [27]:

1. Se comienza con un microestado inicial a temperatura  $T$ .
2. Se hace un cambio de prueba al azar en el microestado.
3. Se calcula la diferencia de energía  $\Delta E$  entre el microestado anterior y el de prueba.
4. Si  $\Delta E \leq 0$ , se acepta el nuevo microestado y se salta al paso 8.
5. Si  $\Delta E > 0$ , se calcula  $w = e^{-\beta \Delta E}$ .
6. Se genera un número aleatorio  $r \in (0, 1)$ .
7. Si  $r \leq w$ , se acepta el nuevo microestado; si no, se retiene el anterior.
8. Se calcula el valor de las cantidades físicas deseadas.

9. Se repiten los pasos 2 a 8 hasta alcanzar el equilibrio.
10. Se vuelven a repetir los pasos 2 a 8, pero ahora sumando las cantidades del punto 8 de todos los microestados. Después de la suficiente cantidad de repeticiones,<sup>4</sup> se calculan los promedios correspondientes (ecuación (2.7)).
11. Se cambia ligeramente la temperatura y se vuelve al paso 1.

Algunas cantidades físicas de interés en los sistemas magnéticos, que se pueden calcular directamente en el paso 10, son la energía del sistema  $\langle E \rangle$ , la magnetización  $\langle M \rangle$  y sus potencias. En particular, resultan de especial interés las cuadráticas, puesto que se utilizan para calcular el calor específico

$$C = \frac{1}{k_B T^2} (\langle E^2 \rangle - \langle E \rangle^2) \quad (2.9)$$

y la susceptibilidad magnética

$$\chi = \frac{1}{k_B T} (\langle M^2 \rangle - \langle M \rangle^2) \quad (2.10)$$

como fluctuaciones, como se adelantó en la sección 2.1.1.

Una manera de pasar de un microestado a otro (paso 2) es invirtiendo un único spin (*single spin flip*). Este mecanismo está de acuerdo con el hecho de que, en el equilibrio, la energía del sistema flucúa dentro de un intervalo relativamente pequeño, por lo que es muy improbable que haya cambios que modifiquen la energía dramáticamente como podría hacerlo la inversión de numerosos spines al mismo tiempo. Además, el single spin flip es un proceso de Markov y satisface las condiciones de ergodicidad y balance detallado explicadas previamente.

### 2.2.3. Sumas de Ewald

El método de Ewald se utiliza para computar contribuciones de largo alcance a la energía potencial de un sistema con condiciones de borde periódicas [28]. Consiste en reescribir el potencial de interacción  $\phi(\mathbf{r})$  como la suma de dos términos, uno de corto alcance  $\phi_{ca}(\mathbf{r})$  y uno de largo alcance  $\phi_{la}(\mathbf{r})$ . El primero se suma rápidamente en el espacio real, mientras que el segundo se suma rápidamente en el espacio de Fourier. Para esto, se supone que el sistema es infinitamente periódico, formado por copias (celdas imágenes) de una dada celda unidad central.

<sup>4</sup>Cada repetición de los pasos 2 a 8 es conocida como un *paso Monte Carlo*.

La energía de interacción de largo alcance puede pensarse como la suma de la energía de interacción entre las  $N$  partículas de la celda unidad central y todas las partículas de la red. Así, la escribimos como

$$E_{la} = \int d\mathbf{r} \rho_T(\mathbf{r}) v(\mathbf{r}) \quad (2.11)$$

donde definimos un potencial efectivo

$$v(\mathbf{r}) = \int d\mathbf{r}' \rho_{cuc}(\mathbf{r}') \phi_{la}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \quad (2.12)$$

La densidad de carga en la celda unidad central está dada por

$$\rho_{cuc}(\mathbf{r}) = \sum_{i=1}^N q_i \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_k) \quad (2.13)$$

y la densidad total es eso mismo más las imágenes periódicas de esas cargas,

$$\rho_T(\mathbf{r}) = \sum_{i=1}^N \sum_{\mathbf{n} \in Z^3} q_i \delta(\mathbf{r} - (\mathbf{r}_k + n_1 \mathbf{a}_1 + n_2 \mathbf{a}_2 + n_3 \mathbf{a}_3)) \quad (2.14)$$

donde los  $\mathbf{a}_j$  son los vectores directores de la red. Esta densidad total puede pensarse como la convolución de (2.13) con la función

$$L(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{n} \in Z^3} \delta(\mathbf{r} - (n_1 \mathbf{a}_1 + n_2 \mathbf{a}_2 + n_3 \mathbf{a}_3)) \quad (2.15)$$

con lo que su transformada de Fourier resulta el producto de las transformadas,

$$\tilde{\rho}_T(\mathbf{k}) = \tilde{\rho}_{cuc}(\mathbf{k}) \tilde{L}(\mathbf{k}) \quad (2.16)$$

Usando los vectores recíprocos  $\mathbf{b}_1 = (\mathbf{a}_2 \times \mathbf{a}_3) / \Omega$  y el volumen de la celda unidad  $\Omega = \mathbf{a}_1 \cdot (\mathbf{a}_2 \times \mathbf{a}_3)$  (suponiendo que es un paralelepípedo), se tiene

$$\tilde{L}(\mathbf{k}) = \frac{(2\pi)^3}{\Omega} \sum_{\mathbf{m} \in Z^3} \delta(\mathbf{k} - (m_1 \mathbf{b}_1 + m_2 \mathbf{b}_2 + m_3 \mathbf{b}_3)) \quad (2.17)$$

A su vez,  $v(\mathbf{r})$  es también una convolución, así que su transformada de Fourier es

$$\tilde{v}(\mathbf{k}) = \tilde{\rho}_{cuc}(\mathbf{k})\tilde{\phi}_{la}(\mathbf{k}) \quad (2.18)$$

La razón por la que nos interesan estas transformadas de Fourier es porque podemos sumar la energía 2.11 en el espacio recíproco. En efecto, es fácil ver que

$$E_{la} = \int \frac{d\mathbf{k}}{(2\pi)^3} \tilde{\rho}_T^*(\mathbf{k})\tilde{v}(\mathbf{k}) \quad (2.19)$$

Reemplazando allí con las ecuaciones (2.16) y (2.18) y recordando la expresión de la transformada de Fourier (2.17), se obtiene finalmente

$$E_{la} = \frac{1}{\Omega} \sum_{\mathbf{m} \in \mathbb{Z}^3} |\tilde{\rho}_{cuc}(\mathbf{k}_m)|^2 \tilde{\phi}_{la}(\mathbf{k}_m) \quad (2.20)$$

donde  $\mathbf{k}_m = m_1\mathbf{b}_1 + m_2\mathbf{b}_2 + m_3\mathbf{b}_3$ .

#### 2.2.4. El programa utilizado

El programa fue desarrollado por R. A. Borzi y utilizado previamente en la confección de artículos científicos (refs. [12] y [29]) y presentaciones a congresos. Emplea el método Monte Carlo con el algoritmo de Metropolis y single-spin flip. Permite hacer barridos en temperatura (a campo magnético fijo) o en campo (a temperatura fija), con densidad de monopolos fija o variable; es posible considerar interacciones a número de vecinos finito (en particular, primeros vecinos) o infinito, para lo cual utiliza la técnica de sumas de Ewald.

En cada punto de la simulación se calculan cantidades como la magnetización  $M$ , el calor específico  $C$ , la densidad total de carga  $\rho_Q$ , la densidad staggered<sup>5</sup> de monopolos simples  $\rho_1^\dagger$  y dobles  $\rho_2^\dagger$  (nótese que la daga es sólo notación y nada tiene que ver con la operación de hermítico conjugado) y diversos momentos y módulos, entre otras. Otras cantidades de interés pueden obtenerse a partir de estos datos, como por ejemplo el cambio de entropía entre dos puntos

$$\Delta S_{1,2} = \int_{T_1}^{T_2} \frac{C(T)}{T} dT \quad (2.21)$$

y la susceptibilidad staggered de monopolos dobles

---

<sup>5</sup>Definimos la densidad staggered como el promedio del módulo de la carga magnética en los tetraedros “hacia arriba” por sitio de la subred, por unidad de carga.

$$\chi_2^\dagger = \frac{\langle (\rho_2^\dagger)^2 \rangle - \langle \rho_2^\dagger \rangle^2}{T} L^3 \quad (2.22)$$

donde  $L$  es una dimensión lineal del sistema. Esta cantidad, a la que nos referiremos simplemente como “susceptibilidad”, será de gran interés en nuestro trabajo puesto que representa las fluctuaciones asociadas a  $\rho_2^\dagger$ , el parámetro de orden de las transiciones a estudiar.

En general, en nuestras simulaciones utilizamos  $N_{eq} = 10000$  pasos Monte Carlo para equilibrar en cada punto y  $N_{av} = 20000$  para calcular los promedios. Estos valores se tomaron pensando en el modelo dipolar y se usaron los mismos en el modelo a primeros vecinos, a pesar de que éste equilibra mucho más fácilmente.

### 2.3. Análisis de sistemas de tamaño finito

Las transiciones de fase son procesos que ocurren en el límite termodinámico de sistemas infinitos y de, por lo tanto, infinitas partículas. Esto deja al descubierto una evidente limitación de las simulaciones computacionales, donde sólo es posible trabajar con sistemas finitos.

En las transiciones de segundo orden, evidentemente, la longitud de correlación no puede alcanzar valores mayores que el tamaño  $L$  del sistema. Algunas consecuencias de esto son (figura 2.3):

- Las susceptibilidades presentan picos pero no divergen.
- La posición del máximo de las susceptibilidades depende del tamaño del sistema.
- El parámetro de orden mantiene un valor distinto de cero a temperatura mayor que la crítica (igual a  $1/\sqrt{N}$  cuando  $T \rightarrow \infty$ , donde  $N$  es el número de partículas del sistema), debido a las fluctuaciones del sistema.

Estas diferencias entre la solución exacta y los resultados de las simulaciones van disminuyendo a medida que crece el tamaño del sistema: los picos de las susceptibilidades se hacen cada vez mayores y los valores residuales del parámetro de orden en la fase desordenada se hacen cada vez más pequeños.

Veamos entonces qué consecuencias trae aparejadas que el tamaño finito del sistema no permita diverger a la longitud de correlación. Miremos, por ejemplo, el caso de la susceptibilidad. Si combinamos las ecuaciones (2.2) y (2.4), se tiene que

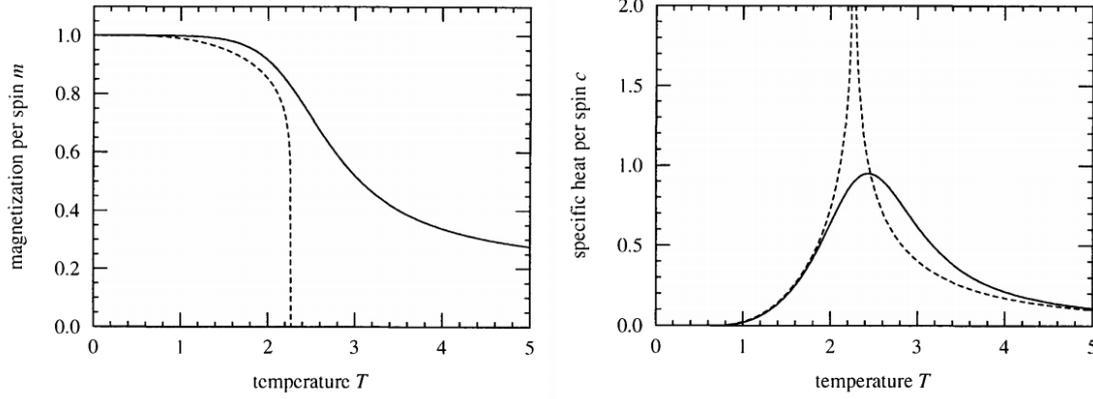


FIGURA 2.3: Efectos de tamaño finito en (a) la magnetización (parámetro de orden) y (b) el calor específico en transiciones de segundo orden. La línea punteada representa la solución exacta, mientras que la línea sólida es el resultado de una simulación numérica. Figura extraída de [26].

$$\chi \sim \xi^{\gamma/\nu} \quad (2.23)$$

Las mayores diferencias entre los comportamientos en el sistema infinito y el finito surgen en la región del espacio de parámetros en que la longitud de correlación alcanza y supera el tamaño del sistema. Podemos escribir a la susceptibilidad como [30]

$$\chi = \xi^{\gamma/\nu} \chi_0(L/\xi) \quad (2.24)$$

donde la función  $\chi_0(x)$  debe satisfacer algunas propiedades. Para comenzar, sabemos que el comportamiento es igual en el sistema finito y el infinito cuando  $L \gg \xi$ , así que tiene que cumplirse que  $\chi_0(x) \sim \text{cte.}$  cuando  $x \rightarrow \infty$ . Además, cuando la longitud de correlación satura en  $L$  en el sistema finito, por (2.23) se tiene que la susceptibilidad debe ser proporcional a  $L^{\gamma/\nu}$ , y por lo tanto  $\chi_0(x) \sim x^{\gamma/\nu}$  cuando  $x \rightarrow 0$ .

Hasta aquí hemos escrito a la susceptibilidad en términos de la longitud de correlación, la cual desconocemos. Podemos eliminarla de nuestras ecuaciones si definimos una nueva función, llamada *función de escaleo*, dada por

$$\tilde{\chi}(x) = x^{-\gamma} \chi_0(x^\nu) \quad (2.25)$$

que hereda de las propiedades de  $\chi_0$  que  $\tilde{\chi}(x) \sim x^{-\gamma}$  cuando  $x \rightarrow \infty$  y  $\tilde{\chi}(x) \sim x^\nu$  cuando  $x \rightarrow 0$ . Reemplazando con ella en la ecuación (2.24) y recordando la relación (2.4) entre la longitud de correlación y la temperatura, se tiene que

$$\chi(T, L) = L^{\gamma/\nu} \tilde{\chi} \left( (T - T_c) L^{1/\nu} \right) \quad (2.26)$$

A partir de esta ecuación resulta claro porqué dimos ese nombre a la función  $\tilde{\chi}$ : puesto que hemos podido escribir explícitamente la dependencia con  $L$ , si se grafica  $\chi(T, L)L^{-\gamma/\nu}$  vs.  $(T - T_c)L^{1/\nu}$  para distintos tamaños de red, todas las curvas deben colapsar en una (al menos en  $T \approx T_c$ ). Esta es una buena manera de hallar los valores de  $\nu$ ,  $\gamma$  y temperatura crítica para un dado sistema y de verificar que, efectivamente, se trata de un fenómeno crítico.

Este mismo análisis puede repetirse, exactamente igual, para otras cantidades. El parámetro de orden, por ejemplo, escala como

$$\eta(T, L) = L^{-\beta/\nu} \tilde{\eta} \left( (T - T_c) L^{1/\nu} \right) \quad (2.27)$$

En las transiciones de primer orden en un sistema infinito, las susceptibilidades presentan una singularidad tipo delta de Dirac en el punto de la transición (figura 2.4). En el caso del calor específico esta singularidad está asociada al calor latente, y representa el hecho de que la temperatura no cambie aunque el sistema esté absorbiendo/liberando energía. En medidas en función del campo magnético para un sistema tipo Ising a  $T < T_c$ , la singularidad en  $H = 0$  en la susceptibilidad magnética representa el salto discreto en la magnetización, que invierte su dirección siguiendo al campo.

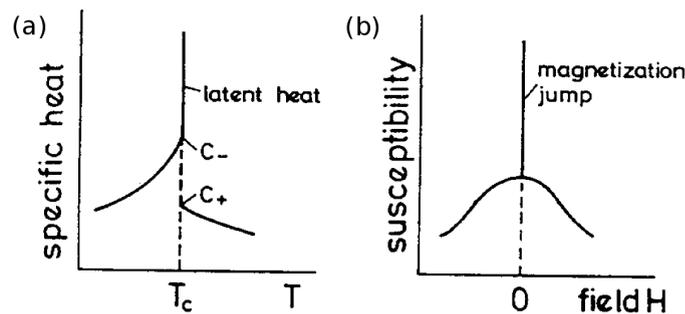


FIGURA 2.4: Comportamiento típico de (a) el calor específico y (b) la susceptibilidad magnética en un sistema infinito. Figura extraída de [30].

Aquí, a falta de una longitud de correlación impedida de diverger como en las transiciones de segundo orden, los efectos de tamaño finito están gobernados por el tamaño de la red [30]. En efecto, el máximo del calor específico y de la susceptibilidad son proporcionales a  $L^3$ , mientras que la posición del máximo del calor específico  $T_c(L)$  resulta proporcional a  $1/L$ .

## 2.4. Dinámica de tiempos cortos

La dinámica de tiempos cortos es una técnica para determinar la temperatura crítica, los exponentes críticos y la clase de universalidad de los resultados de simulaciones Monte Carlo, alternativa al análisis de tamaño finito. Se basa en el hecho de que en una gran variedad de sistemas, resulta que la evolución de los observables en el punto crítico se da de acuerdo a una ley de potencias, una vez transcurrido un tiempo “microscópico” inicial  $t_m$  del orden de 10 – 100 pasos Monte Carlo [31].

Esta técnica puede aplicarse a la evolución del parámetro de orden tanto desde un estado inicial ordenado o desordenado. En nuestro trabajo usaremos el primer caso, donde puede verse que al alcanzar la temperatura crítica el parámetro de orden evoluciona con el tiempo según [30]

$$\eta(t) \sim t^{-\beta/(z\nu)} \quad (2.28)$$

A  $T > T_c$  el parámetro de orden toma valores menores que en  $T = T_c$ , por lo que en un gráfico log-log debe quedar por debajo de la recta de pendiente  $-\beta/(z\nu)$ ; a  $T < T_c$ , por el contrario, debe quedar por encima (figura 2.5). De esta manera, es posible determinar los valores de la temperatura crítica o los exponentes.

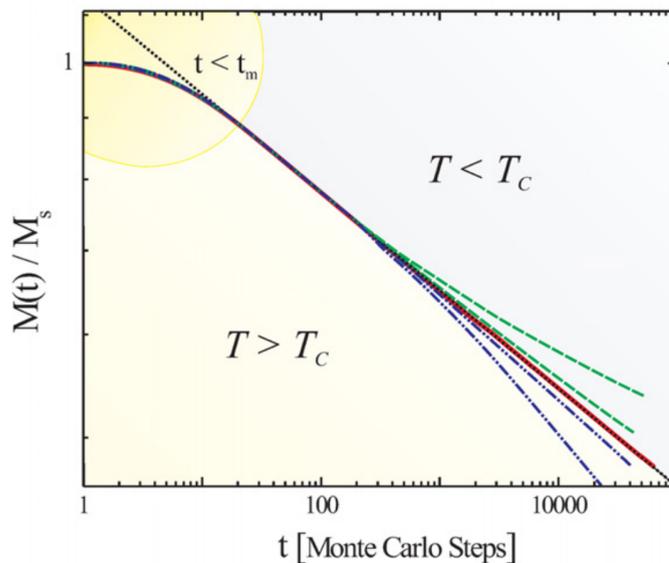


FIGURA 2.5: Parámetro de orden en función del tiempo (nótese que ambas escalas son logarítmicas). En rojo se observa el comportamiento a  $T = T_c$ , mientras que en verde y azul se muestran los correspondientes a temperaturas menores y mayores a la crítica, respectivamente. Figura extraída de [31].

## Capítulo 3

# Estudio a primeros vecinos

Como primera aproximación computacional a los hielos de spin, realizamos simulaciones considerando interacciones de intercambio y dipolares a primeros vecinos (descritas por el hamiltoniano (1.7)). Variando el valor de  $J_{nn}$ , recorremos el espacio de parámetros del problema y construimos el diagrama de fases  $T/D_{nn}$  vs.  $J_{nn}/D_{nn}$  análogo al hallado por den Hertog y Gingras considerando interacciones de largo alcance en [20]. A través del análisis de tamaño finito, verificamos que la transición presente es de segundo orden y pertenece a la clase de universalidad del modelo de Ising tridimensional. Como aporte nuestro, reinterpretamos ahora el diagrama de fase (muy simple, en este caso) en términos de monopolos magnéticos.<sup>1</sup>

### 3.1. Primer acercamiento

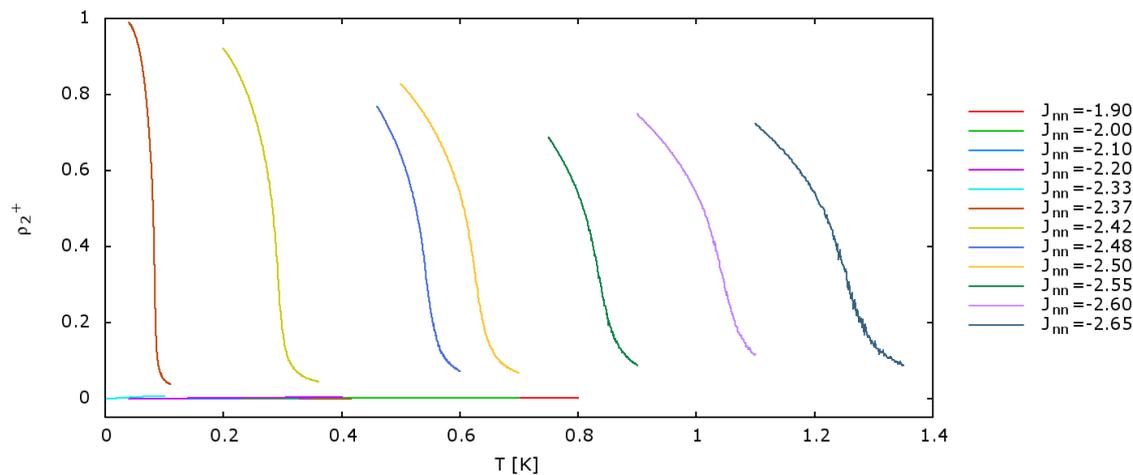
Como primera aproximación al problema, realizamos simulaciones considerando interacciones de intercambio y dipolares a primeros vecinos sobre sistemas con  $L = 3$  variando el parámetro  $J_{nn}$ ,<sup>2</sup> enfriando desde una temperatura inicial alta. En la figura 3.1 se observan la densidad staggered de monopolos dobles y el calor específico de todas las corridas. A primera vista es posible distinguir dos tipos de comportamiento distintos, según  $|J_{nn}|$  sea mayor o menor a  $D_{nn} = 2,35K$ .<sup>3</sup>

---

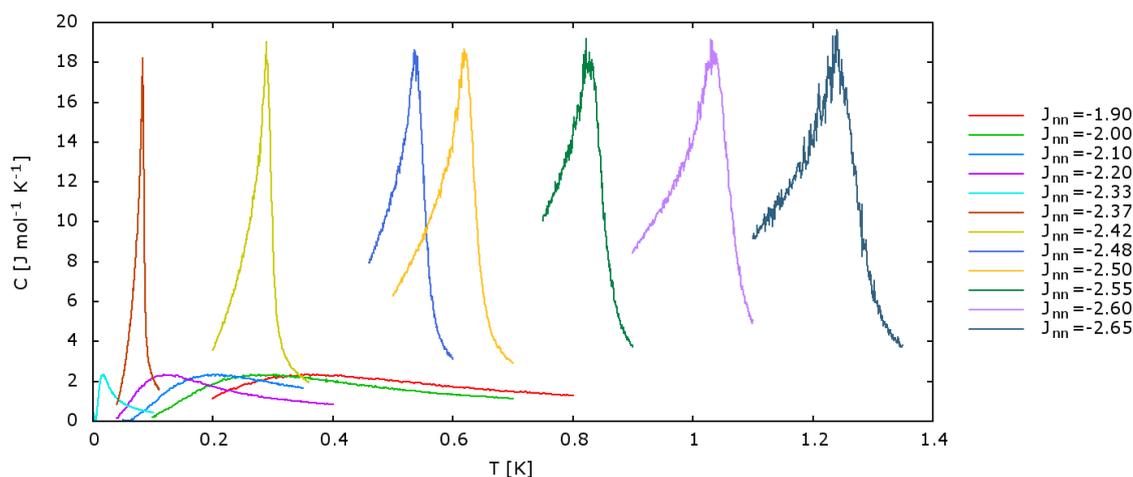
<sup>1</sup>Como las interacciones entre spines son a primeros vecinos, no hay atracción coulombiana entre las cuasipartículas. Es importante tener presente, entonces, que aunque retenemos la designación de “monopolos”, no se comportan estrictamente como partículas cargadas.

<sup>2</sup>A lo largo del trabajo, dejamos fijo  $D_{nn}$  en el valor que toma para los compuestos  $Dy_2Ti_2O_7$  y  $Ho_2Ti_2O_7$  y variamos  $J_{nn}$ . Estos dos valores fijan la escala de energía y temperatura. Un procedimiento análogo sería trabajar con variables adimensionales  $J_{nn}/D_{nn}$  y  $T/D_{nn}$ , como Melko *et al.*

<sup>3</sup>En este trabajo usamos siempre  $J_{nn}$  negativos ya que, como vimos en la sección 1.3, no hay ningún comportamiento distinto a valores positivos.



(a) Densidad staggered de monopolos dobles.



(b) Calor específico.

FIGURA 3.1: Algunos resultados de las simulaciones con  $L = 3$  para distintos de  $J_{nn}$  con el modelo a primeros vecinos, a partir de los que resulta muy fácil distinguir comportamientos bien diferenciados para valores absolutos del parámetro mayores y menores a  $D_{nn} = 2,35K$ .

El modelo teórico con interacciones a primeros vecinos (presentado en la sección 1.3.1) predice que los sistemas con  $J_{nn}/D_{nn} > -1$  serán hielos de spin. Para verificar esto y comparar nuestros resultados con la figura 1.9, tomamos como ejemplo  $J_{nn} = -1,24K$ , correspondiente a  $Dy_2Ti_2O_7$ . En la figura 3.2 se muestran los resultados de integrar numéricamente el calor específico obtenido de las simulaciones con  $L = 5$ , según la ecuación (2.21). Efectivamente, recuperamos la entropía residual de Pauling esperable en un hielo de spin.

Puede verse en la figura 3.1 que los picos del calor específico de los sistemas con  $J_{nn}/D_{nn} < -1$  son mucho más agudos que los del grupo anterior, al mismo tiempo que la densidad staggered de monopolos dobles muestra el desarrollo de una nueva forma

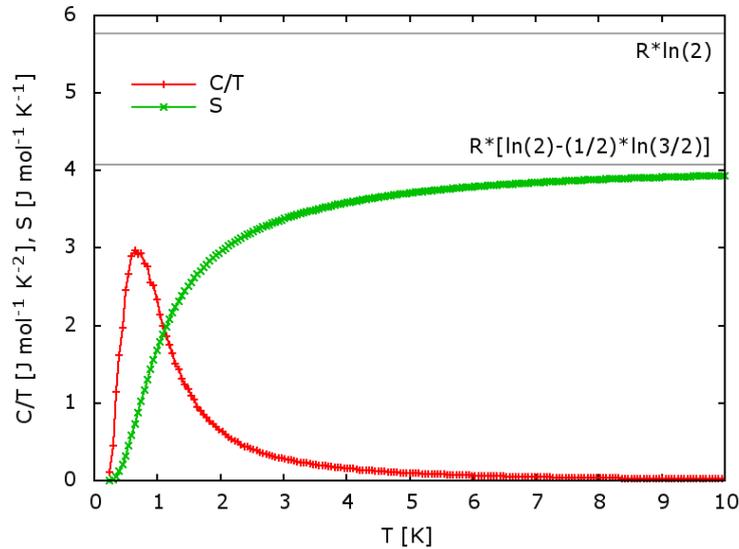


FIGURA 3.2: Calor específico sobre temperatura y entropía para  $J_{nn} = -1,24K$  con el modelo a primeros vecinos, donde se recupera la entropía residual de Pauling.

de orden. Veremos que, efectivamente, estas características están relacionadas con una transición de fase de segundo orden hacia una fase de spines todos hacia adentro / todos hacia afuera.

### 3.2. De la naturaleza de la transición

Realizamos simulaciones con  $J_{nn} = -2,5K$  y  $L = 4, 6, 8, 12, 16, 20$  partiendo desde la fase desordenada a altas temperaturas y bajando lentamente.<sup>4</sup> En algunos casos, hicimos también corridas aumentando la temperatura para confirmar el estado de equilibrio del sistema durante las medidas. En la figura 3.3 se muestran los resultados obtenidos para algunas cantidades de interés. En particular, en la figura 3.3(a) es posible apreciar el comportamiento de la densidad staggered de monopolos dobles, que alimenta la noción de que esta variable constituye el parámetro de orden.

En la densidad staggered de monopolos simples se ve claramente la competencia entre energía y entropía. Cuando comienza a bajar la temperatura, empieza a desarrollarse un tipo de orden que incluye monopolos simples (figura 3.3(b)), además de dobles (figura 3.3(a)). Esto resulta beneficioso porque incluir distintos tipos de monopolos aumenta la entropía,<sup>5</sup> a la vez que un ordenamiento de monopolos positivos y negativos preferencialmente en distintas subredes disminuye la energía. Ahora bien, como mencionamos

<sup>4</sup>La cantidad de pasos Monte Carlo necesaria para equilibrar el sistema depende de su tamaño. Para el caso  $L = 20$ , por ejemplo, llegamos a utilizar  $N_{eq} = 30000$  y  $N_{av} = 1000000$ .

<sup>5</sup>Existen cuatro configuraciones de spines posibles para hacer un monopolo de una carga dada. Esto los hace más convenientes entrópicamente que los dobles (una sola configuración de spines por carga doble).

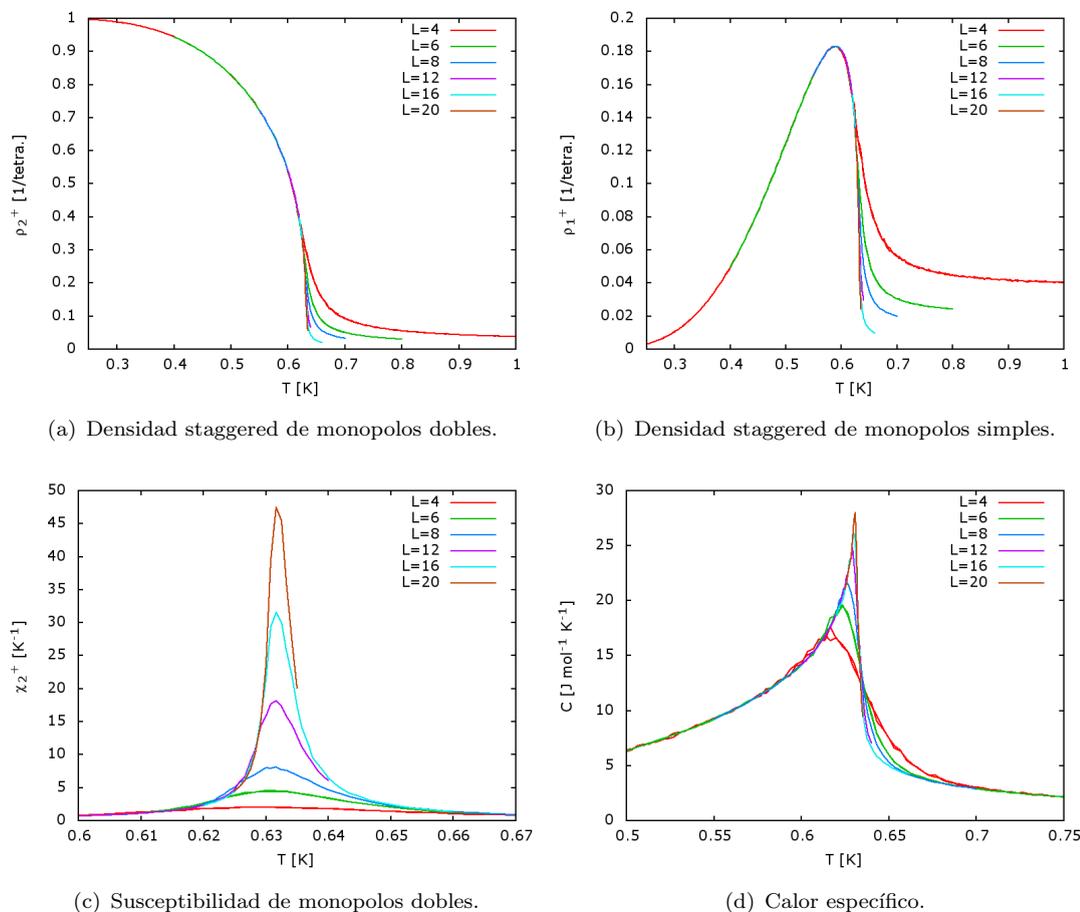


FIGURA 3.3: Algunos resultados de las simulaciones con  $J_{nn} = -2,5K$  con el modelo a primeros vecinos, donde resultan evidentes los efectos de tamaño finito.

en la sección 2.1, al seguir bajando la temperatura resulta más eficiente para disminuir la energía libre total el reducir la energía de configuración que aumentar la entropía. La manera de hacerlo es con un orden de únicamente monopolos dobles (la realización en el esquema de mancuernas de la configuración todos hacia adentro / todos hacia afuera). Más adelante volveremos sobre este tema.

En las figuras 3.3(c) y 3.3(d) se muestran los resultados de la susceptibilidad de monopolos dobles y el calor específico. El pico en ambas cantidades, creciente con el tamaño de la red, sugiere fuertemente y a primera vista una transición de fase.

### 3.2.1. Efectos de tamaño finito

Como estamos trabajando sobre una red tridimensional de spines tipo Ising con interacciones a primeros vecinos, es de esperar que, de ser realmente ésta una transición de fase de segundo orden, los exponentes críticos sean los de la tabla 2.1. Para comprobar esto, tomamos de los distintos tamaños de redes los valores de la densidad staggered de

monopolos dobles, la susceptibilidad y el calor específico en  $T = T_c(L)$ , donde ésta se determina como la posición del máximo del calor específico o de la susceptibilidad. Con estos valores armamos la figura 3.4, donde los comparamos con las predicciones del modelo de Ising en tres dimensiones encontrando un excelente acuerdo.

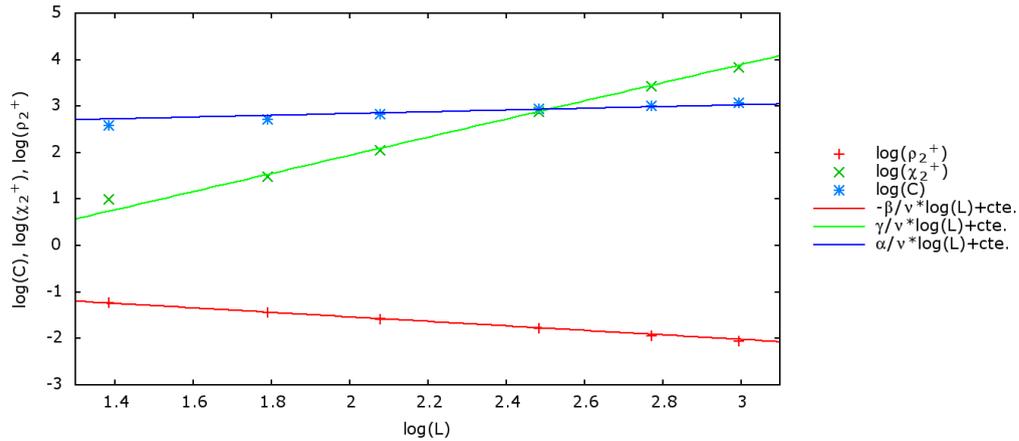
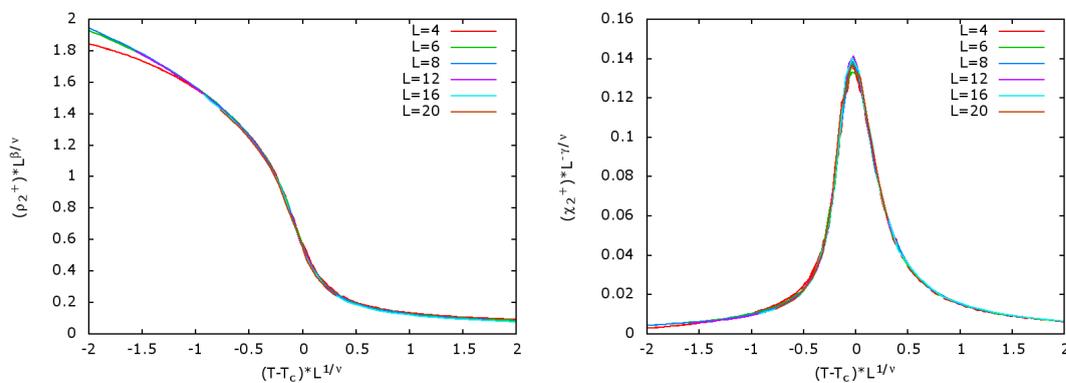


FIGURA 3.4: Comparación de los resultados de las simulaciones con el modelo a primeros vecinos (puntos) con las predicciones del modelo de Ising tridimensional (rectas). Los valores del calor específico, la susceptibilidad y el valor del parámetro de orden en  $T_c(L)$  siguen una ley de potencias con el tamaño de la red dada por los exponentes críticos extraídos de [23].

Luego, utilizamos los exponentes críticos de la tabla 2.1 para realizar un escaleo del parámetro de orden y la susceptibilidad. Elegimos la temperatura crítica  $T_c = 0,6321K$  como la posición del máximo del calor específico para  $L = 20$ . Puesto que todas las curvas colapsan apreciablemente a una sola (figura 3.5), entendemos que ésta es una determinación relativamente buena de  $T_c$ .



(a) Densidad staggered de monopolos dobles escaleada. (b) Susceptibilidad de monopolos dobles escaleada.

FIGURA 3.5: Los resultados de simulaciones con distintos tamaños de red colapsan a una única curva al realizar un escaleo de las cantidades con los exponentes críticos del modelo de Ising tridimensional y  $T_c = 0,6321K$ , según las ecuaciones (2.26) y (2.27).

Todo lo anterior justifica la hipótesis de que nuestro sistema pertenece a la clase de universalidad del modelo de Ising 3D, es decir que efectivamente la transición es de segundo orden.

### 3.2.2. Estudios de dinámica crítica

Para determinar la temperatura crítica, una posibilidad es seguir el camino previo y tomar directamente la posición del máximo del calor específico o de la susceptibilidad correspondientes al mayor tamaño de red utilizado. Este criterio tiene, como se dijo en la sección 2.3, limitaciones debidas a los efectos de tamaño finito. Si bien un sistema de  $20 \times 20 \times 20$  puede, en muchos aspectos, ser considerado “muy grande” (posee 128000 spines), este número dista de ser infinito.

Otra técnica, de la que además se puede extraer los valores de los exponentes críticos, es el estudio de la dinámica de tiempos cortos en temperaturas cercanas a la crítica. Como se mencionó en la sección 2.4, en la temperatura crítica el logaritmo del parámetro de orden debe evolucionar con el logaritmo del tiempo siguiendo una recta de pendiente  $-\beta/(z\nu)$ . El conjunto de datos que más se aproxime a la recta, será nuestra mejor determinación de la temperatura crítica.

En nuestro caso (figura 3.6), las curvas que más se aproximan a la recta teórica son las correspondientes a  $0,6319K$  y  $0,6322K$ , por lo que la temperatura crítica real

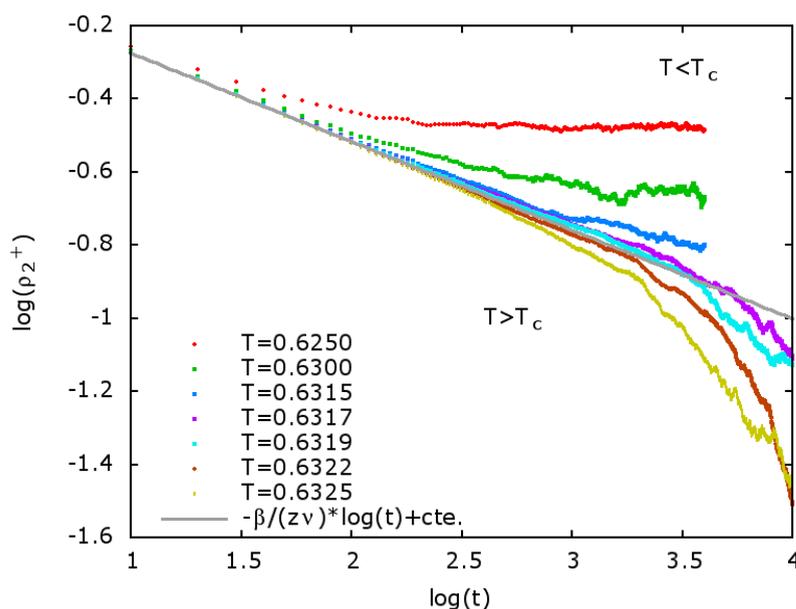


FIGURA 3.6: Comenzando con el sistema ordenado, el parámetro de orden muestra una dinámica crítica (decrecimiento como una ley de potencias) para  $T = T_c$ . El modelo de Ising predice un comportamiento como el de la recta gris.

debe encontrarse en ese rango. De esta manera, confirmamos la validez de la  $T_c$  y de los exponentes hallados antes y vemos que nuestro método de tomar la posición del máximo del calor específico es lo suficientemente preciso.

### 3.3. Diagrama de fases a primeros vecinos

A partir de los resultados de la figura 3.1(b) y habiendo estudiado ya los dos regímenes presentes, armamos el diagrama de fases de la figura 3.7 y lo interpretamos en términos del modelo de mancuernas.

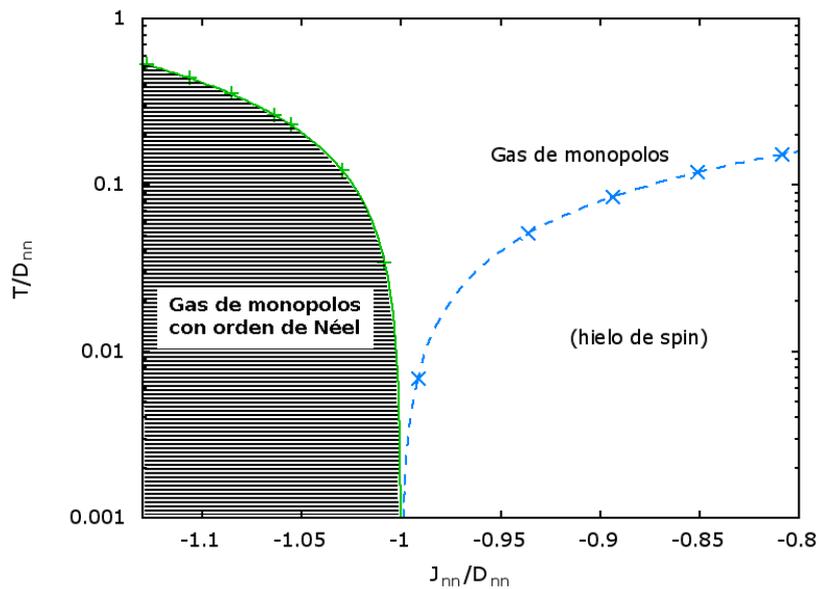


FIGURA 3.7: Diagrama de fases  $T/D_{nn}$  vs.  $J_{nn}/D_{nn}$  con interacciones a primeros vecinos. Los puntos son la posición del máximo del calor específico para cada caso, la línea verde representa la transición de segundo orden y la azul el crossover hacia el estado fundamental degenerado de los hielos de spin. Recordemos que al haber excluido las interacciones de largo alcance, al decir “monopolos” queremos decir realmente “defectos sin carga”.

La fase de altas temperaturas, donde cada spin puede apuntar en sus dos orientaciones posibles con igual probabilidad, se identifica con un gas de monopolos (simples y dobles), puesto que instante a instante pueden crearse, destruirse y moverse libremente por la red manteniendo en promedio una densidad de  $\rho(T \rightarrow \infty) \simeq 5/8$ . Este número resulta de considerar las posibles configuraciones que tienen por resultado monopolos: en cada tetraedro, ocho de las dieciséis configuraciones posibles dan monopolos simples, con lo que  $\rho_1(T \rightarrow \infty) = 8/16 = 1/2$ . Del mismo modo, para monopolos dobles se tiene  $\rho_2(T \rightarrow \infty) = 2/16 = 1/8$ .

Cuando se satisfacen las reglas del hielo y se tiene un hielo de spin propiamente dicho, nos encontramos, casi por definición, en un vacío de monopolos. Sin embargo, a temperatura no nula siempre existen defectos en la red de spines por efectos entrópicos, de forma que los hielos de spin no se mapean a una fase nueva sino a un gas de monopolos de baja densidad. El pico en el calor específico de la figura 3.1(b) para las corridas con  $|J_{nn}| < D_{nn}$  no corresponde a una transición de fase, sino que es algo similar a una anomalía de Schottky.

El orden de Néel de spines es similar al de un cristal de monopolos dobles, ya que las cargas magnéticas positivas y negativas se acomodan en la red análogamente a como lo hacen los iones en un cristal iónico. Esto se debe al hecho de que un dipolo que apunta hacia adentro de un tetraedro, necesariamente apunta hacia afuera del vecino; la única manera de tener una fase de spines todos hacia adentro / todos hacia afuera es ordenando los monopolos dobles alternadamente. Como mencionamos en la sección 3.2, ese es el orden que prevalece al disminuir la temperatura lo suficiente. A temperaturas algo mayores, donde la entropía aún juega un papel importante, se tiene un orden alternado de monopolos simples y dobles. Englobando los dos regímenes, llamamos a esta fase “gas de monopolos con orden de Néel”.

## Capítulo 4

# Estudio con interacciones de largo alcance

Agregamos ahora las interacciones dipolares de largo alcance (IDLA) y tratamos con el hamiltoniano (1.5). Nuevamente, variamos  $J_{nn}$  manteniendo  $D_{nn} = 2,35K$  constante para obtener el diagrama de fases del sistema, pero lo expresamos en esta oportunidad en términos de la densidad de carga magnética,  $\rho_Q$ . Mediante un análisis de sistemas finitos, caracterizamos las transiciones presentes. A la vista de estos resultados, volvemos sobre el diagrama de fases a primeros vecinos del capítulo anterior y lo reinterpretamos en términos de los monopolos.

Finalmente, hacemos corridas ZFC-FC para verificar que el diagrama de fases encontrado es, efectivamente, un diagrama de equilibrio.

### 4.1. Primer acercamiento

Nuevamente realizamos corridas disminuyendo la temperatura a campo magnético externo nulo en sistemas pequeños ( $L = 3$ ) con distintos valores de  $J_{nn}$ , ahora teniendo en cuenta las interacciones dipolares. En las figuras 4.1 y 4.2 se muestran los resultados obtenidos para  $|J_{nn}| \leq 2,14K$  y  $|J_{nn}| \geq 2,147K$ , respectivamente. Al igual que en el capítulo anterior, hay dos regímenes bien diferenciados, dependiendo de que  $|J_{nn}|$  sea mayor o menor que un dado  $|J_{nn}^0|$  en el intervalo  $(2,14K; 2,147K)$ . Esto va de la mano de algo que adelantamos en la sección 1.3.2: en presencia de interacciones de largo alcance, la transición hacia el orden de Néel se extiende ligeramente a  $|J_{nn}| < D_{nn} = 2,35K$ ,<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Recordemos que estamos usando  $D_{nn}$  fijo en el valor correspondiente a  $Dy_2Ti_2O_7$  y  $Ho_2Ti_2O_7$ . En rigor, las variables correctas para expresar los resultados serían  $J_{nn}/D_{nn}$  y  $T/D_{nn}$ .

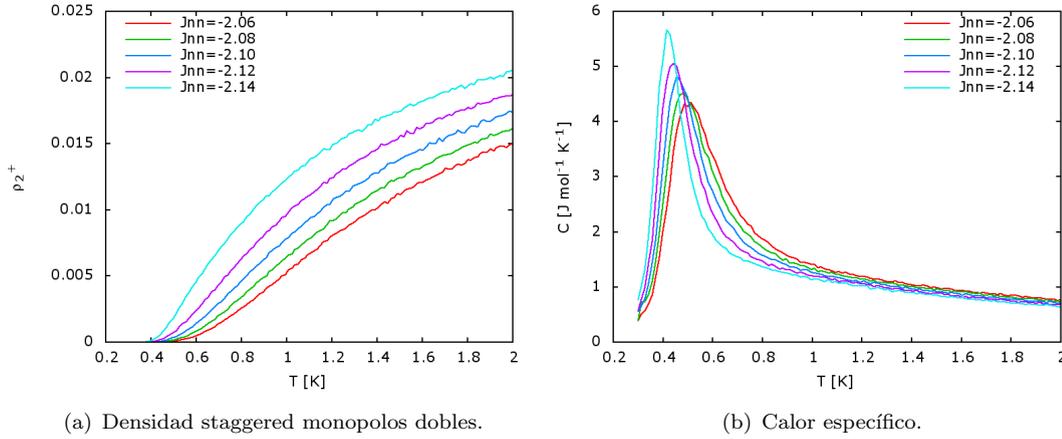


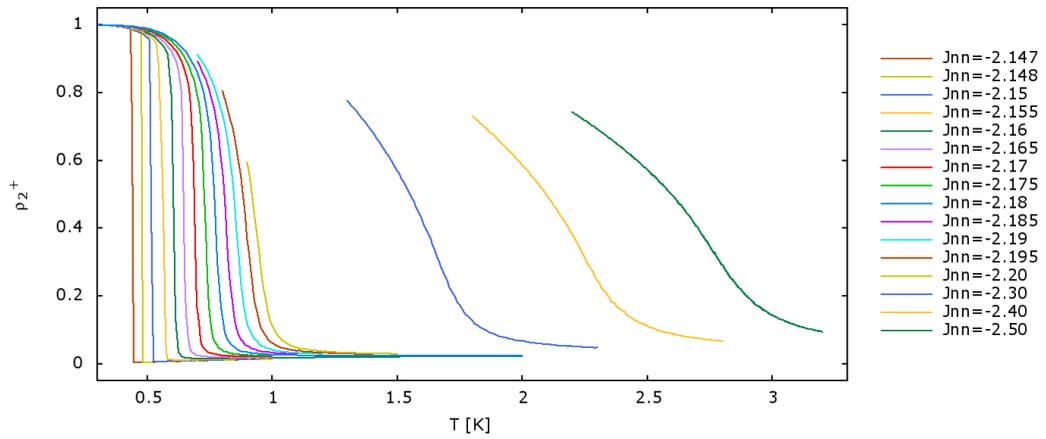
FIGURA 4.1: Algunos resultados de las simulaciones del modelo dipolar con  $L = 3$  para distintos  $J_{nn}$  con  $|J_{nn}| \leq 2,14K$ . Nótese la gran diferencia de escalas con los de la figura 4.2.

mientras que con interacciones a primeros vecinos esa región era exclusiva de los hielos de spin. Esto implica entonces que las interacciones dipolares de largo alcance tienden a dar estabilidad a la fase antiferromagnética. Aquí volvemos a comprobar el poder y la belleza del modelo monopolar: no es difícil entender esta estabilización para  $|J_{nn}|$  menor pero cercano a  $D_{nn}$  si pensamos que la energía dispensada en crear monopolos puede ser compensada largamente por la atracción de los mismos (ahora operativa, pero nula en el caso del capítulo anterior). Algo similar ocurre en los cristales iónicos donde, por ejemplo, la energía invertida para ionizar los átomos de  $Na$  y  $Cl$  (es decir, para “crear cargas”) es devuelta con creces por la energía de formación del cristal de  $NaCl$  [32].

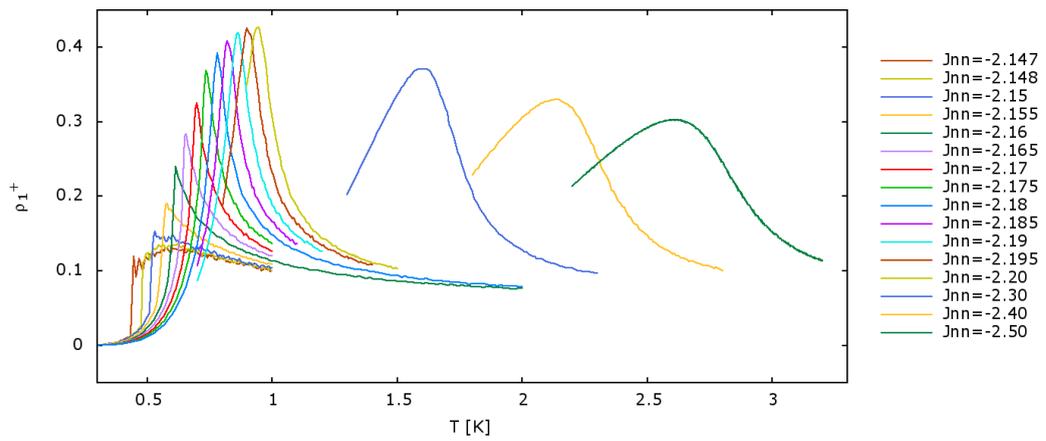
Continuando con el análisis de los resultados, en la región  $|J_{nn}| < |J_{nn}^0|$  integramos el calor específico de la figura 4.1(b) como indica la ecuación (2.21) para calcular el cambio de entropía (figura 4.3). De este modo, identificamos nuevamente a los hielos de spin.

Hasta aquí no se han presentado diferencias sustanciales con el caso a primeros vecinos, más que el diagrama de fases parecería haberse corrido ligeramente hacia la derecha. En la región  $|J_{nn}| \geq 2,147K$  vemos, al igual que en el capítulo anterior, la aparición de un orden incipiente de monopolos simples (figura 4.2(b)) dados los beneficios entrópicos mencionados previamente, que desaparece en favor del orden de monopolos dobles a medida que continuamos bajando la temperatura.<sup>2</sup> Sin embargo, vemos una tendencia novedosa en el parámetro de orden (figura 4.2(a)), que pasa de tener un comportamiento suave y continuo a uno tipo escalón a medida que disminuye  $|J_{nn}|$ . A la vez, el pico en el calor específico se hace extremadamente agudo. Tomamos esto como indicio de una transición de primer orden que se va transformando en una de segundo

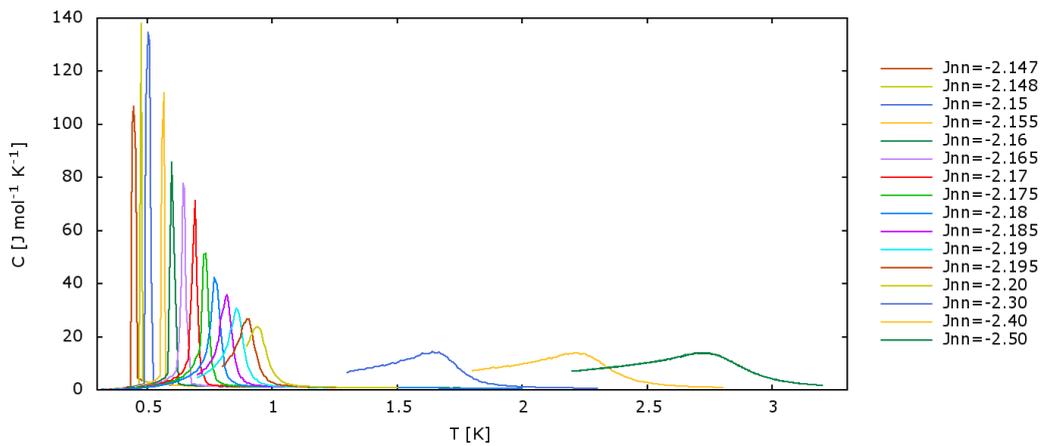
<sup>2</sup>Esta idea podría ser explotada, en futuras investigaciones, aplicando un campo magnético en la dirección 111 para favorecer energéticamente a los monopolos simples.



(a) Densidad staggered de monopolos dobles.



(b) Densidad staggered de monopolos simples.



(c) Calor específico.

FIGURA 4.2: Algunos resultados de las simulaciones del modelo dipolar con  $L = 3$  para distintos  $J_{nn}$  con  $|J_{nn}| \geq 2,147K$ . Es posible intuir la presencia de una transición de fase de primer orden que progresivamente se va convirtiendo en una de segundo a medida que crece  $|J_{nn}|$ .

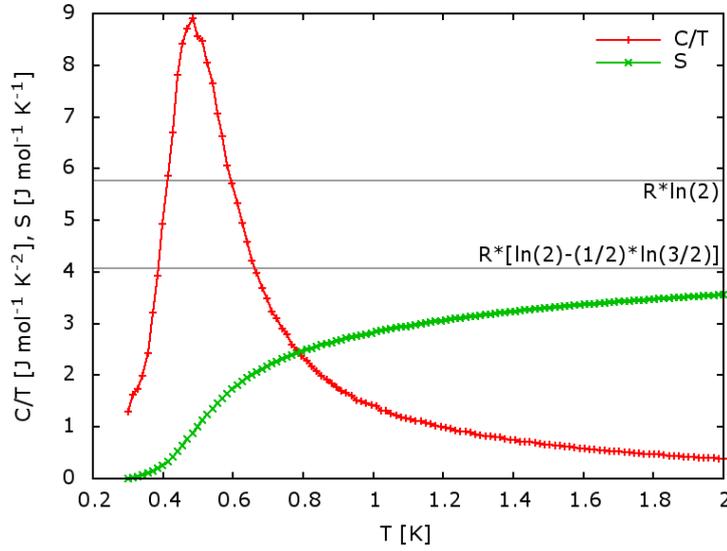


FIGURA 4.3: Calor específico sobre temperatura y entropía para  $J_{nn} = -2,06K$ . Vemos que para el modelo dipolar aún se recupera la entropía residual de Pauling.

al aumentar  $|J_{nn}|$ , de acuerdo con lo sugerido por R. G. Melko en [13], y lo mostramos en la sección siguiente.

## 4.2. Orden de las transiciones

Del mismo modo que en el capítulo anterior, comenzamos realizando corridas con valores de  $J_{nn}$  característicos de cada clase de transición para estudiar su naturaleza. En este caso, realizamos barridos en temperatura repitiendo  $J_{nn} = -2,5K$  (con  $L = 3, 4, 6$ ) para analizar la transición de segundo orden, y agregamos  $J_{nn} = -2,16K$  (con  $L = 2, 3, 4$ ) para la de primero.<sup>3</sup>

En el primer caso (figura 4.4), hicimos un estudio de tamaño finito totalmente análogo al de la sección 3.2.1. En la figura 4.5 se comparan los resultados de las simulaciones con las predicciones del modelo de Ising tridimensional, confirmando que esta transición continúa siendo de segundo orden y perteneciendo a esa clase de universalidad, a pesar de estar presentes interacciones de largo alcance, por tratarse de un sistema AF [25].

Para el caso de  $J_{nn} = -2,16K$ , queremos comprobar que efectivamente se trata de una transición de fase de primer orden. En la figura 4.7 se observan algunos resultados de las simulaciones realizadas, que pueden compararse con los de la figura 4.4 para ver cuán diferente es la manifestación de los efectos de tamaño finito en ambos casos. En

<sup>3</sup>Los tiempos computacionales se hacen tanto más largos al incluir interacciones efectivas de rango infinito que nos limitamos a redes pequeñas. Esto es particularmente cierto en el caso de las transiciones de fase de primer orden, en las que las fluctuaciones a través de la barrera de energía son notoriamente difíciles de medir.

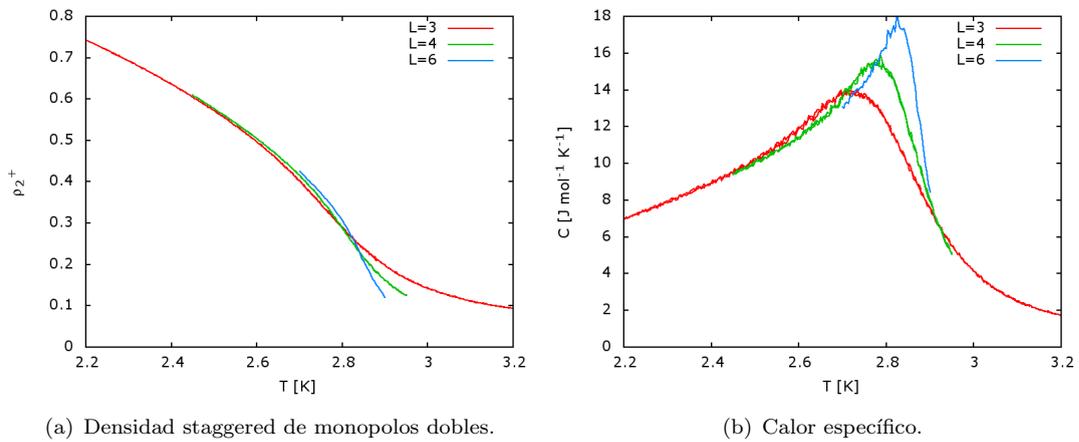


FIGURA 4.4: Parámetro de orden y fluctuaciones de la energía para las simulaciones con  $J_{nn} = -2,5K$  utilizando el modelo dipolar.

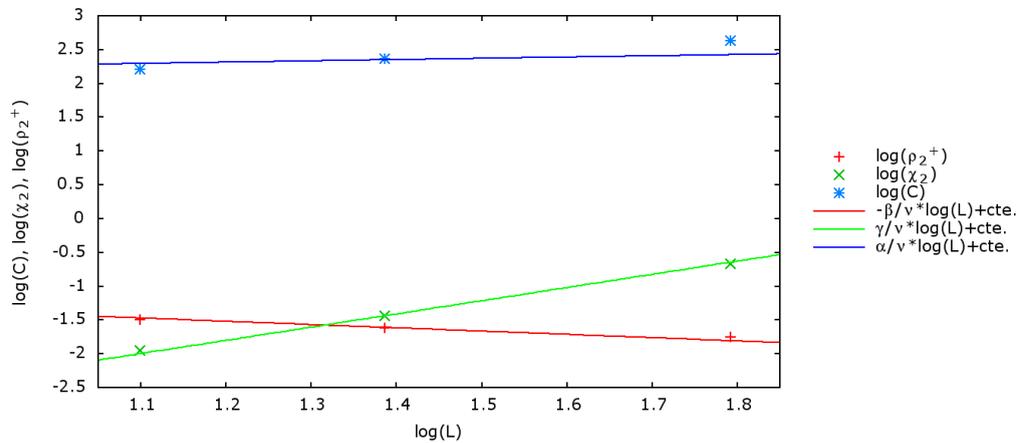
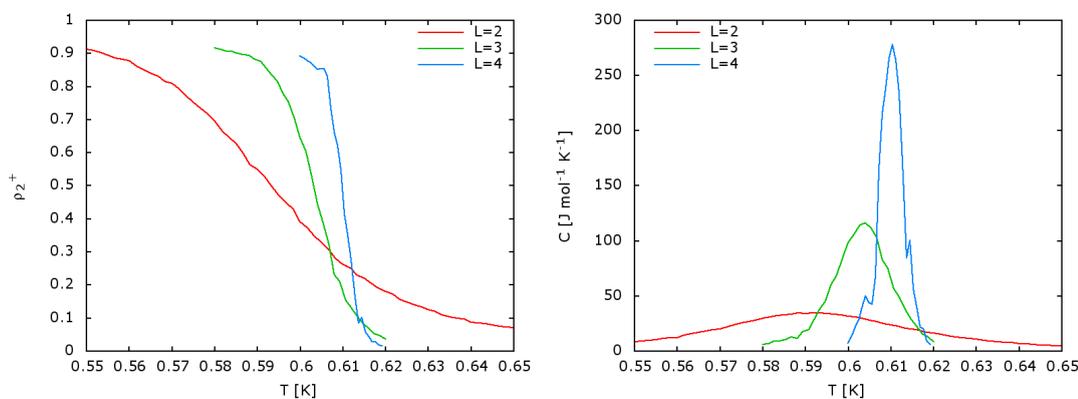


FIGURA 4.5: Comparación de los resultados de las simulaciones para el modelo dipolar (puntos) con las predicciones teóricas (rectas) dadas por los exponentes críticos correspondientes al modelo de Ising tridimensional según [23].

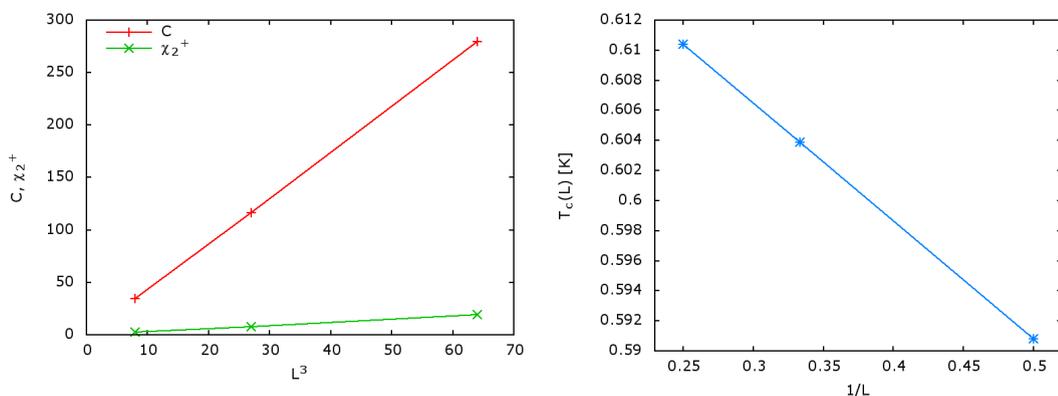
particular, en la figura 4.6(a) se ve cómo el salto en el parámetro de orden se vuelve cada vez más abrupto al aumentar el tamaño de la red; en el límite termodinámico se esperaría encontrar directamente una función escalón. En la figura 4.7(a) se muestra la dependencia del máximo del calor específico y de la susceptibilidad con el volumen  $L^3$ , resultando proporcionales como se espera en una transición de primer orden. La posición del máximo del calor específico  $T_c(L)$ , por su parte, resulta proporcional a  $1/L$  (figura 4.7(b)).

Como la transición de primer orden se transforma en una de segundo, deberá haber un punto tricrítico entre ellas. Se trata de un punto especial, perteneciente a una clase de universalidad distinta que la línea de transiciones continuas que sigue, que aún no ha sido estudiado en este sistema.



(a) Densidad staggered de monopolos dobles.

(b) Calor específico.

 FIGURA 4.6: Parámetro de orden y fluctuaciones de la energía para las simulaciones con  $J_{nn} = -2,16K$  con el modelo dipolar. Como se explica en el texto, en una transición de primer orden se hacen presentes efectos de tamaño finito de una manera distintiva.


(a) Calor específico y susceptibilidad vs. volumen.

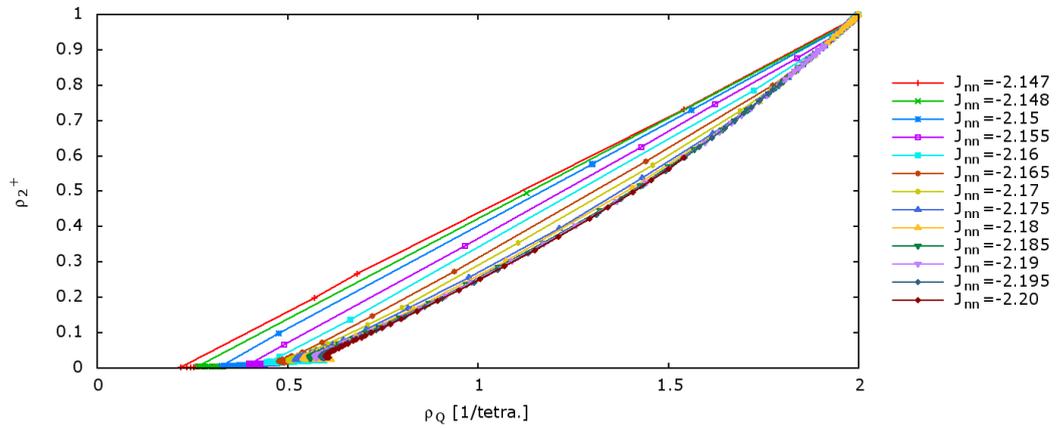
 (b)  $T_c$  obtenida de la posición del máximo de  $C$ .

 FIGURA 4.7: En una transición de primer orden, el calor específico y la susceptibilidad para cada tamaño de red deben ser proporcionales al volumen  $L^3$ , mientras que la temperatura crítica para cada tamaño debe decrecer proporcionalmente a  $1/L$ . Los puntos son los resultados de las simulaciones; están unidos por segmentos rectos para mostrar mejor la tendencia.

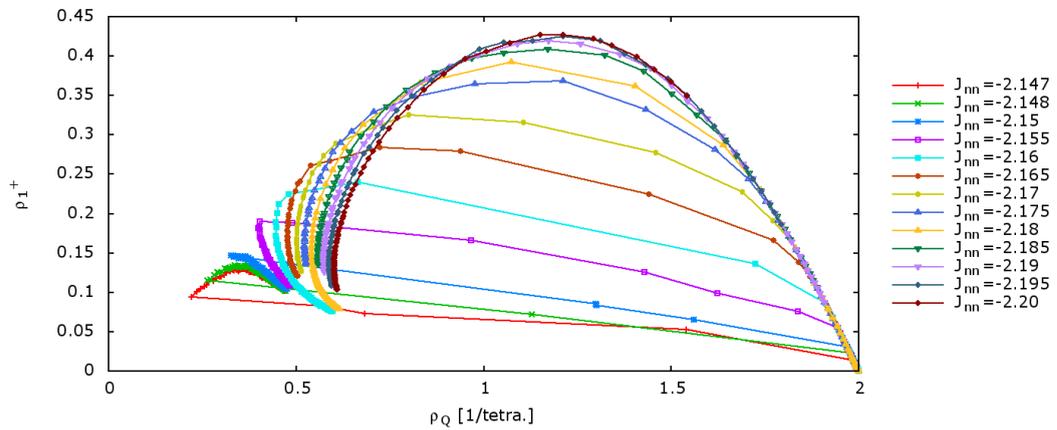
### 4.3. Diagrama de fases con interacciones de largo alcance

Dado que nuestro interés consiste en estudiar la física de los hielos de spin en términos de sus excitaciones (los monopolos) antes que de sus constituyentes reales (los spines), pasamos ahora a considerar algunas cantidades de interés en función de la densidad de carga magnética. En la figura 4.8 se muestran la densidad staggered de monopolos dobles, la de simples y el calor específico correspondientes a los  $J_{nn}$  en los que observamos la transición de fase, ya sea de primer o de segundo orden (para no sobrecargar visualmente los gráficos, omitimos los  $J_{nn} < -2,20K$ ). Señalemos, en primer lugar, que la densidad de carga comienza siendo la correspondiente al límite de alta temperatura y disminuye

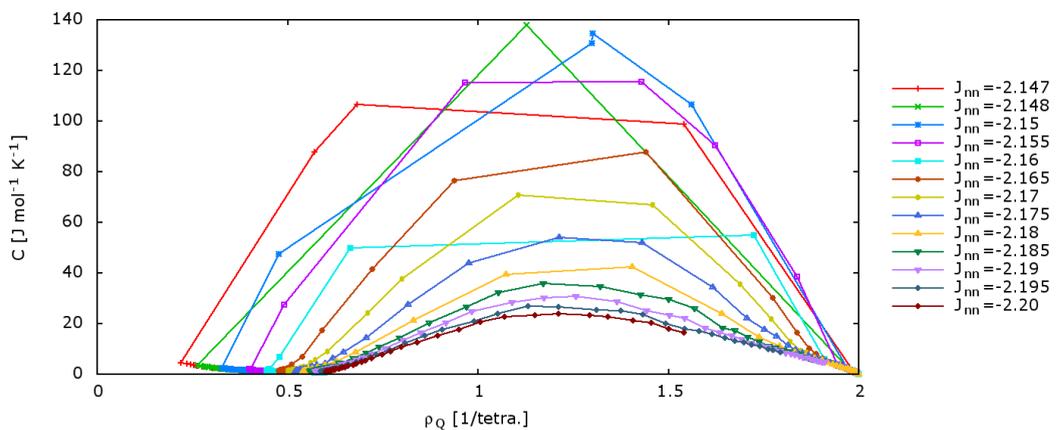
a medida que enfiamos el sistema hasta que ocurre la transición, por lo que en los tres gráficos se observa que se recorre “al revés” la región  $\rho_Q < 0,625$ .



(a) Densidad staggered de monopolos dobles.



(b) Densidad staggered de monopolos simples.



(c) Calor especifico.

FIGURA 4.8: Algunos resultados en función de la densidad de carga magnetica. Se observa cómo la cantidad de puntos intermedios en el salto de baja a alta densidad crece con  $|J_{nn}|$ , mostrando el pasaje de la transición de primer orden a una de segundo.



de  $L \rightarrow \infty$ , el sistema no puede permanecer homogéneo.<sup>4</sup> Supongamos, por ejemplo, que se enfría un sistema con  $\rho_Q = 0,4$  hasta aproximadamente  $0,51K$ , valores que lo ubican justo en el borde del domo. Si se quisiera seguir enfriando, el sistema se separaría en dos fases ocupando regiones bien diferenciadas del material. Por un lado, un gas de monopolos, en el que los tetraedros que conforman una estructura tipo diamante están casi vacíos. Por otro lado, una fase con una gran densidad de monopolos dobles conformando una estructura iónica tipo zincblende.

Podemos comparar nuestro diagrama de fases con el de la figura 4.10. Para obtener ese resultado, R. Dickman y G. Stell modelaron un sistema de cargas reales (mitad positivas y mitad negativas) con interacciones coulombianas y de exclusión en una red [33]. Con el término “reales” queremos hacer hincapié en que nosotros no simulamos cargas, sino un conjunto de spines con interacciones de intercambio y dipolares; la formulación en términos de partículas cargadas (magnéticamente) se desprende del modelo de spines. El acuerdo entre ambos diagramas nos habla de lo adecuado de la interpretación de nuestros resultados en términos de monopolos magnéticos.

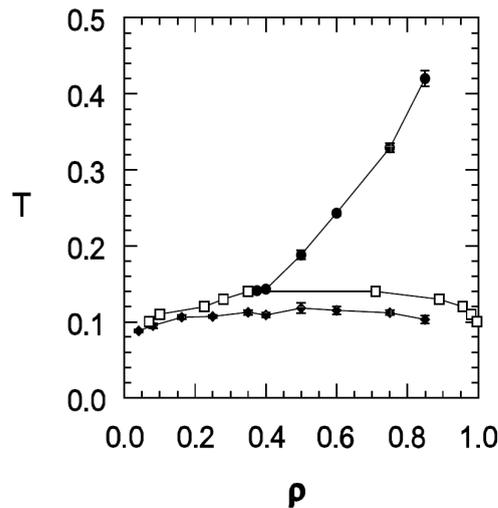


FIGURA 4.10: Diagrama de fases temperatura vs. densidad de carga obtenido en [33] al modelar un sistema de cargas “reales” con interacciones coulombianas y de exclusión (los puntos llenos y vacíos corresponden a dos tipos de simulaciones distintas, que dan resultados cualitativamente similares).

Como mencionamos en la introducción, nuestro diagrama de fases es más realista que el de la figura 1.3, hallado por R. A. Borzi *et. al* en [12] a través de simulaciones con número de monopolos simples fijo. En nuestro caso, al realizar corridas en temperatura, permitimos que el sistema evolucionara libremente creando la cantidad y el tipo de cargas magnéticas más convenientes en cada paso. Sin embargo, se observan grandes similitudes entre ambos diagramas, puesto que nosotros también encontramos las transiciones de

<sup>4</sup>Por esta razón, suprimimos los puntos intermedios de las simulaciones, hechas con redes finitas, para representar el salto discontinuo.

primer orden entre el gas y el cristal, y la de segundo orden entre el gas y el “fluido de Néel”.<sup>5</sup> No pudimos encontrar la transición de primer orden en  $180mK$  al vacío ordenado puesto que a temperaturas tan bajas el sistema no permanece en equilibrio.

Es también reconfortante comparar nuestro diagrama de fases con el que surge de modelos efectivos de líquidos contenido iones (electrolitos) que se apartan del comportamiento ideal. En la figura 4.11 se muestra el diagrama obtenido por C. Castelnovo y colaboradores a través del modelo de plasma de dos componentes [1]. Si bien se encuentra un domo de coexistencia a bajas temperaturas como el de la figura 4.9, vemos que falta la transición de segundo orden entre el gas y el fluido de Néel. Atribuimos esta diferencia a que nuestro modelo (y también el material) es *on lattice*, es decir que las partículas están obligadas a habitar puntos discretos en una red, mientras que en el modelo de plasma pueden ocupar cualquier punto del espacio.

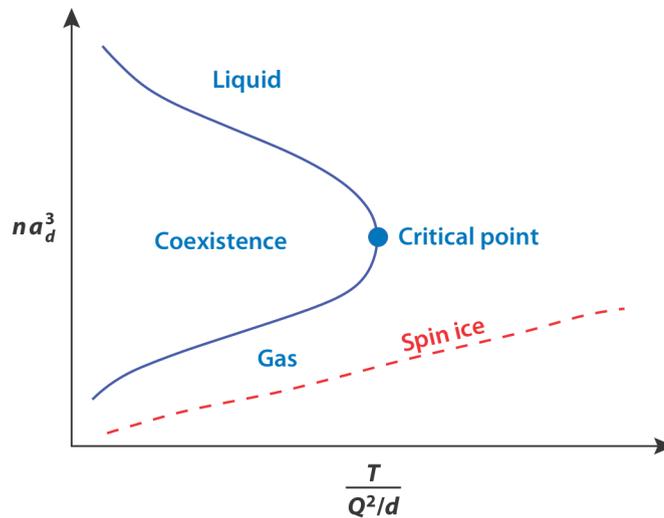


FIGURA 4.11: Diagrama de fases densidad de monopolos vs. temperatura (adecuadamente adimensionalizada) hallado mediante el modelo de plasma de dos componentes [1]. El domo de coexistencia es análogo al que encontramos en este trabajo, pero se observa que falta la transición de segundo orden.

#### 4.4. Interacciones y correlaciones entre monopolos

Las transiciones de fases presentes en este sistema son atribuibles a las interacciones coulombianas entre monopolos. Para minimizar la repulsión, a altas densidades de carga lo más favorable resulta ser acomodar alternadamente los monopolos positivos y negativos en subredes distintas. Recordemos, sin embargo, que también encontramos una

<sup>5</sup>El fluido de Néel y el cristal son realmente la misma fase, sólo que llamamos cristal estrictamente a la región del espacio de parámetros donde  $\rho_2^\dagger \approx 1$ . Al presentarse a mayor temperatura, en el fluido de Néel los monopolos (tanto dobles como simples) pueden moverse en la red, aunque lo hacen manteniéndose preferentemente en subredes distintas de acuerdo a su signo (véanse las figuras 4.8(a) y 4.8(b)) y manteniendo una fase homogénea.

transición hacia una fase ordenada de este tipo en el estudio a primeros vecinos, donde los monopolos no interactúan (más que a través de la exclusión en cada sitio de la red).<sup>6</sup> Volvemos entonces al análisis de los resultados de las simulaciones con interacciones a primeros vecinos.

Dado el párrafo anterior, parecería que estamos en una suerte de paradoja. Analizando la transición de fase para el modelo a primeros vecinos desde el punto de vista de los spines, entendemos el orden “todos hacia adentro / todos hacia afuera” como lo explicamos en la sección 1.3.1: es el resultado de minimizar la energía para un sistema con interacciones AF. Desde el punto de vista de los monopolos (que en este modelo incluyen interacciones repulsivas que impiden poner más de dos monopolos simples del mismo signo en el mismo sitio, pero no interacciones coulombianas atractivas), sin embargo, no parece posible entender que ocurra una transición de fase en la que los mismos se ordenan alternadamente.

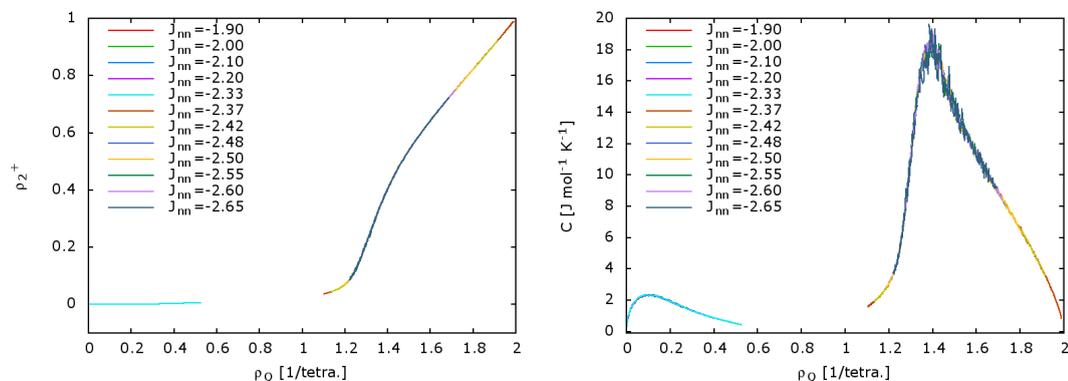
Intentaremos comprender esta paradoja de la siguiente forma. Entendemos que, en el caso de interacciones entre spines a primeros vecinos, la transición hacia el orden de Néel en el marco de monopolos puede verse como un problema, al igual que el de la transición percolativa, puramente geométrico. El ordenamiento no se debe a interacciones entre las partículas, sino a los efectos de correlación que los spines subyacentes al modelo de mancuernas inducen en los monopolos.<sup>7</sup> Viendo el comportamiento del parámetro de orden y el calor específico en función ya no de la temperatura sino de la densidad de carga (figura 4.12), encontramos que la transición de fase es exactamente la misma para todos los valores de  $J_{nn} < -2,35K$  (para el resto, no hay transición sino crossover hacia un gas de monopolos menos denso). El parámetro que detona la transición es puramente geométrico, y no es otro que la densidad (o, al igual que en percolación, la probabilidad de que una partícula ocupe un sitio) de carga magnética  $\rho_Q$ .

A baja densidad de carga, que se corresponde con una baja densidad de monopolos, el sistema se encuentra desordenado. Si por efecto de la disminución de temperatura comienzan a crearse más cargas,<sup>8</sup> la densidad irá aumentando lentamente hasta alcanzar un valor  $\rho_{Q_c}$  a partir del cual no será posible continuar creando monopolos sin que haya un ordenamiento. En efecto, en el diagrama de fases  $T$  vs.  $\rho_Q$  de la figura 4.13 se observa que la transición es independiente de la temperatura y ocurre a  $\rho_{Q_c} \approx 1,3$ .

<sup>6</sup>Para enfatizar esto es que llamamos “gas” a ambas fases (“gas de monopolos” y “gas de monopolos con orden de Néel”, véase la figura 3.7): al no haber atracción entre las partículas sería incorrecto pensar que el gas condensa a un “líquido”.

<sup>7</sup>Como se dijo en la sección 3.2, el orden de Néel “todos los spines hacia adentro / todos los spines hacia afuera” implica necesariamente que los monopolos dobles se acomoden alternadamente en la red.

<sup>8</sup>No olvidemos que las simulaciones que estamos estudiando son barridos en temperatura. La densidad de carga es una de las cantidades que calculamos en cada paso y es, por lo tanto, dependiente de la temperatura.



(a) Densidad staggered de monopolos dobles.

(b) Calor específico.

FIGURA 4.12: Parámetro de orden y calor específico en función de la densidad de carga. En la región de  $\rho_Q \leq 0,6$  se encuentran los resultados para hielos de spin, mientras que en  $\rho_Q \geq 1$  aparecen los correspondientes a los sistemas que sufren la transición de fase de segundo orden. Nótese que ésta es exactamente la misma, como función de la densidad de carga, para todos los valores de  $J_{nn} < -2,35$ .

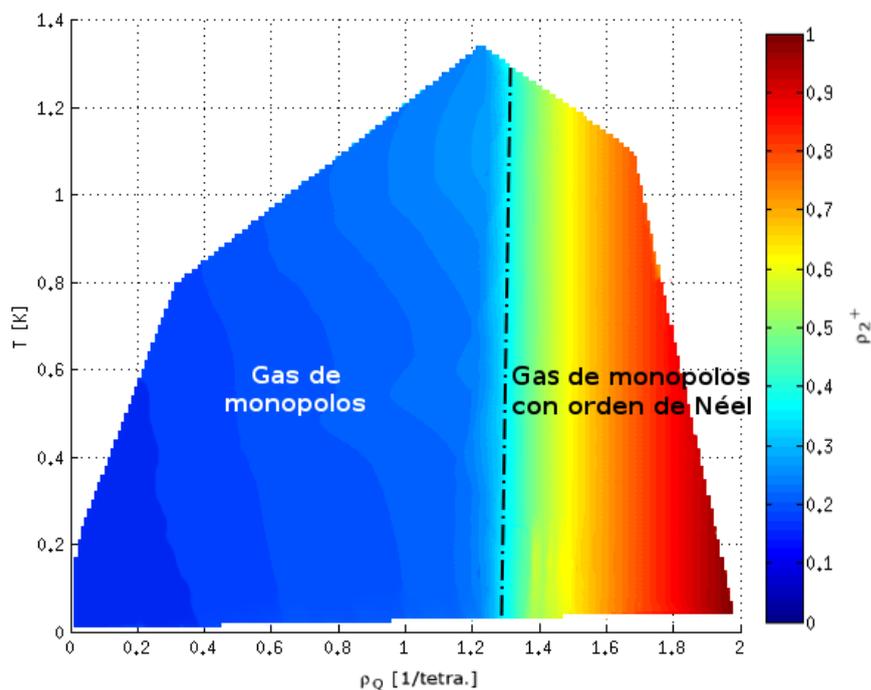


FIGURA 4.13: Diagrama de fases  $T$  vs.  $\rho_Q$  con interacciones a primeros vecinos. El coloreado corresponde a la densidad staggered de monopolos dobles. Se observa que la transición de segundo orden entre el gas de monopolos y el cristal ocurre a  $\rho_{Q_c} \approx 1,3$  independientemente de la temperatura, por lo que decimos que se trata de una transición de fase geométrica.

## 4.5. Sobre el equilibrio

Retomamos ahora el estudio con interacciones de largo alcance. Con el objeto de verificar que el diagrama que encontramos (figura 4.9) es el de equilibrio, hicimos corridas ZFC-FC con un campo de  $|\mathbf{H}| = 0,1T$  (en el mismo rango de temperaturas y con la misma cantidad de pasos Monte Carlo que las corridas anteriores) para algunos  $J_{nn}$  representativos de las distintas transiciones y fases presentes (entre ellos el máximo y el mínimo valor utilizados). En efecto, en la figura 4.14(a) vemos que no hay dependencia de la magnetización con la historia para  $J_{nn}$  igual a  $-2,06K$  y  $-2,12K$  (correspondientes al crossover hacia los hielos de spin),  $-2,148K$  (transición de primer orden) y  $-2,5K$  (transición de segundo orden). Esto implica que el sistema se encuentra siempre por encima de su temperatura de bloqueo (o de congelamiento de la dinámica)  $T_b$  para los tiempos característicos de medida utilizados a lo largo de este trabajo y puede, por lo tanto, evolucionar libremente con la temperatura. Confirmamos así que el diagrama encontrado es de equilibrio.

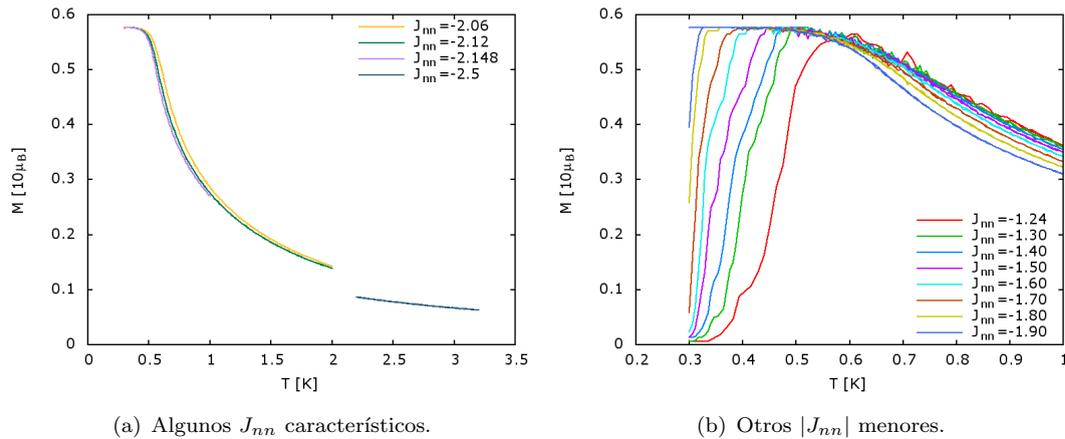


FIGURA 4.14: Resultados de las corridas ZFC-FC con un campo de  $|\mathbf{H}| = 0,1T$  en función de la temperatura. (a) Se observa la ausencia de histéresis en la magnetización para  $J_{nn}$  igual a  $-2,06K$  y  $-2,12K$  (correspondientes al crossover hacia los hielos de spin),  $-2,148K$  (transición de primer orden) y  $-2,5K$  (transición de segundo orden), lo que indica que el sistema se encontraba siempre en equilibrio durante nuestras medidas.

(b) Para valores de  $|J_{nn}|$  menores, el equilibrio se pierde a distintas  $T_b$ .

Como se muestra en la figura 4.14(b), también probamos con valores menores de  $|J_{nn}|$  (que no fueron incluidos en el estudio de este capítulo) para ver cuándo se pierde el equilibrio. Se observa que  $T_b$  es distinta en cada caso.

En términos de la densidad de carga magnética, en cambio, se observa un comportamiento distinto: todos los  $J_{nn}$  en los que se pierde el equilibrio lo hacen aproximadamente en la misma  $\rho_{Q_b} \approx 3 \cdot 10^{-5}$  (figura 4.15). Esto nos da una idea de que basta con

una cantidad muy pequeña de monopolos magnéticos para descongelar la dinámica de estos sistemas.

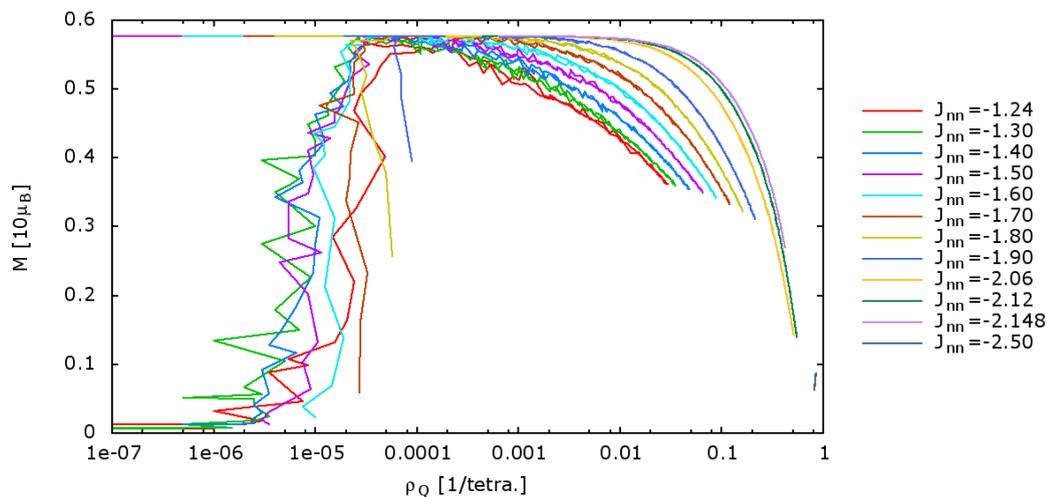


FIGURA 4.15: Resultados de las corridas ZFC-FC con un campo de  $|\mathbf{H}| = 0,1T$  en función de la densidad de carga magnética. Nuevamente, se observa la ausencia de histéresis en la magnetización para  $J_{nn} = -2,06K, -2,12K, -2,148K$  y  $-2,5K$ . Para valores de  $|J_{nn}|$  menores, sin embargo, se pierde el equilibrio a aproximadamente la misma  $\rho_{Q_b} \approx 3 \cdot 10^{-5}$ .

## Capítulo 5

# Conclusiones y perspectivas

En el presente trabajo estudiamos los materiales conocidos como hielos de spin a través de simulaciones computacionales, con el objetivo de analizar el comportamiento colectivo de las cuasipartículas que en ellos habitan: los monopolos magnéticos. Para esto, utilizamos tanto el modelo a primeros vecinos como el dipolar, que se reinterpretan como un modelo de monopolos no interactuantes, el primero, y monopolos que interactúan coulombianamente, el segundo. Así, obtuvimos los diagramas de fases temperatura vs. densidad de carga magnética en ambos casos.

Constituye un resultado notable el hecho de que el diagrama de fases obtenido con el modelo dipolar es análogo al encontrado en un sistema de cargas por R. Dickman y G. Stell [33], pese a que en nuestro sistema no hay cargas reales sino spines. Esto reafirma la validez de la descripción del sistema en términos de cargas magnéticas, incluso para densidades grandes de monopolos.

También reprodujimos los resultados encontrados por R. A. Borzi y colaboradores con un modelo con densidad de monopolos simples fija [12]. Nuestras simulaciones tienen la virtud de evitar el recurso un tanto artificial de permitir sólo monopolos simples, sino que nuestro sistema es libre de evolucionar con la temperatura y crear la cantidad y el tipo de cargas correspondientes al equilibrio termodinámico en cada paso. Comparando con el diagrama de fase de C. Castelnovo *et al.* [1], hallamos una transición de fase nueva, que estriba en una diferencia intrínseca entre ambos sistemas: tanto nuestro modelo como los materiales reales son discretos (*on lattice*), mientras que el modelo de Debye-Huckel para líquidos es de naturaleza continua.

Respecto a las fases presentes, identificamos en el diagrama de fases de ambos modelos una fase ordenada que asociamos con un cristal de monopolos dobles, en el que éstos se ubican alternadamente en dos subredes distintas cual cargas eléctricas en un

cristal iónico. También hallamos una fase gaseosa, donde los monopolos pueden moverse por la red, crearse y aniquilarse libremente, sin ruptura de simetría entre las subredes.

En el caso del modelo dipolar, reservamos la denominación de “cristal” para la región de bajas temperaturas y altas densidades de carga, en la que hay coexistencia con la fase gaseosa; cuando no, nos referimos a esa fase como “fluido de Néel”, en el que los monopolos simples y dobles pueden moverse por la red pero tienden a alojarse preferencialmente en subredes distintas según su carga. Encontramos que la transición de primer orden entre el gas y el cristal se transforma en una de segundo orden en un punto tricrítico aproximadamente en  $\rho_{Q_t} = 1,17$  y  $T_t = 0,8K$ . Debido al algoritmo computacional utilizado (single-spin flip), no nos fue posible equilibrar el sistema por debajo de los  $180mK$  para hallar el orden del vacío reportado en [12].

En el caso a primeros vecinos, mostramos que el cristal y el gas están separados por una transición de fase geométrica, donde el ordenamiento no se debe a las interacciones entre monopolos, pues no las hay, sino a las correlaciones inducidas por los spines subyacentes al modelo de mancuernas. Como función de la temperatura determinamos, mediante un análisis de tamaño finito, que esta transición es de segundo orden y pertenece a la clase de universalidad del modelo de Ising tridimensional.

Como continuación natural del presente trabajo se pretende, en primer lugar, realizar simulaciones a número de monopolos simples conservado con el modelo a primeros vecinos, para contrastar los resultados con el diagrama de fases  $T$  vs.  $\rho$  encontrado en [12] teniendo en cuenta las interacciones dipolares. El sistema de partículas no interactuantes podría sufrir una transición de fase geométrica (similar a la que encontramos en este trabajo) hacia un fluido de Néel de monopolos simples. Esto se debe a que, pese que las correlaciones introducidas por los monopolos simples entre sitios vecinos son más débiles que las de los monopolos dobles, podrían ser aún lo suficientemente fuertes como para inducir el orden.

También proponemos agregar un campo magnético en la dirección cristalográfica 111, que actúa sobre el sistema aumentando de manera efectiva el potencial químico de monopolos simples y promoviendo el orden mencionado en el párrafo anterior. Esto predice una transición de primer orden en el diagrama de fases campo vs. temperatura que finaliza en un punto crítico [1].

Finalmente, queremos estudiar el congelamiento de la dinámica de los hielos de spin, controlada a bajas temperaturas por el movimiento de los monopolos.

# Bibliografía

- [1] C. Castelnovo, R. Moessner y S. L. Sondhi. *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.*, **3**, 2012.
- [2] R. B. Laughlin. *Phys. Rev. Lett.*, **50**(18), mayo 1983.
- [3] P. A. M. Dirac. *Proc. R. Soc.*, **133**, 1931.
- [4] M. J. Harris, S. T. Bramwell, D. F. McMorrow, T. Zeiske y K. W. Godfrey. *Phys. Rev. Lett.*, **79**, 1997.
- [5] A. P. Ramirez, A. Hayashi, R. J. Cava y R. Siddharthan. *Nature*, **399**, enero 1999.
- [6] M. J. Harris, S. T. Bramwell, T. Zeiske, D. F. McMorrow, y P. J. C. King. *Magn. Magn. Matter*, **177**, 1998.
- [7] K. Matsuhira, Y. Hinatsu, K. Tenya y T. Sakakibara. *J. Phys. Condens. Matter*, **12**, 2000.
- [8] K. Matsuhira, Y. Hinatsu, K. Tenya, H. Amitsuka y T. Sakakibara. *J. Phys. Soc. Jpn.*, **71**, 2002.
- [9] D. J. P. Morris, D. A. Tennant, S. A. Grigera, B. Klemle, C. Castelnovo, R. Moessner, C. Czternasty, M. Meissner, K. C. Rule, J. U. Hoffmann, K. Kiefer, S. Gerischer, D. Slobinsky y R. S. Perry. *Science*, **326**, 2009.
- [10] H. D. Zhou, J. G. Cheng, A. M. Hallas, C. R. Wiebe, G. Li, L. Balicas, J. S. Zhou, J. B. Goodenough, J. S. Gardner y E. S. Choi. *Phys. Rev. Lett.*, **108**, mayo 2012.
- [11] H. D. Zhou, S. T. Bramwell, J. G. Cheng, C. R. Wiebe, G. Li, L. Balicas, J. A. Bloxom, H. J. Silverstein, J. S. Zhou, J. B. Goodenough y J. S. Gardner. *Nature*, **478**, septiembre 2011.
- [12] R. A. Borzi, D. Slobinsky y S. A. Grigera. *En prensa*, octubre 2012.
- [13] R. G. Melko. Low temperature physics of dipolar spin ice: a Monte Carlo study. Master thesis, University of Waterloo, 2001.

- 
- [14] M. J. P. Gingras. Spin ice. In *Introduction to frustrated magnetism*, chapter 1. Springer, 2009.
- [15] J. D. Bernal y R. H. Fowler. *J. Chem. Phys.*, 1, 1933.
- [16] L. Pauling. *J. Am. Chem. Soc.*, 57, 1935.
- [17] W. F. Giaque y M. F. Ashley. *Phys. Rev.*, 43, 1933.
- [18] W. F. Giaque y J. W. Stout. *J. Am. Chem. Soc.*, 58, 1936.
- [19] S. T. Bramwell, M. J. P. Gingras y P. C. W. Holdsworth. Spin ice. In *Frustrated spin systems*, chapter 7. World Scientific, 2004.
- [20] B. C. den Hertog y M. J. P. Gingras. *Phys. Rev. Lett.*, 84(15), abril 2000.
- [21] C. Castelnovo, R. Moessner y S. L. Sondhi. *Nature*, 451, enero 2008.
- [22] D. I. Khomskii. *Basic aspects of the Quantum Theory of Solids*. Cambridge University Press, 2010.
- [23] K. Huang. *Statistical Mechanics*. John Wiley & sons, 1987.
- [24] U. M. Bettolo Marconi, A. Puglisi, L. Rondoni y A. Vulpiani. *Physics Reports*, 461, octubre 2008.
- [25] Panel on Condensed-Matter Physics, National Research Council. *Condensed-Matter Physics*. National Academies Press, 1986.
- [26] M. E. J. Newman y G. T. Barkema. *Monte Carlo methods in Statistical Physics*. Oxford University Press, 1999.
- [27] H. Gould y J. Tobochnik. *An introduction to computer simulation methods*. Addison-Wesley Publishing Company, 1996.
- [28] D. Frenkel y B. Smit. *Understanding molecular simulation*. Academic Press, 2002.
- [29] D. Slobinsky, C. Castelnovo, R. A. Borzi, A. S. Gibbs, A. P. Mackenzie, R. Moessner y S. A. Grigera. *Phys. Rev. Lett.*, 105, diciembre 2010.
- [30] K. Binder y D. W. Heermann. *Monte Carlo simulations in Statistical Physics*. Springer, 2002.
- [31] E. V. Albano, M. A. Bab, G. Baglietto, R. A. Borzi, T. S. Grigera, E. S. Loscar, D. E. Rodríguez, M. L. Rubio Puzzo y G. P. Saracco. *Rep. Prog. Phys.*, 74, 2011.
- [32] J. R. Hook y H. E. Hall. *Solid State Physics*. Manchester Series, 1995.
- [33] R. Dickman y G. Stell. In *Simulation and theory of electrostatic interactions in solution*. AIP conference proceedings, 1999.