

Propiedades dinámicas y termodinámicas de modelos magnéticos con interacciones competitivas

Marianela Carubelli

Presentado ante la Facultad de Matemática, Astronomía y Física como parte de
los requerimientos para la obtención del grado de
Doctora en Física

Director: Francisco Tamarit

Universidad Nacional de Córdoba

Marzo de 2009

A mis padres...

A Lucas...

'Los científicos estudian la naturaleza no porque sea útil, sino porque encuentran placer en ello, y encuentran placer porque es hermosa.'

Henri Poincaré

Resumen

En la presente Tesis se estudian diferentes aspectos de la dinámica y la termodinámica de dos sistemas frustrados sin desorden inspirados en materia condensada: un modelo tridimensional en red para vidrio estructural y un modelo bidimensional de película magnética ultra-delgada. El tratamiento de los dos temas se hace a través de un abordaje teórico, utilizando diferentes técnicas de simulación computacional. En la primera parte de la tesis estudiamos un modelo magnético definido en la red cúbica tridimensional. En él, los momentos magnéticos están sometidos a fuerzas competitivas: una interacción ferromagnética entre espines de sitios más próximos y una interacción antiferromagnética entre espines de sitios segundos vecinos. Este modelo ha sido muy estudiado en el contexto de fenómenos críticos, pero en 1991 fue revisitado en su versión Ising por Shore y colaboradores quienes imaginaron que podría tratarse de un modelo simple capaz de capturar los ingredientes y la fenomenología propia de vidrios estructurales. En particular, en esos trabajos mostraron que a muy bajas temperaturas el sistema se ordena en una fase ferromagnética con dinámica lenta, caracterizada por el desarrollo de barreras de energía libre que dependen linealmente del tamaño de los dominios ordenados. Esto lleva entonces a una dinámica en la cual el tamaño lineal de los dominios crece logarítmicamente en el tiempo. Curiosos por este resultado, nosotros decidimos abundar más en las propiedades del modelo. En particular presentaremos por primera vez un detallado estudio de los estados fundamentales y del diagrama de fases del modelo, con una completa caracterización de las transiciones termodinámicas observadas. También mostraremos el estudio de la dinámica de envejecimiento y la llamada Relación de Fluctuación-Disipación del modelo, las cuales en algún sentido desmienten la hipótesis original de que el modelo presenta una dinámica propia de vidrios estructurales. Luego repetimos este mismo estudio, tanto termodinámico como dinámico, para el mismo sistema pero ahora modelado con espines Heisenberg clásicos. Si bien el diagrama de fases termodinámico es muy similar al observado en la versión Ising del modelo, la dinámica presenta diferencias sustanciales, ahora sí con características propias de sistemas vítreos complejos. En la segunda parte de la tesis estudiamos las propiedades termodinámicas de un modelo bidimensional con variables de Heisenberg usado para modelar películas magnéticas metálicas de unas pocas mono-capas atómicas (típicamente entre 2 y 5) crecidas en sustratos no magnéticos. En él se llevan en cuenta los principales

ingredientes microscópicos involucrados en estos sistemas, a saber, interacciones de intercambio a primeros vecinos, interacciones dipolares y un término de anisotropía cristalina. Como sucede en la primera parte de la tesis, la competencia entre las diferentes interacciones da lugar a un diagrama de fases muy rico, con presencia de variados tipos de orden magnético. Caracterizamos especialmente cada una de las transiciones encontradas, con especial énfasis en la llamada Transición de Reorientación Magnética, y podemos reproducir casi completamente la fenomenología observada en sistemas reales.

Palabras clave:

Simulaciones numéricas.

Modelos de espines clásicos.

Propiedades dinámicas.

Propiedades magnéticas de monocapas y películas delgadas.

PACS: 75.40Mg, 75.10Hk, 75.40Gb, 75.70Ak.

Abstract

The present Thesis concerns different dynamical and thermodynamical aspects of two different frustrated magnetic systems without imposed disorder, namely, a tridimensional lattice model for structural glasses and a bidimensional model defined to study the physics of ultra-thin magnetic films. These topics are studied from a theoretical point of view, using mainly numerical simulations.

In the first part of this Thesis we analyze a magnetic model defined on the tridimensional cubic lattice. Each magnetic moment is submitted to two different and competitive interactions: a ferromagnetic exchange interaction between nearest-neighbor moments plus an antiferromagnetic interaction between next-nearest-neighbor moments. This simple model had been previously studied in the context of critical phenomena, but in 1991 was revisited in its Ising version by Shore *et al.* who expected to be able to reproduce the physics of structural glasses. In particular, they found that at low enough temperatures the system orders in a ferromagnetic phase with slow relaxation dynamics, characterized by a linear dependence of the free energy barriers on the size of the ordered domains. This behavior yields to the appearance of a logarithmic domain growth phenomenon. Intrigued by this result, we decided to further explore the properties of the model. In particular, we present a very detailed study of the ground states and the phase diagram of the model, with a complete characterization of the transition lines observed. We also analyze the aging dynamics and the so called Fluctuation-Dissipation Relation of the model. This study refutes the original assumption on the glassy character of low temperature ferromagnetic phase of the Ising version of the model. Next, we repeat the same study, of both the static and dynamical properties of the model, but now replacing the Ising variables by classical Heisenberg spins. Though the phase diagram is similar to the former, the aging dynamics and the Fluctuation-Dissipation Relation clearly indicates the existence of a true glassy phase at very low temperature which captures many of the physical properties observed in structural glasses.

In the second part of the Thesis we study the thermodynamical properties of a magnetic model with classical Heisenberg spin variables introduced to mimic the physics of ultra-thin magnetic films grown on non-magnetic substrates and with only a few monolayers thickness range, typically between 2 and 5 ML. This model takes into account the main microscopical ingredients, namely, nearest-neighbor exchange interactions, long-range dipole-dipole inte-

ractions and magneto-cristalline anisotropy. As we show in the first part of the Thesis, here again the competition between all these interactions gives place to an extremely rich phase diagram with many different kinds of magnetic order. We characterize all the phase transitions observed, and particularly focus on the so called Reorientation Transition. It is here worth to stress that this simple model is able to reproduce almost all the physical properties observed in real ultra-thin magnetic films.

Keywords:

Numerical simulation studies.

Classical spin models.

Dynamic Properties.

Magnetic properties of monolayers and thin films.

PACS: 75.40Mg, 75.10Hk, 75.40Gb, 75.70Ak.

Gracias...

Llegar a momentos como éste es el resultado de un camino recorrido por años, y son muchos los que de alguna u otra forma contribuyeron con su granito de arena para alcanzar esta meta. Por eso, en estos cinco años no sólo adquirí conocimientos, tuve grandes satisfacciones, viví muchas anécdotas... sino que también acumulé una gran cantidad de deudas de agradecimientos!

En primer lugar quiero agradecer a Pancho, por su confianza, ya que es gracias a esa confianza que me aventuré a hacer este doctorado. También por su esfuerzo, su dedicación, y en especial por su enorme generosidad, que me permitió aprender no sólo de física, sino también de solidaridad, de trabajo en equipo, de compromiso, de compañerismo... Fueron muchos los entusiasmos compartidos, los desánimos también, las discusiones, las horas frente al pizarrón o la computadora, los mails trabajando a distancia, las satisfacciones... *por compartir con paciencia y con gusto todo eso conmigo, por la amistad... gracias Pancho.*

También quiero agradecer a Sergio, con quién trabajé con entusiasmo en el tema de películas delgadas, por su paciencia para explicarme y analizar conmigo los resultados, por ayudarme a trabajar en forma más ordenada.

Y al mirar estos cinco años de trabajo en el Grupo de Teoría de la Materia Condensada, no puedo dejar de pensar con alegría en un grupo de personas, que fueron los responsables de que trabajara a gusto, muy a gusto, en este grupo. Y estoy pensando en Orlando, Pablo, Omar, Sergio, Vero (la más nuevita) y Pancho, con quienes compartí charlas de los más variados tópicos (en los almuerzos y en especial en las divertidas cervezas de los viernes por la tarde), bromas, asados, bailes... Gracias también por dedicarme siempre un tiempito para responder cualquier pregunta o duda, en especial a Orlando a quién puedo preguntarle mil cosas al día, y él siempre está. *Por sentirme parte... gracias a todos ustedes...*

También están los más jóvenes del GTMC, aquellos con los que compartí viajes, materias, preguntas, pizarrones, charlas y debates... gracias en especial a Eze, que siempre estuvo, comprometido, ayudando. A Santiago, con quién trabajé en los últimos años, que siempre tiene esa buena disposición para lo que necesites, esa tranquilidad que contagia... También a Juan, con el que uno tiene casi asegurado una cuota de diversión.. Y al resto de los chicos, Ale, Fede, Any y Caro, con los que compartí tantas cosas de la vida de becario.

He pasado 5 años trabajando en la oficina 324... primero fuimos nueve, después diez,

algunos se fueron primero, otros más tarde, otros vinieron... Gracias a todos ellos: Ele, Jose, Ana, Santi P., Ale, Santi G., Ernesto, Gonza, Axel, por los mates compartidos, las charlas, los debates, los encuentros y desencuentros, el compañerismo y el aguante... Especialmente a Ana, Ele y Jose, con las que formamos el cluster de las mujeres de la 324... y a los varones por su paciencia. Gracias 324, por el día a día...

Quiero agradecer a las instituciones que hicieron posible que realizara esta tesis: a la Universidad Nacional de Córdoba, a Fa.M.A.F., por brindarme un excelente lugar de trabajo, y a CONICET por el pan de cada día. *Gracias, a la Universidad Pública y Gratuita de la Argentina.*

Pero fuera de este ámbito académico, hay pilares importantes en mi vida, que también contribuyen (muchísimo!) al logro de mis metas.

Están mis amigas, Laura, Paula, Mariela, Leti y Andrea, mis cables a tierra, mis confidentes, mi diversión. Gracias por estar siempre, por nuestros vuelos, filosofadas y preguntas compartidas...

Desde hace ya 10 años, disfruto de la amistad de algunos personajes que conocí en la facu, y ahora son amigos de fierro... Egle, Horacio, Fernando, Ariel, Vale, Lila, Pablo, Claudio y Laura. Gracias por compartir conmigo años de esfuerzos, por estar en las buenas, y saber estar en las malas, por los asados, pizzas, cervezas y fernets, por las charlas hasta la madrugada, por divertirnos tanto...

Y el más sentido de mis gracias para mi familia, el pilar más importante... a mis tíos, primos y sobrinos, los de Comechingones, los de Córdoba y los de San Luis; a mis suegros y mis cuñados. Especialmente gracias a mi Madrina, por mostrarme, incluso sin saberlo, ese otro costado de las cosas.

A mis padres, Mercedes y Oscar, no me alcanza con decirles gracias. Por su confianza, por estar absolutamente siempre. Por ayudarme, en todo momento y en toda circunstancia. Por ser un ejemplo de solidaridad, generosidad, honestidad y compromiso. *Gracias Brujos, por enseñarme a andar...*

Y, finalmente, gracias Lucas, mi compañero, mi soporte. Gracias por todo, todo. Por la practicidad, la paciencia, el apoyo para que pueda seguir adelante, por el aliento y la confianza, por la ayuda de mil formas diferentes. Por estar siempre conmigo. *Gracias Lucas, por trazar conmigo el camino, y caminar a mi lado...*

Índice general

Resumen	I
Abstract	III
Gracias...	V
Índice general	VII
Índice de figuras	XI
1. Introducción	3
I Termodinámica y dinámica de sistemas magnéticos con interacciones competitivas de corto alcance	9
2. Marco teórico	11
2.1. Crecimiento de dominios	12
2.2. Dinámica fuera de equilibrio en sistemas vítreos	15
2.2.1. Envejecimiento y dependencia con la historia de la muestra	17
2.2.2. Generalización del Teorema de Fluctuación-Disipación	22
2.3. Discusión	26

3. El modelo Shore-Sethna	27
3.1. El modelo	28
3.2. Antecedentes	29
3.3. Motivación	38
4. La Termodinámica del Modelo Shore-Sethna	43
4.1. Estados Fundamentales	44
4.2. Transiciones de fase	45
4.2.1. Transición orden-desorden	46
4.2.2. Transición Láminas-Ferromagneto	53
4.3. Estados meta-estables	55
4.4. Diagrama de fases	57
4.5. Discusión	59
5. Dinámica de Relajación en el Modelo Shore-Sethna	61
5.1. Dinámica de Envejecimiento	62
5.2. Relación de Fluctuación-Disipación	66
5.3. Discusión	69
6. El modelo Shore-Sethna en su versión Heisenberg	71
6.1. El modelo	72
6.2. Diagrama de fases	73
6.3. Dinámica de Envejecimiento	78
6.4. Relación de Fluctuación-Disipación	82
6.5. Discusión	85

II	Modelado de películas magnéticas ultra-delgadas	87
7.	Películas magnéticas ultra delgadas	89
7.1.	Resultados Experimentales	91
7.2.	La física microscópica de las películas ultra-delgadas	96
7.2.1.	Interacciones de intercambio	97
7.2.2.	Las interacciones dipolares	98
7.2.3.	Anisotropía mangetocristalina	99
7.2.4.	Un modelo estadístico para películas magnéticas ultra-delgadas . . .	100
7.3.	Resultados Teóricos	101
7.3.1.	El límite de simetría uniaxial	101
7.3.2.	El modelo de Heisenberg	104
8.	Diagrama de fases y transición de reorientación	107
8.1.	El diagrama de fases	110
8.2.	La transición de reorientación de espín	111
8.3.	La transición fajas-tetragonal	115
8.4.	Transición Ferromagnético planar - Paramagnético	124
8.5.	Equivalencia de $1/\eta$ con el espesor de la muestra	128
8.6.	Discusión	131
III	Conclusiones	133
9.	Conclusiones	135
9.1.	Termodinámica y dinámica de sistemas magnéticos con interacciones competitivas de corto alcance	135

9.2. Modelado de películas magnéticas ultra-delgadas	137
9.3. Conclusiones generales	139
IV Apéndices	141
A. El método de Monte Carlo	143
A.1. Métodos de Monte Carlo	144
A.1.1. Dinámica de Metrópolis	145
A.1.2. Dinámica de Baño Térmico	146
B. Sumas de Ewald para interacciones magnéticas dipolares	149
B.1. Contribución de corto alcance	151
B.2. Contribución de largo alcance	152
B.2.1. Caso bidimensional	153
B.2.2. Multicapas	157
B.2.3. Red tridimensional	158
B.3. Detalles de implementación	160
B.4. Resumen de fórmulas	162
Referencias	165

Índice de figuras

1.1. Dominios magnéticos en una película de Fe(3,5ML)/Ni(10,6ML)/Cu(001) luego de aplicar un pulso magnético con dirección prácticamente paralela al plano de la muestra. La película se mantiene en una fase de burbujas a medida que la temperatura aumenta hasta $T = 360K$, temperatura en la cual las burbujas se vuelven alargadas, indicando la transición a una fase de fajas. A $T = 370K$ las fajas están ya bien definidas, y si entonces se comienza a bajar la temperatura, la película se mantiene en esta fase de fajas hasta temperatura ambiente, indicando que la fase de burbujas es en realidad meta-estable en ausencia de campo magnético [1].	5
2.1. Magnetización termo-remanente M_{TRM} (normalizada por el valor de la magnetización <i>field cooled</i> M_{fc}) vs. t para una muestra de $Ag : Mn_{2,6\%}$ con $T = 9K = 0,87T_g$ y diferentes valores de t_w [16]	19
2.2. (a) Función de auto-correlación $C(t, t_w)$ a dos tiempos para diferentes tiempos t_w . (b) Transformación de escala de la función de auto-correlación para el caso de envejecimiento simple.	21
2.3. Curvas de susceptibilidad vs. correlación para los tres grupos de sistemas con dinámica vítrea.	25

3.1. Plaqueta de una red cuadrada ilustrando esquemáticamente la frustración del modelo.	29
3.2. Esquema del diagrama de fases a $T = 0$ para el modelo en la red cuadrada.	30
3.3. Tiempo medio necesario τ (medido en Paso de Monte Carlo) para hacer desaparecer una arista de un dominio cúbico de tamaño L , para $\delta = 100$. Las curvas continuas corresponden a ajustes realizados con la expresión (3.5) [11].	34
3.4. Tamaño medio de dominio $L(t)$ en función de t (medido en Paso de Monte Carlo), en escala log-log, para un sistema tridimensional. En cada conjunto de datos se indica el tamaño del sistema. Salvo para $T = 8J_2$ (donde $\delta = 50$), se consideró siempre $\delta = 6$	37
3.5. Sitios octaédricos de la red de espineles, mostrando las constante de interacción entre primeros, segundos y terceros vecinos, de los iones de Cromo.	40
4.1. Cinco posibles estados fundamentales del sistema.	44
4.2. Energía por espín vs. δ para las cinco configuraciones que se muestran en 4.1.	46
4.3. Calor específico y magnetización en función de la temperatura para $\delta = 6$ y diferentes tamaños del sistema.	48
4.4. Calor específico y parámetro de orden O en función de la temperatura para $\delta = 2$ y diferentes tamaños del sistema.	48
4.5. Cumulante de cuarto orden de la energía en función de la temperatura para $\delta = 2$ y $\delta = 6$, y diferentes tamaños del sistema.	51
4.6. Cumulante de cuarto orden de la magnetización en función de la temperatura para $\delta = 6$ y diferentes tamaños del sistema.	51
4.7. Histograma de la energía por espín para $\delta = 2$ y dos temperaturas ($T = 4,800$ y $T = 4,806$), en un sistema de tamaño $L = 20$. Los histogramas se calcularon con un total de 5×10^6 valores de energía.	52

4.8. Histograma de la energía por espín para $\delta = 2$ y dos temperaturas ($T = 4,800$ y $T = 4,801$), en un sistema de tamaño $L = 40$. Los histogramas se calcularon con un total de 5×10^6 valores de energía.	53
4.9. Energía en función del tiempo, medido en PMC, para un sistema de tamaño $L = 40$ y dos temperaturas, $T = 4,800$ y $T = 4,801$	54
4.10. Energía Libre f de las fases de Láminas L1 (círculos) y ferromagnética F (triángulos) vs. δ para $T = 2$ en un sistema de tamaño $L = 40$	55
4.11. Magnetización <i>staggered</i> vs. temperatura para $\delta = 3$ y $\delta = 6$, y tres diferentes condiciones iniciales: ferromagnética (F), láminas de ancho $h = 1$ (L1) y láminas de ancho $h = 2$ (L2).	56
4.12. Diagrama de fases δ vs. T para un sistema de tamaño $N = 40^3$. Las fases termodinámicas son: láminas de ancho $h = 1$ (L1), ferromagnética (F) y paramagnética (P). Los círculos rojos indican la línea de transición de segundo orden entre la fase ferromagnética y paramagnética, obtenida de los picos del calor específico. Los cuadrados grises y azules indican las líneas de transición de primer orden obtenidas mediante la energía libre para la transición entre las dos fases ordenadas, y mediante el calor específico e histogramas de energía para la transición láminas-paramagneto. Se muestran además las líneas de meta-estabilidad de diferentes configuraciones, obtenidas mediante la magnetización <i>staggered</i>	58
5.1. Función de auto-correlación a dos tiempos $C(t, t_w)$ en función del tiempo para $\delta = 6$, diferentes tiempos de espera $t_w = 3^k$ ($k = 4, \dots, 9$) y dos temperaturas dentro de la fase ferromagnética: $T = 12$ y $L = 200$ (arriba); $T = 3$ y $L = 120$ (abajo).	63
5.2. Función de auto-correlación a dos tiempos $C(t, t_w)$ en función de t/t_w , para $\delta = 6$, diferentes tiempos de espera $t_w = 3^k$ ($k = 4, \dots, 9$) y dos temperaturas dentro de la fase ferromagnética: $T = 7$ y $L = 180$ (arriba); $T = 3$ y $L = 120$ (abajo).	64

5.3. Función de auto-correlación a dos tiempos $C(t, t_w)$ reescalada con la forma $\log(t + t_w)/\log(t_w)$ para $\delta = 6, T = 3$ y diferentes tiempos de espera $t_w = 3^k$ ($k = 4, \dots, 9$).	65
5.4. Función de auto-correlación a dos tiempos $C(t, t_w)$ para $\delta = 2, T = 2$ y diferentes tiempos de espera $t_w = 3^k$ ($k = 4, \dots, 8$) en función del tiempo t (arriba) y reescalada con la forma t/t_w (abajo).	67
5.5. Susceptibilidad vs. auto-correlación para un sistema de tamaño $L = 50$, y diferentes parámetros δ y T , que se muestran en la figura. Los tiempos de espera utilizados son $t_w = 128$ y $t_w = 256$. La línea negra corresponde al TFD de equilibrio.	69
6.1. Calor específico y magnetización en función de la temperatura para un sistema de $N = 30^3$ espines y para $\delta = 2, 5$ y 6	74
6.2. Magnetización total y sus tres componentes en función de la temperatura para $\delta = 6$, en un sistema de $N = 30^3$ espines.	75
6.3. O vs. temperatura para $\delta = 2$ para $L = 10, 20$ y 30	76
6.4. Distribución de probabilidad del ángulo Θ entre vecinos próximos en la dirección perpendicular a las láminas (rojo) y en las otras dos direcciones (azul), para $L = 30$ y $\delta = 2$	77
6.5. Diagrama de fases T vs. δ para un sistema de $L = 30$. Las fases son: láminas de ancho $h = 1$ (L1), ferromagnética (F) y paramagnética (P).	77
6.6. Función de auto-correlación a dos tiempos $C(t, t_w)$ vs. t para $\delta = 3, T = 0,5$ (izquierda) y $\delta = 6, T = 1$ (derecha), y diferentes tiempos de espera $t_w = 3^k$ ($k = 4, \dots, 9$), en un sistema de tamaño $L = 100$	79
6.7. Función de auto-correlación a dos tiempos $C(t, t_w)$ para $\delta = 3, T = 0,5$ (izquierda) y $\delta = 6, T = 1$ (derecha), $L = 100$ y diferentes tiempos de espera $t_w = 3^k$ ($k = 4, \dots, 9$) en función de la forma de escala simple t/t_w	81

6.8. Función de auto-correlación a dos tiempos $C(t, t_w)$ vs. $u(t, t_w)$ para $\delta = 3$ $T = 0,5$ y $\delta = 6$ $T = 1$, $L = 100$ y diferentes tiempos de espera $t_w = 3^k$ ($k = 4, \dots, 9$).	83
6.9. Susceptibilidad vs. función de auto-correlación para un sistema de tamaño $L = 100$, en la fase de láminas: $\delta = 1$, $T = 0,5$ y $\delta = 3$, $T = 0,5$. Los tiempos de espera son $t_w = 729$ y $t_w = 2187$. La línea negra corresponde a la Relación de Fluctuación-Disipación en equilibrio.	84
6.10. Susceptibilidad vs. función de auto-correlación para un sistema de tamaño $L = 100$, en la fase ferromagnética: $\delta = 6$ y dos temperaturas, $T = 1$ y $T = 2$. Los tiempos de espera utilizados son $t_w = 729$ y $t_w = 2187$. La línea negra corresponde a la Relación de Fluctuación-Disipación en equilibrio.	85
7.1. Polarización de espín de los electrones secundarios en función de la tempe- ratura para una película de Fe/Cu(100) con dos espesores diferentes: 2,5 ML (arriba) y 3,5 ML (abajo). (ML: Mono Layers) [57].	93
7.2. Temperatura de transición entre las fases de magnetización perpendicular y de magnetización planar en función del ancho de las películas [57].	94
7.3. Imágenes obtenidas con PEEM de películas magnéticas ($20\mu m \times 20\mu m$) de Fe(2,7 ML)/Ni(5,4 ML)/Cu(001) a diferentes temperaturas. El sistema sufre una transición de fajas a paramagneto perpendicular a $T = 380K$, antes de que ocurra la transición de reorientación.	96
7.4. Diagrama de fases a temperatura nula en el plano (η, δ) . h indica el ancho de las fajas de espines con dirección perpendicular a la muestra. El gráfico ha sido adaptado de la publicación [78].	105
7.5. Diagrama de fases en el plano (η, T) para $\delta = 3$, obtenido por Maclsaac y colaboradores [78].	106

- 8.1. Diagrama de fases en el plano (T, η) para $\delta = 3$. Los diferentes símbolos corresponden a diferentes métodos de cálculo de las líneas de transición: triángulo hacia abajo (verde): cálculos de estado fundamental [78]; círculo (rojo): cálculos del histograma de energía; triángulo hacia arriba (blanco): cálculo de equilibrio y no equilibrio de los parámetros de orden; rombo (amarillo): simulación del calor específico. Se muestran además configuraciones típicas de cada una de las fases encontradas. 112
- 8.2. Parámetro de orden O_{hv} , magnetización planar $M_{||}$ y magnetización perpendicular M_z , todas en función de la temperatura T para $\delta = 3$, $\eta = 6,5$ y $L = 40$. El sistema fue inicializado a una temperatura finita, termalizado a $T = 6$ y luego enfriado termalizando en cada nueva temperatura. 113
- 8.3. Parámetro de orden O_{hv} y magnetización planar $M_{||}$ como función del parámetro η para $\delta = 3$ y $T = 0,6$. El sistema fue inicializado en una configuración de fajas de ancho 4, termalizado a $\eta = 7,5$ y luego η disminuyó y creció en un ciclo cerrado a un tasa lineal $r = 10^{-5}$ 114
- 8.4. Histograma de la energía por espín para $\delta = 3$, $\eta = 6,5$ y $T = 0,790$ (arriba) y $T = 0,791$ (abajo). Los histogramas se calcularon utilizando 30×10^6 valores de la energía medidos a lo largo de una única simulación Monte Carlo. . . . 115
- 8.5. Parámetro de orden O_{hv} , M_z y $M_{||}$ en función de la temperatura T para $\eta = 9,0$. 116
- 8.6. Histograma del parámetro de orden O_{hv} por espín para $\eta = 7,5$ y tres temperaturas diferentes. Los histogramas fueron calculados con 30×10^6 valores de la energía a lo largo de cada corrida. 117
- 8.7. Fotos instantáneas a diferentes temperaturas de la componente S_z de los espines de un sistema de tamaño $L = 40$ para $\eta = 7,5$. Negro corresponde a $S_z = 1$ y blanco a $S_z = -1$. En la figura se indican las diferentes temperaturas. 118
- 8.8. Sección del diagrama de fases mostrado en la figura 8.1 donde puede observarse el *gap* magnético. Si se aumenta la temperatura en el sentido que indica la flecha, se pueden observar las cuatro fases: Fajas, Tetragonal, Ferrromagneto Planar y Paramagneto. 119

8.9. Parámetro de orden O_{hw} y magnetización paralela al plano definido por la película $M_{ }$ en función de la temperatura para $\delta = 3$ $\eta = 6,9$. El sistema fue primero termalizado a $T = 1,4$, enfriado con una tasa lineal $r = 10^{-7}$ y luego calentado otra vez con la misma tasa. Las barras de error son del mismo orden del tamaño de los símbolos. El gráfico interno muestra una ampliación de la curva de calentamiento.	120
8.10.(a): Promedio temporal de la magnetización local perpendicular al plano definido por la película $\overline{m_{\tau}}(\vec{r})$ para $\eta = 6,9$, $L = 40$ y diferentes tiempo de promediación τ (todos los tiempos son medidos en PMC, y $\tau = 1$ corresponde a una foto instantánea). Antes de comenzar a calcular el promedio temporal el sistema fue termalizado durante $t = 10^5$ PMC a cada temperatura ($T = 0,9$ en la fase de fajas, y $T = 1,1$ en la fase tetragonal). (b): Foto instantánea de la componente planar de un sistema de tamaño $L = 20$ para $\eta = 6,9$ y $T = 1,1$, en la fase tetragonal.	123
8.11. Calor específico para $\delta = 3$ y diferentes valores de η	124
8.12. Valor medio de la magnetización absoluta P para diferentes temperaturas en función de η al atravesar la línea ferromagneto planar-paramagnético ($L = 24$).	125
8.13. Fotos instantáneas de la componente planar de los espines para un sistema de tamaño $L = 20$ para $\eta = 6,0$ y dos temperaturas: $T = 1$ y $T = 2,8$, en las fases ferromagnética planar y paramagnética, respectivamente.	126
8.14. $M_{ }$ en función de η para una temperatura fija $T = 1,3$	127
8.15. Diagrama de fases magnético de Fe/Ni(5,4 ML)/Cu(001) obtenido por Won y colaboradores [82].	130
8.16. Diagrama de fases T vs. $1/\eta$	130

- ¿Acaso queréis aprender física?

- ¿Y qué cuenta esa física?

- La física es la que explica el principio de las cosas naturales y las propiedades de los cuerpos; discurre sobre la naturaleza de los elementos, de los metales, de los minerales, de las piedras, las plantas y los animales, y nos enseña la causa de todos los meteoros, el arco iris, los fuegos fatuos, los cometas, los relámpagos, el trueno, el rayo, la lluvia, la nieve, el granizo, los vientos y los torbellinos.

- Hay demasiado alboroto en todo eso, demasiado lío.

Molière, 'El burgués gentilhomme'.

Introducción

En el contexto del estudio de sólidos cristalinos, los modelos en red han sido y siguen siendo de fundamental importancia para la Física Estadística y la Teoría de la Materia Condensada. Si bien es cierto que generalmente suponen grandes simplificaciones en la descripción microscópica de los sistemas reales, también es cierto que proveen a la física teórica y experimental de un marco predictivo poderoso, allí donde los modelos muy detallados resultan difíciles, y a veces imposibles de resolver. Sin duda el puente que la Mecánica Estadística construye entre la física microscópica de átomos y moléculas y la termodinámica macroscópica de sólidos reales es uno de los logros más fascinantes de la física del siglo XX.

Si bien una importante porción de la materia que nos rodea se encuentra en estado de equilibrio termodinámico, los fenómenos más curiosos de la naturaleza suelen ocurrir fuera del equilibrio, donde lamentablemente las prescripciones de la Física Estadística de equilibrio no se pueden utilizar. Entonces, una pregunta importante que debemos hacernos es la siguiente: ¿cuáles son los ingredientes microscópicos que diferencian a los sistemas que relajan fácilmente al equilibrio termodinámico de aquellos otros que parecen preferir mantenerse, al menos por largos períodos de tiempo, en estados de no equilibrio, sean o no estacionarios?

Un principio fundamental y generalmente implícito de la Mecánica Estadística nos dice que a escala macroscópica, el todo es mucho más que la simple suma de sus partes. Y es aquí donde las interacciones entre los constituyentes de un sistema se tornan fundamentales ya que, en definitiva, son ellas las responsables de su comportamiento global, ya sea en equilibrio termodinámico o en condiciones mucho más generales. Se sabe hoy que la existencia de interacciones competitivas produce efectos muy serios en el paisaje energético de un sólido cristalino, generando mecanismos muy lentos de relajación al equilibrio. Esta complejización del paisaje energético y sus consecuentes derivaciones dinámicas tienen su origen en el concepto de *frustración microscópica*. Decimos que un sistema es microscópicamente frustrado cuando no es posible encontrar una configuración del mismo tal que todas las interacciones de pares de constituyentes, cualesquiera sean éstos, se minimicen simultáneamente.

A partir de la década de los '70 los físicos estadísticos pusieron especial atención en el estudio de sistemas en red con interacciones aleatorias, usualmente llamados *sistemas desordenados*. En particular, el interés por modelar los llamados *vidrios de espín* fue una gran fuente de inspiración teórica que generó poderosos métodos estadísticos, tanto analíticos como numéricos. Es fácil entender que la presencia de aleatoriedad en las interacciones puede dar lugar, eventualmente, a interacciones competitivas. Esta competencia conlleva un aumento en el número de estados fundamentales, la proliferación eventual de estados metaestables y en consecuencia la complejización del paisaje energético del sistema. Así, a lo largo de los años, se ha consolidado la idea de que la fuente de complejidad, tanto dinámica como termodinámica, es la presencia de elementos aleatorios a nivel microscópico.

Que el desorden puede inducir frustración, y ésta complejidad, es algo bien establecido hoy. Sin embargo, en este trabajo nos interesa ocuparnos de una categoría diferente de sistemas físicos: aquellos que presentan frustración a nivel de las interacciones entre sus componentes, pero cuyo origen no viene dado por desorden microscópico, sino por la existencia de competencia en la naturaleza de la interacción de pares en función de la distancia entre átomos o moléculas.

De las muchas consecuencias que la frustración trae al comportamiento macroscópico, nosotros estamos interesados en dos aspectos particulares. Por un lado, en las propiedades

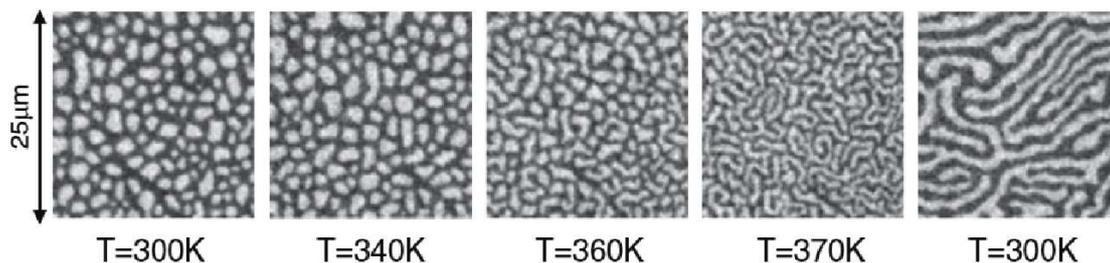


Figura 1.1: Dominios magnéticos en una película de Fe(3,5ML)/Ni(10,6ML)/Cu(001) luego de aplicar un pulso magnético con dirección prácticamente paralela al plano de la muestra. La película se mantiene en una fase de burbujas a medida que la temperatura aumenta hasta $T = 360K$, temperatura en la cual las burbujas se vuelven alargadas, indicando la transición a una fase de fajas. A $T = 370K$ las fajas están ya bien definidas, y si entonces se comienza a bajar la temperatura, la película se mantiene en esta fase de fajas hasta temperatura ambiente, indicando que la fase de burbujas es en realidad meta-estable en ausencia de campo magnético [1].

de equilibrio y meta-equilibrio. Por el otro, en la dinámica de relajación. Veremos a lo largo de los capítulos de esta tesis que ambos aspectos están íntimamente relacionados entre sí.

Con respecto al equilibrio termodinámico, sabemos que la existencia de frustración produce un aumento del número de estados fundamentales, número que eventualmente puede, bajo ciertas condiciones, diverger en el límite termodinámico. En particular, estos estados presentan patrones espaciales muy diferentes a los comúnmente observados en sistemas con interacciones homogéneas. La proliferación de estados fundamentales con diferentes simetrías espaciales da lugar entonces a diagramas de fase muy ricos si los comparamos con aquellos correspondientes a sistemas no frustrados. En la figura 1.1 pueden observarse, a modo de ejemplo, algunas de las complejas fases de dominios magnéticos observadas experimentalmente por J. Choi y colaboradores [1] en una película ultra-delgada de Fe(3,5ML)/Ni(10,6ML)/Cu(001) a diferentes temperaturas. En este caso la competencia entre las interacciones ferromagnéticas de intercambio entre átomos próximos compite con las interacciones dipolo-dipolo, mucho más complejas y de largo alcance. Y esta competencia es la responsable de la aparición de las fases de fajas y de burbujas mostradas en la figura.

Desde el punto de vista dinámico, los sistemas frustrados suelen quedar atrapados en

estados casi-estacionarios, cuyo tiempo de vida medio puede eventualmente diverger. Por eso, sin duda uno de los desafíos más importantes de la física estadística moderna es el desarrollo de un marco teórico general de los procesos de no-equilibrio. Lamentablemente no existe hasta hoy un enunciado general equivalente a la *Teoría de Boltzmann-Gibbs* para sistemas en equilibrio termodinámico, que sienta las bases de una teoría única de sistemas en estados casi-estacionarios de no-equilibrio. Al no contar con este marco general, los físicos se dedicaron al estudio específico de la dinámica de los más variados sistemas, con la esperanza de entender, al menos fenomenológicamente, el proceso de relajación al equilibrio. Así, gracias a estos estudios tanto teóricos como experimentales, fue posible observar que los sistemas reales (en particular los sólidos) se pueden clasificar de acuerdo a la forma en que relajan en unas pocas categorías o *clases de universalidad*, como de hecho sucede en la física de los fenómenos críticos.

Una de las múltiples clases de universalidad dinámica que surge de los estudios experimentales y teóricos es la de los *sistemas vítreos*, cuya definición es aún algo difusa. Éstos están caracterizados por un drástico frenado del proceso de relajación al equilibrio cuando ciertos parámetros del sistema son alterados. Dado que el tiempo característico de relajación aumenta en varios ordenes de magnitud en la fase vítrea, es común que éste exceda ampliamente los tiempos usuales de medición en un laboratorio (del orden de horas o incluso días). En este sentido, se dice que los sistemas vítreos son de naturaleza dinámica, ya que es muy difícil medirlos en condiciones de equilibrio termodinámico. Frente a una familia de sistemas que difícilmente se observan en equilibrio, la existencia de herramientas teóricas capaces de permitirnos hacer predicciones se torna especialmente indispensable. Es por esta razón quizá que el estudio de las propiedades dinámicas de sistemas con comportamientos vítreos se ha tornado uno de los campos más activos y a la vez más polémicos de la física estadística actual.

Objetivos generales y organización de la tesis

El objetivo de esta tesis es realizar un aporte teórico al estudio de diferentes aspectos termodinámicos y dinámicos de los sistemas con frustración y sin orden. Para ello

abordamos el estudio, mediante simulaciones numéricas de Monte Carlo, de dos modelos magnéticos extraídos de dos contextos diferentes: el primero del modelado estadístico de vidrios estructurales en redes, y el segundo del estudio de películas magnéticas ultra-delgadas.

En la *Parte I* abordaremos el estudio de las propiedades dinámicas y termodinámicas de dos modelos de sistemas magnéticos tridimensionales con interacciones competitivas de corto alcance. Comenzaremos con un marco teórico en el capítulo 2, donde analizaremos en forma introductoria la dinámica de crecimiento de dominios y la dinámica de relajación en sistemas vítreos. En el capítulo 3 presentaremos el modelo, sus antecedentes, y la motivación para su estudio. En los capítulos 4 y 5 mostraremos los resultados originales del estudio de sus propiedades termodinámicas [2] y dinámicas [3], respectivamente. El capítulo 6 está dedicado al estudio de una generalización del modelo tratado en los tres capítulos previos, y mostraremos los resultados obtenidos sobre su diagrama de fases y sus propiedades dinámicas.

La *Parte II* de esta tesis está dedicada al estudio de las propiedades termodinámicas de un modelo de películas magnéticas ultra-delgadas, como así también a algunos aspectos de su comportamiento magnético en ausencia de campo externo. En el capítulo 7 se dará una introducción a la física de estos sistemas, se presentará el modelo, los antecedentes teóricos y motivaciones. Finalmente en el capítulo 8 se mostrarán nuestros resultados originales obtenidos en el estudio de su diagrama de fases y de la llamada *transición de reorientación* [4].

Finalmente en la *Parte III* se discutirán las principales conclusiones de esta tesis y las posibles extensiones de los trabajos analizados.

Parte I

Termodinámica y dinámica de sistemas magnéticos con interacciones competitivas de corto alcance

Marco teórico

En esta primera parte de la tesis estudiaremos las propiedades termodinámicas y dinámicas de dos versiones de un mismo modelo magnético tridimensional con interacciones competitivas de corto alcance en la red cúbica. La primera versión corresponde al límite de anisotropía infinita en el cual asumimos que cada momento magnético está descrito por una variable tipo Ising. En el segundo caso relajamos esta condición y modelamos el momento magnético en cada sitio con variables tipo Heisenberg clásicas. Para ambas variantes del modelo nos interesa estudiar el comportamiento dinámico y estático en función de la temperatura, o sea, construiremos los correspondientes diagramas de fases termodinámicos. Finalmente veremos como la termodinámica y la dinámica están íntimamente relacionadas de forma sutil y compleja.

En el proceso de relajación al equilibrio de sistemas magnéticos, el fenómeno de formación y crecimiento de dominios es de fundamental importancia. Por eso, si bien nosotros no haremos este tipo de mediciones en esta tesis, sí describiremos brevemente en la sección 2.1 la teoría de crecimiento de dominios. Veremos en el próximo capítulo que estos conceptos son de fundamental importancia para comprender la física del modelo estudiado en esta parte de la tesis. En la sección 2.2 describiremos algunas formas de caracterizar la naturaleza vítrea de un sistema, formas que en particular hemos aplicado a nuestro estudio del modelo en consideración.

2.1. Crecimiento de dominios

El fenómeno de crecimiento de dominios es muy común en la naturaleza y se puede observar en una gran variedad de experiencias, como la formación de espumas, el crecimiento de granos en metales durante el templado o el ordenamiento de una aleación binaria después de ser sometida a un súbito enfriamiento desde una temperatura inicial muy alta hasta una temperatura final por debajo de la temperatura de solidificación. En muchos sentidos, el comportamiento de un sistema cuya dinámica es gobernada por crecimiento de dominios es muy similar al comportamiento de equilibrio de un sistema en un punto crítico: las funciones de correlación espaciales y temporales decaen en forma no exponencial y la dinámica se torna más lenta de lo usual.

En general, para caracterizar un proceso de crecimiento de dominios es suficiente entender la ley que gobierna el crecimiento de una única cantidad típica, la cual se suele asociar con la longitud media de una región espacial correlacionada, o en otras palabras, la longitud media $L(t)$ de un dominio. Y al igual que sucede con otras propiedades dinámicas (como veremos en la próxima sección), es posible clasificar los sistemas que presentan crecimiento de dominios en pocas categorías o clases de universalidad, de acuerdo a cuál sea la ley de crecimiento de $L(t)$.

De todos los comportamientos observados, sin duda el más frecuente es el comportamiento tipo ley de potencia,

$$L(t) \propto t^n, \quad (2.1)$$

donde n suele tomar sólo unos pocos valores. Como sabemos que para tiempos largos $L(t)$ finalmente alcanzará escalas macroscópicas, es de esperar, como sucede en fenómenos críticos, que el exponente n no dependa de los detalles microscópicos del sistema, tales como el Hamiltoniano, la dinámica y la estructura de la red. Dentro de este comportamiento algebraico, las dos clases de universalidad más frecuentes corresponden a los casos:

- $n = 1/2$, conocida como ley de Lifshitz-Allen-Cahn [5, 6], o también *dinámica de dominios forzada por curvatura*, la cual se observa en sistemas en los cuales el parámetro de orden no es conservado por la dinámica. Los ejemplos más típicos corresponden a aleaciones binarias, crecimiento de granos en metales y crecimiento de dominios en

espumas. En toda esta tesis, las dinámicas utilizadas serán siempre tipo Monte Carlo sin preservación del parámetro de orden, por lo tanto, de haber un crecimiento tipo ley de potencia, deberíamos siempre observar un exponente $n = 1/2$.

- $n = 1/3$, conocida como ley de Lifshitz-Slyozov [7], la cual surge usualmente en sistemas cuya dinámica es tal que evoluciona preservando el parámetro de orden. El ejemplo prototípico de este tipo de comportamiento es la llamada descomposición espinodal.

Sin embargo, a pesar de lo ubicuo de estos comportamientos algebraicos, éstos no son los únicos observados en la naturaleza. Podemos preguntarnos entonces si existen otras clases de universalidad o si los apartamientos de estas leyes algebraicas son sólo fenómenos anómalos observados en condiciones muy específicas. En particular, se sabe que algunos sistemas desordenados, como por ejemplo los vidrios de espín o modelos con campos externos aleatorios, pueden presentar crecimiento de dominios de forma logarítmica $L(t) \propto \ln(t)$ (usualmente clasificados con el exponente $n = 0$).

Durante los últimos años han surgido evidencias de que también sistemas sin desorden pero con frustración microscópica pueden presentar crecimiento de dominios logarítmico. En particular, se ha especulado que un sistema de dimensión d con degeneración Q (Q estados fundamentales), cuando $Q \geq (d + 1)$ puede presentar comportamiento logarítmico a temperaturas suficientemente bajas. No obstante, estas especulaciones no han pasado de meras suposiciones, ya que en general es muy difícil estudiar el proceso de crecimiento de dominios ya sea experimental, teórica o computacionalmente, sumado al hecho de que la evidencia existente es aún muy ambigua. Lamentablemente este problema no ha acaparado aún toda la atención que su importancia requiere.

Deseamos resaltar aquí que se debe ser muy cuidadoso al estudiar crecimiento de dominios numéricamente, ya que estos estudios suelen estar afectadas no sólo por efectos de tamaño finito, sino por la necesidad de superar transitorios muy largos, lo cual hace muy difícil alcanzar resultados contundentes y satisfactorios.

Tratemos de describir ahora muy rápidamente el origen del crecimiento de dominios logarítmico. Es posible distinguir, siguiendo [8], cuatro clases diferentes de sistemas, sobre

la base de cómo dependen las barreras de energía libre que éstos deben sobrepasar de la longitud media $L(t)$ de sus dominios ordenados. Consideraremos aquí sólo el caso de sistemas que no preservan el parámetro de orden, ya que todas las simulaciones de esta tesis se harán bajo estas condiciones. En este caso es posible deducir una ecuación diferencial ordinaria para la evolución de $L(t)$ [8] que tiene la forma,

$$\frac{dL(t)}{dt} = \frac{a(L(t), T)}{L(t)}. \quad (2.2)$$

Las cuatro clases a considerar son:

- *Clase 1:* la función $a(L(t), T)$ es diferente de cero aún en el límite $T \rightarrow 0$ y corresponde a los sistemas que no deben sobrepasar barreras de energía en el proceso de crecimiento de dominios. El ejemplo prototípico de esta clase es el modelo de Ising con interacciones de corto alcance y dinámica tipo espín-flip, el cual sabemos que no se corresponde, desde el punto de vista dinámico, con ningún sistema magnético real.
- *Clase 2:* $a \rightarrow 0$ cuando $T \rightarrow 0$ pero las barreras de energía libre son independientes de L . Los sistemas que pertenecen a esta clase se congelan dinámicamente a temperatura cero. Supongamos por ejemplo que existe una única barrera de energía libre de altura F_B , entonces podemos asumir que,

$$a(L, T) = a_0 e^{-F_B/T}.$$

Integrando ahora la ecuación diferencial 2.2 obtenemos,

$$L(t) = \sqrt{L_0^2 + a_0 t / \tau(T)},$$

donde $\tau(T) = e^{F_B/T}$ es el tiempo característico que requiere el sistema para sobrepasar la barrera. En estos casos, el crecimiento de dominios será muy lento ($L(t) \approx L_0$) para tiempos mucho menores al tiempo característico $\tau(T)$ pero una vez que supera la barrera entrará en un régimen tipo ley de potencia $L(t) \propto t^n$ con $n = 1/2$.

- *Clase 3:* las barreras de energía libre dependen linealmente de $L(t)$ y la dinámica del sistema también se congela a temperatura cero. Un ejemplo típico de sistema de clase 3 es el modelo de Ising con campo externo aleatorio, donde se obtiene, en el

límite asintótico $t \rightarrow \infty$, una ley de crecimiento logarítmica de la forma,

$$L(t) \sim \frac{T}{f_B} \ln(t),$$

donde f_B es la barrera de energía libre por unidad de longitud.

- *Clase 4:* las barreras de energía crecen de acuerdo a una ley de potencias de la forma L^m , con $m \neq 1$. El sistema otra vez se congela a temperatura nula, como ocurre en las clases 2 y 3. Un ejemplo de sistema de clase 4 es el modelo de Edwards-Anderson [9] tridimensional para vidrios de espín en la red, y se puede mostrar que en estos casos,

$$L(t) \sim [\ln(t)]^{1/m}, \quad \text{para } t \rightarrow \infty. \quad (2.3)$$

Si es posible caracterizar o no a un sistema como vítreo de acuerdo a la forma en que evolucionan sus dominios es una cuestión muy delicada. Podemos afirmar que los sistemas de clase 4 son sin duda los sistemas dinámicamente más complejos que se conocen. Por otro lado, sistemas clase 1 y 2 tienen una dinámica claramente no vítrea. Pero los sistemas que constituyen la clase 3 están sin duda en un límite difuso, sobre el cual es difícil hacer especulaciones. Si un sistema clase 3 es vítreo o no, requiere un estudio que va más allá del mero estudio de dominios.

Existe una creencia generalizada, pero errónea (como veremos más adelante), de que los sistemas de clase 3 están caracterizados por la presencia de aleatoriedad a nivel microscópico. Y en este contexto el estudio de sistemas frustrados pero ordenados se torna particularmente relevante. En particular, el modelo estudiado en esta parte de la tesis corresponde a la clase 3, y no presenta ningún ingrediente aleatorio [10, 11].

2.2. Dinámica fuera de equilibrio en sistemas vítreos

Ya mencionamos que en esta tesis nos proponemos estudiar sistemas que presentan frustración a nivel de las interacciones entre sus componentes, pero cuyo origen no viene dado por desorden microscópico, sino por la existencia de interacciones de naturaleza competitiva. También adelantamos que el modelo analizado en esta parte puede ser nítida-

mente categorizado como de clase 3, por presentar a bajas temperaturas un crecimiento de dominios logarítmico. Resta saber si esto se puede o no caracterizar como vítreo.

La forma más simple de ejemplificar nuestro interés por estos sistemas frustrados y ordenados es referirnos, a modo de motivación, a los llamados *vidrios estructurales*, de cotidiana presencia en nuestras vidas. Y esta alusión a ellos es particularmente relevante en esta parte de la tesis ya que el modelo que consideraremos a partir del próximo capítulo fue introducido precisamente como un prototipo de modelo en red de vidrio estructural.

La forma más simple de generar un vidrio estructural es mediante el enfriamiento súbito de un líquido (precursor del vidrio) desde una temperatura inicial suficientemente alta hasta una temperatura final por debajo de la temperatura de cristalización T_M . En particular, si este enfriamiento es rápido, muchas veces la cristalización no ocurre y el sistema queda atrapado en un estado casi-estacionario llamado vidrio. Dado que para $T < T_M$ la fase cristalina es la fase termodinámicamente estable, ese estado vítreo es meta-estable con algunas de sus propiedades localmente equilibradas y con un tiempo de vida medio que puede llegar a ser excesivamente grande.

Un líquido formador de vidrio en su fase vítrea se acomoda en estados estructuralmente desordenados, en el sentido que pierde cualquier patrón de periodicidad espacial usual en sistemas cristalinos. Sin embargo este estado desordenado se debe a que el sistema queda atrapado en ciertas regiones del espacio de las fases, pero a nivel de descripción microscópica *no existen elementos aleatorios* que sea necesario introducir a la hora de definir su Hamiltoniano. La forma más usual de describir un líquido es mediante el uso de interacciones entre pares de partículas del tipo Lennard–Jones [12], que son repulsivas a cortas distancias pero atractivas a largo alcance. Para cada par de partículas existe una distancia bien definida que minimiza la energía del par. Y esta competencia entre atracción y repulsión, cuando el número de partículas es muy grande, impide que el sistema encuentre (al menos rápidamente) la o una de las configuraciones de mínima energía.

Una propiedad importantísima de los vidrios estructurales (y los vidrios en general) es la llamada *dependencia con la historia de la muestra o envejecimiento*, observada en su evolución dinámica después de una súbita perturbación. Y si bien no existe aún una teoría completa capaz de explicar esta fenomenología, durante los últimos años se hicieron signi-

ficativos avances hacia su completo entendimiento. En particular, veremos que, como sucede con la llamada Relación de Fluctuación Disipación (RFD) fuera del equilibrio, es posible una vez más definir pocas clases de universalidad dinámica y eventualmente usar estas categorías para identificar sistemas vítreos [13, 14]. Las dos próximas secciones están dedicadas a discutir estos aspectos dinámicos.

2.2.1. Envejecimiento y dependencia con la historia de la muestra

Una de las propiedades más llamativa de los sistemas vítreos es que éstos, al igual que nosotros, *envejecen*. Esto quiere decir, en términos físicos, que el sistema tiene memoria de cuánto tiempo ha estado en la fase vítrea, así como nuestro cuerpo tiene memoria de cuánto tiempo hemos vivido, y que cuanto mayor es este tiempo o *edad*, más lenta es su relajación al equilibrio (así como nosotros al envejecer tenemos menos capacidad de reaccionar a perturbaciones externas). Por esta razón, la dinámica residual de relajación de estos sistemas es usualmente llamada *dinámica de envejecimiento*. Como la mayoría de las experiencias de laboratorio que se hacen con sistemas vítreos se dan en condiciones de no-equilibrio, la física de estos materiales debe interpretarse como un fenómeno esencialmente dinámico: el sistema continúa evolucionando aún mucho después de haber sido enfriado por debajo de la temperatura crítica, y muestra una fuerte dependencia con la historia de su preparación a lo largo del tiempo de observación. Estos fenómenos de envejecimiento son observados en una gran variedad de sistemas naturales, como por ejemplo sistemas biológicos, polímeros y superconductores a alta temperatura, entre muchos otros.

Vale destacar que la presencia de envejecimiento por sí misma no garantiza un comportamiento vítreo, ya que por ejemplo también se observa en el caso de sistemas magnéticos en el régimen algebraico de crecimiento de dominios [15].

Como trabajaremos en esta parte de la tesis con un modelo magnético de vidrio estructural trataremos de describir cómo se puede verificar experimental y numéricamente la presencia de envejecimiento en estos sistemas [16, 17]. Una experiencia típica en la que se evidencia esta fenomenología es la medición de la magnetización termo-remanente M_{TRM} , en la cual el sistema es enfriado rápidamente en presencia de un campo magnético

B a una temperatura final por debajo de la temperatura de transición T_C . Se deja evolucionar el sistema cierto *tiempo de espera* t_w a campo externo constante, momento en el cual éste es súbitamente desconectado. A partir de ese instante (lo que define arbitrariamente el tiempo inicial $t = 0$) se mide la dependencia temporal (dependencia en t) de la magnetización termo-remanente $M_{TRM}(t, t_w)$. Usualmente se espera que el tiempo que demora el sistema en alcanzar el equilibrio sea microscópico, es decir, que sufra una relajación exponencial, y que para cualquier tiempo de espera t_w se mida la misma curva M_{TRM} vs. t . En otras palabras, si el sistema equilibra, la invariancia ante traslación temporal garantiza que la magnetización sólo dependerá del tiempo t transcurrido entre el apagado del campo y el momento de la medición. Sin embargo, en un sistema que presenta dinámica de envejecimiento, la curva M_{TRM} vs. t depende fuertemente también de t_w . En la figura 2.1 se muestra una medición de la magnetización termo-remanente en un vidrio de espín (Ag:Mn_{2,6}%), realizada por Vincent y colaboradores en la referencia [16] para diferentes valores de t_w . Observemos que la relajación es diferente dependiendo del tiempo t_w que el sistema pasó en presencia del campo en la fase de bajas temperaturas. En particular, se verifica que a medida que t_w crece las curvas de M_{TRM} decaen más lentamente. Esta disminución de la velocidad de reacción a medida que aumenta la edad del sistema en la fase de bajas temperaturas es lo que ha dado lugar al nombre de *envejecimiento* del material.

Los fenómenos de envejecimiento también pueden ser observados en la función de auto-correlación a dos tiempos $C(t, t_w)$, la cual para el caso particular de un modelo con variables de espín tipo Ising toma la forma

$$C(t, t_w) \equiv \frac{1}{N} \sum_i^N \langle s_i(t_w) s_i(t_w + t) \rangle. \quad (2.4)$$

Si bien experimentalmente estas cantidades son muy difíciles de medir, desde un punto de vista numérico su cálculo es directo y no requiere de la inclusión de campos magnéticos externos. Como sucede con la magnetización, si el sistema está en equilibrio, esta correlación debe ser invariante ante una traslación temporal y depender únicamente de t . En cambio, para los sistemas que *envejecen* se observa que la función de auto-correlación tiene un decaimiento que es progresivamente más lento a medida que t_w crece, como ocurre con M_{TRM} .

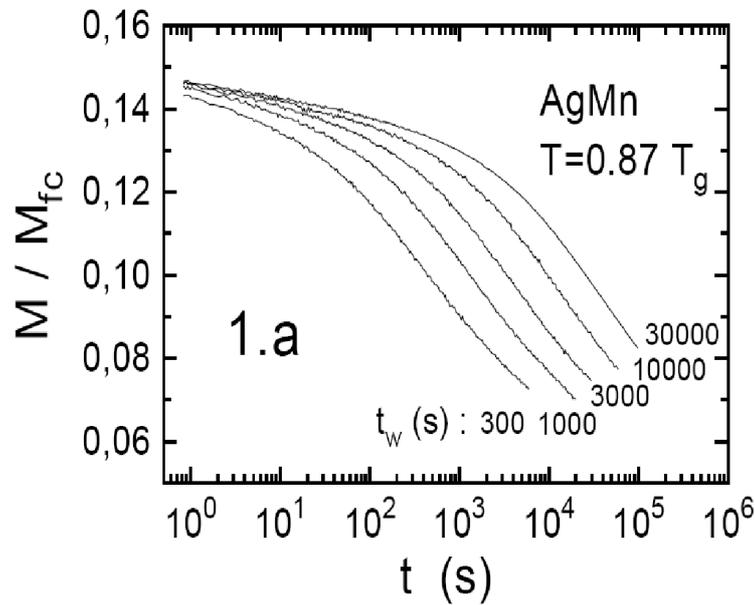


Figura 2.1: Magnetización termo-remanente M_{TRM} (normalizada por el valor de la magnetización *field cooled* M_{fc}) vs. t para una muestra de $Ag : Mn_{2,6\%}$ con $T = 9K = 0,87T_g$ y diferentes valores de t_w [16]

Existen ciertos criterios de universalidad que permiten clasificar la dinámica de no-equilibrio de un sistema de acuerdo al comportamiento de escala (dependencia en t y t_w) de $M_{TRM}(t, t_w)$ en un experimento, o de la función $C(t, t_w)$. La pertenencia a una u otra de las pocas clases de universalidad observadas dependerá de los mecanismos microscópicos involucrados en el frenado de la dinámica. En este sentido, conocer las leyes que gobiernan el envejecimiento nos brinda valiosa información microscópica indirecta de la dinámica del sistema.

Cuando se mide la función de auto-correlación en un sistema con envejecimiento, generalmente se observa que en el límite de tiempos de espera largos $t_w \gg 1$ ésta muestra una separación de escalas temporales características: para $t \ll t_w$ depende sólo de t y se dice que el sistema está en un régimen casi-estacionario, mientras que para $t \gg t_w$ el sistema está claramente en el régimen de envejecimiento, con una dependencia tanto en t como en t_w . Este comportamiento puede describirse separando la auto-correlación en una

componente estacionaria y en otra de envejecimiento,

$$C(t, t_w) = C_{est}(t) + C_{env}(t, t_w), \quad (2.5)$$

con las siguientes propiedades:

$$\lim_{t \rightarrow \infty} \lim_{t_w \rightarrow \infty} C(t, t_w) = q_{EA} \quad \text{y} \quad C_{env}(t, t) = q_{EA}. \quad (2.6)$$

Además, para la contribución estacionaria se cumple que,

$$C_{est}(0) = 1 - q_{EA} \quad \text{y} \quad \lim_{t \rightarrow \infty} C_{est}(t) = 0. \quad (2.7)$$

Con estas ecuaciones queda definido el parámetro de Edward-Anderson q_{EA} , ampliamente utilizado en el estudio teórico de modelos de vidrios espines [49, 19, 20].

En la figura 2.2 (a) se muestra esquemáticamente la función de auto-correlación a dos tiempos $C(t, t_w)$ para un sistema con dinámica de envejecimiento. La función primero decae de $C(t, t_w) = 1$ hasta $C = q_{EA}$ en forma estacionaria (para t_w grande y para $t \ll t_w$), es decir, no depende de t_w . A tiempos mayores la función de auto-correlación continúa decayendo hasta $C = 0$, pero ahora en un régimen con dependencia en ambos tiempos, t y t_w .

Varias formas de escala se han propuesto para la contribución de *envejecimiento*, y en general se encuentra que ésta puede escribirse de la forma

$$C(t, t_w) = f\left(\frac{h(t)}{h(t_w)}\right), \quad (2.8)$$

donde $h(x)$ debe ser una función monótonamente creciente de x . Cuando $h(t)/h(t_w)$ es función de t/t_w , el régimen de envejecimiento se denomina *envejecimiento simple* y la función de auto-correlación cumple con la relación de escala

$$C_{env}(t, t_w) = C_{env}\left(\frac{t}{t_w}\right). \quad (2.9)$$

Este es el caso, por ejemplo, de los sistemas que tienen dinámica de crecimiento de dominios algebraica, ya que se cumple entonces que $h(t) = L(t) \sim t^n$ (donde $L(t)$ es el tamaño medio lineal de los dominios al tiempo t). Cualquier apartamiento de esta ley de escala es indicativo de la existencia de mecanismos complejos de relajación, y son muchos los ejemplos de sistemas físicos donde esto ocurre. En estos casos es común utilizar la siguiente

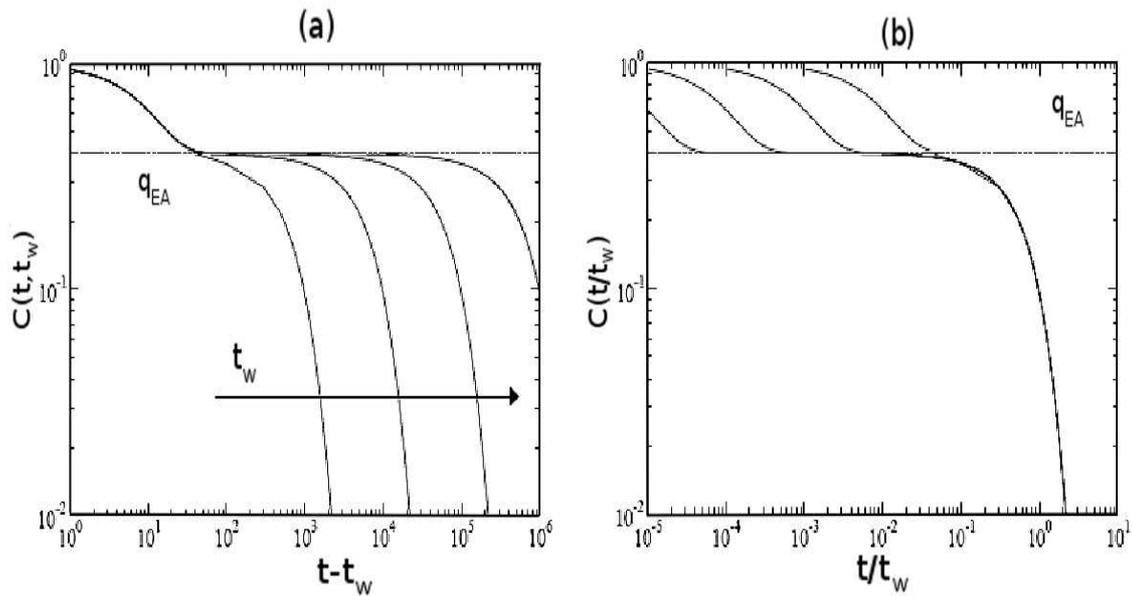


Figura 2.2: (a) Función de auto-correlación $C(t, t_w)$ a dos tiempos para diferentes tiempos t_w . (b) Transformación de escala de la función de auto-correlación para el caso de envejecimiento simple.

función de escala generalizada,

$$h(t) = \exp \left[\frac{1}{1 - \mu} \left(\frac{t}{\tau_0} \right)^{1 - \mu} \right], \quad (2.10)$$

que fue propuesta fenomenológicamente en el contexto de vidrios de espines y polímeros. Si bien esta función de escala no fue obtenida de primeros principios, ha sido ampliamente utilizada con éxito en una gran variedad de sistemas físicos. En general se encuentra que el parámetro μ (que hasta ahora no tiene un claro significado físico) es siempre cercano a uno.

Cuando $\mu < 1$ la dinámica se denomina *sub-envejecimiento*, indicio que para $t_w \rightarrow \infty$ el sistema recupera la invariancia ante traslación temporal. En otras palabras, cuanto mayor es t_w , menos significativo es el envejecimiento. Algunos autores suelen llamar a este régimen como *envejecimiento interrumpido*. El mismo se observa en vidrios de espín, tanto en experimentos con materiales reales como en modelos estadísticos [16], y representa la dinámica más compleja observada, donde incluso la definición de dominios suele ser materia de gran controversia.

El caso $\mu = 1$ corresponde al envejecimiento simple, ya que se puede ver que

$$\lim_{\mu \rightarrow 1} \left(\frac{h(t)}{h(t_w)} \right) = \frac{t}{t_w}. \quad (2.11)$$

El caso $\mu > 1$ es mucho más controvertido y se denomina *súper-envejecimiento* ya que los efectos de la edad se hacen cada vez más acentuados en la relajación a medida que t_w crece. En [21] se mostró que un sistema físico no puede presentar este tipo de comportamiento. Sin embargo esta dependencia se ha medido tanto experimental como numéricamente [22-25]. Algunos autores sugieren que todos los casos en que $\mu > 1$ se pueden ajustar en forma logarítmica a tiempos t_w y t grandes. Este régimen ha sido observado tanto en modelos magnéticos como en medios granulares.

2.2.2. Generalización del Teorema de Fluctuación-Disipación

El Teorema de Fluctuación-Disipación (TFD) ha sido clave en el desarrollo de la Mecánica Estadística de equilibrio ya que relaciona las fluctuaciones de un sistema con su respuesta ante perturbaciones. En su forma diferencial puede escribirse de la forma

$$R_{A,B}(t, s) = k_B T \frac{\partial}{\partial s} C_{A,B}(t, s) \quad t > s, \quad (2.12)$$

donde $C_{A,B}(t, s)$ es la función de correlación entre los observables A y B , $R_{A,B}$ es la función respuesta de B en t a una perturbación que se hace sobre el observable A a un tiempo s y k_B es la constante de Boltzman. La función respuesta está relacionada a su vez con la susceptibilidad mediante la relación

$$\chi_{A,B}(t) = \int_0^t R_{A,B}(t, s) ds. \quad (2.13)$$

En otras palabras, el TFD relaciona la correlación y la respuesta del sistema a una perturbación sólo a través de la temperatura T . En regímenes fuera de equilibrio, esta relación ya no vale, y tanto la correlación (como vimos en la sección anterior) como la susceptibilidad dependen en general de los dos tiempos t y s . Una forma de generalizar el TFD es definiendo la Razón de Fluctuación-Disipación (RFD)

$$X_{A,B}(t, s) = \frac{k_B T R_{A,B}(t, s)}{\frac{\partial}{\partial s} C_{A,B}(t, s)}, \quad t > s. \quad (2.14)$$

En equilibrio debe cumplirse que $X_{A,B}(t, s) = 1$ para cualquier valor de los tiempos t y s y para cualquier par de observables A y B (ec. (2.12)). El valor de $X_{A,B}$ en situaciones de no equilibrio puede considerarse entonces una forma de medir el apartamiento del verdadero equilibrio térmico. Debido a que esta generalización del TFD no fue obtenida de primeros principios, su validez puede ser verificada solamente en forma experimental o numérica. De hecho, esta relación ha sido utilizada en un gran número de sistemas físicos, incluyendo vidrios de espín, vidrios estructurales, medios granulares y sistemas en dinámicas de crecimiento de dominios, entre otros.

Podemos obtener una expresión paramétrica de la Razón de Fluctuación-Disipación escribiendo al tiempo en términos de la función de auto-correlación a dos tiempos, y si además utilizamos la ecuación (2.13) que relaciona la función respuesta con la susceptibilidad (que es lo que en realidad se mide en un experimento o simulación numérica), entonces la ecuación (2.14) para la RFD toma la forma

$$\chi_{A,B}(t, s) = \frac{1}{k_B T} \int_{C(t,s)}^{C(t,t)} dC' X(C'). \quad (2.15)$$

Esta ecuación describe la respuesta del sistema al tiempo t en un estado de no equilibrio ante una perturbación externa que actúa en el tiempo $s < t$. Nos brinda además una forma simple de calcular $X_{A,B}$ a partir de mediciones de la susceptibilidad y de la correlación a dos tiempos para $t > s$. Si en particular se cumple que $C(t, t) = 1$, la pendiente de la curva $X_{AB}[C(t, s), s]$ puede ser obtenida a partir de (2.15):

$$X_{A,B} = - \frac{1}{k_B T} \left. \frac{\partial \chi_{A,B}(t, s)}{\partial C_{A,B}(t, s)} \right|_{s \text{ fijo}}. \quad (2.16)$$

De esta forma, si podemos graficar la función susceptibilidad en términos de la correlación para diferentes valores del parámetro t , podemos calcular el valor de la RFD $X_{A,B}$ a partir de la pendiente de la curva resultante.

Para un sistema en equilibrio dijimos que $X = 1$, por lo que la ecuación (2.15) toma la forma

$$\chi_{A,B}(t, s) = \frac{1}{T} \int_{C(t,s)}^1 dC' = \frac{1}{T} [1 - C(t, s)]. \quad (2.17)$$

De la definición de la RFD (ecuación (2.14)) surge el concepto de *Temperatura Efectiva*, ya

que si la reescribimos de la forma

$$\frac{\partial}{\partial s} C_{A,B}(t, s) = \frac{T}{X_{A,B}(C)} R_{A,B}(t, s), \quad (2.18)$$

podemos entonces definir la *temperatura efectiva* como el cociente entre la temperatura del baño y la Razón de Fluctuación-Disipación:

$$T_{ef} = \frac{T}{X_{A,B}(C)}. \quad (2.19)$$

El Teorema de Fluctuación Disipación se puede generalizar de la siguiente manera:

$$\frac{\partial}{\partial s} C_{A,B}(t, s) = T_{ef}(C_{A,B}(t, s)) R_{A,B}(t, s). \quad (2.20)$$

Podemos ver que esta ecuación es equivalente a la del TFD de equilibrio, simplemente reemplazando la temperatura del baño térmico por una temperatura efectiva, la cual en el caso general es una función de t y s . No obstante, queremos aclarar que esta temperatura efectiva no tiene *a priori* ningún sentido físico conocido. Como en general se cumple que $X_{A,B} > 1$, entonces la temperatura efectiva es usualmente mayor que la del baño térmico.

Los sistemas son generalmente clasificados en tres diferentes grupos, de acuerdo al comportamiento de la T_{ef} fuera de equilibrio [26].

- En sistemas con dinámica de crecimiento de dominios, la temperatura efectiva sólo toma dos valores: T (la temperatura del baño) para el régimen estacionario, y T_{ef} infinita, correspondiendo al régimen de envejecimiento.
- En vidrios estructurales, la temperatura efectiva también toma dos valores, T y $T_{ef} > T$, para los regímenes estacionario y de envejecimiento, respectivamente. A estos se los conoce generalmente como sistemas de dos escalas de tiempo.
- En los vidrios de espín la T_{ef} toma un espectro continuo de valores entre $T^* > T$ e infinito. Estos son conocidos como sistemas de múltiples escalas de tiempo. Este comportamiento indica la existencia de un paisaje energético muy complicado, caracterizado por barreras de energía libre de todos los tamaños.

En la figura 2.3 se muestra esquemáticamente un gráfico típico de la Relación de Fluctuación-Disipación (χ vs. C), para los tres posibles escenarios descriptos.

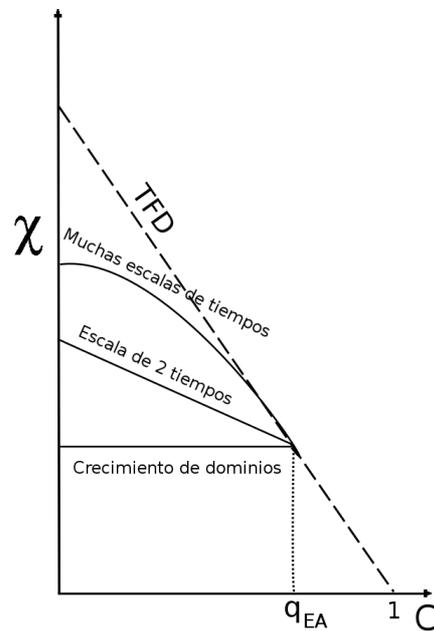


Figura 2.3: Curvas de susceptibilidad vs. correlación para los tres grupos de sistemas con dinámica vítrea.

A $t = 0$ le corresponde el punto $C = 1$ y $\chi_{A,B} = 0$. La línea de puntos corresponde precisamente a la curva paramétrica que uno esperaría ver si el sistema estuviese en equilibrio termodinámico. En todos los casos vemos que durante un período inicial el sistema se comporta como si estuviera en equilibrio termodinámico a temperatura T hasta que entra al régimen de envejecimiento, en el que la temperatura efectiva es diferente a la del baño térmico.

La afirmación de que la temperatura efectiva tiene realmente un significado termodinámico trae algunos problemas conceptuales, a saber:

- se observa que no siempre T_{ef} es independiente de los observables A y B usados para construir la correlación y respuesta;
- no existe una teoría que generalice la ley cero de la termodinámica cuando el sistema está en estados de no-equilibrio;
- no existe una medida de no-equilibrio que permita sustituir medias temporales en los

estados de no-equilibrio por medias de ensemble.

Estos tres problemas han desafiado a los físicos estadísticos durante los últimos años y continúan siendo hoy problemas abiertos en el estudio de la física estadística de sistemas fuera de equilibrio.

2.3. Discusión

En este capítulo hemos analizado diferentes métodos para caracterizar la dinámica de relajación, de acuerdo a la ley de crecimiento de la longitud típica de un dominio correlacionado $L(t)$, de la dependencia con la historia de la muestra o envejecimiento y de la llamada Relación de Fluctuación-Disipación. La relación entre todos estos estudios no es obvia, aunque podemos afirmar que un sistema tiene dinámica compleja si:

- de acuerdo a su dinámica de crecimiento de dominios pertenece a la clase 3 ($L(t) \sim \log(t)$) o a la clase 4 ($L(t) \sim \log(t)^m$),
- la dinámica de envejecimiento presenta un valor $\mu \neq 1$ y
- $1/T_{ef}$ no es igual a cero ni a $1/T$, donde T es la temperatura del baño térmico.

Todo este conocimiento, en su mayoría fenomenológico, será aplicado en esta parte de la tesis a la caracterización de la dinámica de un modelo con interacciones competitivas en la red cúbica.

El modelo Shore-Sethna

Como hemos visto en los capítulos anteriores sabemos, tanto de estudios experimentales como teóricos, que en los sistemas con desorden y frustración, la dinámica de ordenamiento puede verse frenada en forma drástica por la formación de barreras de energía libre que crecen con el tamaño de la región correlacionada. Y una cuestión muy importante actualmente en discusión, y a la cual este trabajo pretende contribuir, es la existencia de comportamientos análogos en sistemas frustrados pero sin desorden. A inicios de los noventa, Shore, Holzer y Sethna [10, 11] analizaron propiedades dinámicas de un modelo estadístico muy simple el cual sin embargo presenta algunas de las singulares dinámicas observadas en sistemas vítreos. En particular, ellos lo propusieron como un prototipo para emular la física de vidrios estructurales. Quizá lo más importante a destacar, sea que el modelo consiste en una muy simple generalización del modelo de Ising ferromagnético. En este sentido, lo más importante del modelo es que fue definido a partir de un modelo de Ising en red, con alto grado de frustración debido a sus interacciones competitivas, pero sin desorden impuesto.

En este capítulo presentaremos el modelo, las investigaciones previas realizadas por otros autores, y finalmente describiremos qué nos motivó a estudiar sus propiedades estáticas y dinámicas.

3.1. El modelo

En 1991 Joel Shore y James Sethna en la referencia [10] revisitaron una versión del modelo de Ising con la finalidad de capturar, en un sistema lo más simple posible, el complejo comportamiento observado en sistemas físicos que presentan frustración microscópica. En otras palabras, deseaban mostrar que es posible definir un sistema microscópicamente ordenado (cuyo Hamiltoniano no requiere elementos aleatorios) que a la vez sea capaz de reproducir alguna de las propiedades dinámicas observadas en sistemas complejos, como por ejemplo los vidrios estructurales.

El modelo de Shore-Sethna, al cual nosotros denominaremos a partir de ahora resumidamente *Modelo SS*, consiste de un sistema de N espines tipo Ising ubicados en los nodos de una red hipercúbica. Los momentos magnéticos interactúan ferromagnéticamente si son vecinos próximos y antiferromagnéticamente entre segundos vecinos. Cualquier interacción de mayor alcance, como podría ser la interacción dipolo-dipolo, es totalmente despreciada en este enfoque. En particular, en el trabajo mencionado el estudio se realizó para los casos bidimensional (red cuadrada) y tridimensional (cúbica), obteniéndose resultados marcadamente diferentes, como veremos a lo largo de este capítulo. En nuestro caso nos concentraremos en el modelo tridimensional por ser el que presenta comportamientos dinámicos más interesantes.

La dinámica del sistema está gobernada por un Hamiltoniano que tiene la siguiente forma:

$$H = -J_1 \sum_{NN} s_i s_j + J_2 \sum_{NNN} s_i s_j, \quad (3.1)$$

donde los espines s_i son modelados con variables de Ising ($s_i = \pm 1$) y J_1 y J_2 son ambos parámetros definidos positivos que representan, respectivamente, la magnitud de las interacciones ferro y antiferromagnéticas. La primera suma (NN) se realiza sobre pares de espines primeros vecinos y la segunda (NNN) sobre pares de espines segundos vecinos.

Por razones de simplicidad es conveniente redefinir, sin perder por ello generalidad, el Hamiltoniano (3.1) en la siguiente forma adimensional:

$$\mathcal{H} = \frac{H}{J_2} = -\delta \sum_{NN} s_i s_j + \sum_{NNN} s_i s_j, \quad (3.2)$$

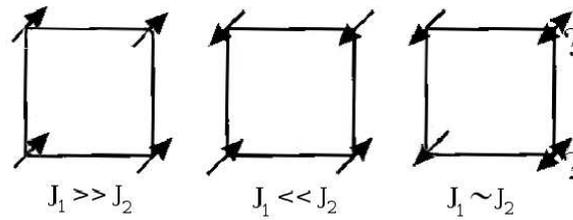


Figura 3.1: Plaqueta de una red cuadrada ilustrando esquemáticamente la frustración del modelo.

donde $\delta = J_1/J_2$ es ahora el único parámetro relevante de \mathcal{H} , el cual mide la razón entre las intensidades de los acoplamientos ferro y antiferromagnéticos. Entonces a partir de ahora, tanto la temperatura como la energía serán medidas en unidades de J_2 .

La frustración en el modelo SS surge de la competencia entre las interacciones ferro y antiferromagnéticas que sufre cada espín, resultando imposible encontrar una configuración microscópica que satisfaga simultáneamente todas las interacciones de pares del sistema, como mostramos esquemáticamente en la figura 3.1.

Al igual que ocurre con otros sistemas frustrados, el modelo presenta dinámica lenta, que se manifiesta en la ley de crecimiento de dominios. Este estudio fue desarrollado con detalle por Shore Holzer y Sethna [11], y lo mostraremos en la próxima sección.

3.2. Antecedentes

Durante las décadas del '70 y '80 el modelo en su versión bidimensional recibió especial atención en el contexto de fenómenos críticos. Nauenberg y Nienhuis realizaron los primeros estudios [27] en 1974, y una serie de trabajos posteriores [28, 29, 30] se llevaron a cabo en los años '80. Casi todos ellos se basaron en Teoría de Grupos de Renormalización, por entonces el marco teórico más exitoso para el estudio de fenómenos críticos. Pero incluso algunos, como por ejemplo el de Landau y colaboradores [31], intentaron modestamente, dados los limitados recursos computacionales de la época, realizar simulaciones Monte Carlo con el objetivo de estudiar el diagrama de fases. El modelo fue extendido para el caso de variables tipo Potts, analizando estados fundamentales, temperaturas críticas y diagra-

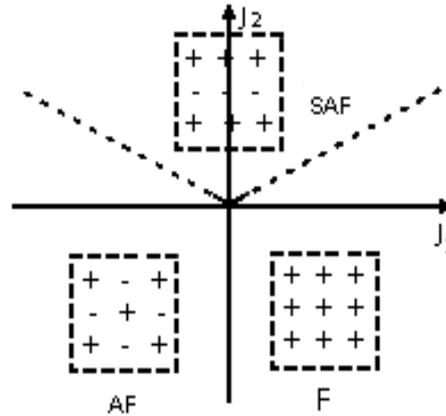


Figura 3.2: Esquema del diagrama de fases a $T = 0$ para el modelo en la red cuadrada.

mas de fases, entre otras propiedades de equilibrio. Para el caso de variables de espines tipo Ising (modelo de Potts con $q = 2$) muestran que hay tres posibles estados fundamentales dependiendo de los signos y valores relativos de J_1 y J_2 : ferromagnético (F), antiferromagnético (AF), y superantiferromagnético (SAF), como mostramos esquemáticamente en la figura 3.2. Mediante el estudio de exponentes críticos fueron capaces de mostrar también que la transición entre las fases SAF y paramagnética tiene un comportamiento crítico no-universal, es decir que sus exponentes críticos dependen de la relación $\delta = J_1/J_2$.

Es importante destacar que si bien se realizaron muchos estudios de la termodinámica del modelo en la red cuadrada, no hay en la literatura estudios similares en redes tridimensionales. En este sentido, el capítulo 4 presenta por primera vez en la literatura el diagrama de fases del modelo SS en la red cúbica.

En el año 1991 Shore y Sethna [11] renovaron el interés en el modelo, pero concentrándose ahora en la dinámica del mismo. Los motivaba la idea de que la frustración pudiera generar barreras de energía divergentes con el tamaño de la región correlacionada, capaces de tornar la dinámica del sistema extremadamente lenta. De ser así, esto resultaría particularmente interesante para comprender los mecanismos responsables de las anomalías dinámicas observadas en sistemas vítreos sin desorden impuesto en el Hamiltoniano. Para confirmar su hipótesis, realizaron estudios numéricos sobre las barreras de

energía que surgen durante el crecimiento de dominios y la dependencia en el tiempo del tamaño medio de estos dominios. Estos estudios abarcaron tanto el caso de la red cuadrada como de la red cúbica, y encontraron diferencias notables entre sus comportamientos.

En lo que sigue de esta sección, mostraremos los resultados obtenidos por Shore y colaboradores [11] referidos al crecimiento de dominios, poniendo especial atención en la red cúbica, ya que este es el caso de interés de esta parte de la tesis.

Consideremos un dominio de espines que comienza a absorber a otros más pequeños. Si suponemos que éstos están completamente rodeados por el dominio mucho mayor, analizar el proceso de crecimiento del dominio grande es equivalente al análisis de la desaparición de los dominios más pequeños.

Para calcular las barreras de energía que se generan en el proceso de inversión de los espines de un dominio pequeño inmerso en uno mayor (en la red tridimensional), supongamos por simplicidad que éste es cúbico, de tamaño lineal L , y que se comienza por invertir un espín del vértice.

En el estado inicial, la energía del sistema es

$$E_i = E_0 - 3J_1 + 3J_1 + 3J_2 - 9J_2 = E_0 - 6J_2 ,$$

ya que tres de los seis primeros vecinos y nueve de los doce segundos vecinos del espín a invertir son antiparalelos. Aquí E_0 representa la energía de las interacciones de todos los pares de espines menos los que involucran al que se está considerando. Una vez invertido el espín del vértice, la energía resulta ser

$$E_f = E_0 + 3J_1 - 3J_1 - 3J_2 + 9J_2 = E_0 + 6J_2 .$$

Así, la barrera de energía que el sistema debe superar para invertir este espín es $\Delta E = 12J_2$

Si se continúan invirtiendo los espines de la arista, cada nuevo espín a invertir tendrá un costo de energía de $4J_2$, excepto el último, que no generará costo energético. Entonces, para invertir la arista completa se necesitará una energía de

$$\Delta E = 12J_2 + 4(L - 2)J_2 = (L + 1)4J_2$$

$$\Delta\mathcal{E} = \Delta E/J_2 = 4(L + 1).$$

Una vez invertida toda la línea de espines, para continuar invirtiendo el resto del dominio el sistema debe superar otras barreras de energía que pueden calcularse del mismo modo. Sin embargo, a bajas temperaturas y en el límite de L grande, la mayor barrera de energía a ser superada en la secuencia de inversión de espines será la que domine el tiempo de inversión del cubo. Y en una primera aproximación podemos suponer que esa barrera de energía es la calculada anteriormente.

Observemos que la barrera de energía crece con el tamaño del dominio L . Podemos esperar que el tiempo característico necesario para que el sistema supere la barrera de energía sea

$$t = \tau_0 e^{\frac{\Delta E}{k_B T}} = \tau_0 e^{\frac{4(L+1)}{k_B T}}. \quad (3.3)$$

Invirtiendo esta expresión se obtiene entonces una ley de crecimiento logarítmico del dominio,

$$L(t) = \frac{k_B T}{4} \ln \left(\frac{t}{\tau_0} \right). \quad (3.4)$$

Una análisis similar se realizó para el caso de la red cuadrada, demostrándose que la barrera de energía es constante, independiente del tamaño L del dominio, y por ende se espera un crecimiento de dominios $L \sim t^n$ (clase 2). Esto lo confirmaron simulaciones de Monte Carlo donde se calculó L en función del tiempo para diferentes temperaturas, y en todos los casos se observó la ley de crecimiento algebraica, con un exponente cercano a $n = 1/2$, que es el correspondiente al de dinámicas donde no se conserva el parámetro de orden (como es el caso de la dinámica Monte Carlo utilizada para dicho estudio).

Volviendo al caso tridimensional, podemos ver que los argumentos desarrollados por los autores para explicar el crecimiento de dominios logarítmico en la red cúbica están lejos de ser una prueba rigurosa, y se pueden realizar al menos dos grandes objeciones a sus conclusiones, puntos que ellos discuten largamente:

- en primer lugar, si bien se identificaron configuraciones para las cuales las barreras de energía escalan con L , podría ocurrir que durante el proceso de crecimiento de dominios el sistema encuentre otras configuraciones que le permitiesen evitar estas barreras de energía. Una pregunta importante es la siguiente: ¿qué ocurre cuando los

dominios no son cúbicos? Para responder esta pregunta los autores realizaron simulaciones numéricas, analizando la desaparición de dominios esféricos y observaron que a bajas temperaturas estos dominios comienzan a invertir espines hasta transformarse en dominios con caras planas y bordes afilados. Es decir que aun cuando el dominio inicial no es cúbico, la dinámica lleva al sistema a una configuración como la analizada previamente. Otro punto a considerar es que los argumentos fueron hechos sobre la base de dominios aislados. Sin embargo el análisis también se aplica a una situación más general en la que, por ejemplo, existan sólo dos grandes dominios, proporcionales al tamaño del sistema, ya que a temperaturas bajas éstos tienden a tener bordes afilados. Entonces incluso en este caso la barrera de energía para invertir un espín del borde diverge en el límite termodinámico con el tamaño L del sistema.

- En segundo lugar, a temperaturas distintas de cero se deben considerar barreras de energía libre en lugar de barreras de energía interna, ya que los efectos de la entropía deben ser tenidos en cuenta. En función de analizar si hay correcciones importantes en este sentido, los autores calcularon analíticamente la barrera de energía libre F_B que el sistema debe superar para invertir una arista completa del dominio cúbico, considerando el sistema en el límite de frustración débil $\delta \rightarrow \infty$ (cálculo justificado por el hecho de que a bajas temperaturas los resultados numéricos mostraron ser poco sensibles a δ). Además sólo se analizaron los casos en que se invierten espines en una sola cara del cubo, que es una buena aproximación considerando que el número de configuraciones descartadas es generalmente menor que el de aquellas (con la misma energía) que sí son consideradas. En particular se puede mostrar que en el límite termodinámico este cálculo se vuelve exacto. La expresión final para la barrera de energía libre F_B es:

$$F_B = 4J_2(L + 1) - T \ln \{3 - 2(1 + y)^{L-2} + (L - 2)y[1 + 4(1 + y)^{L-3}]\} \quad (3.5)$$

donde

$$y = \frac{e^{-8J_2/T}}{1 - e^{-4J_2/T}}. \quad (3.6)$$

Para completar el análisis, los autores realizaron simulaciones de Monte Carlo estudiando el tiempo necesario para la inversión de dominios. En la figura 3.3 se muestra el tiempo

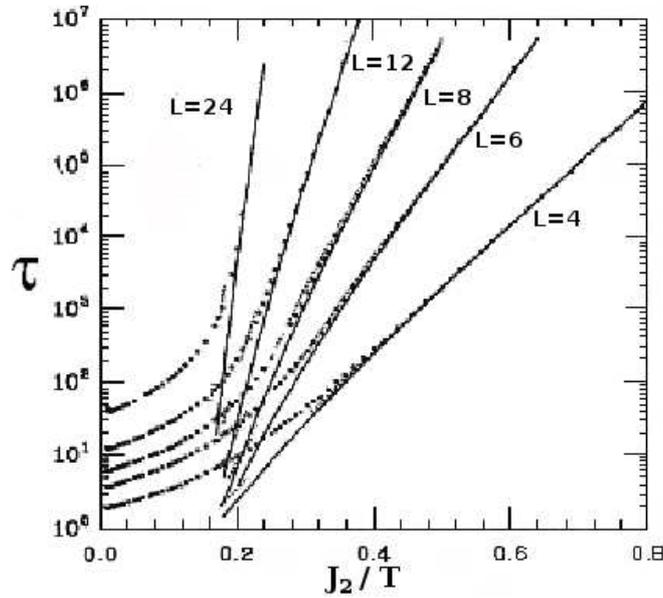


Figura 3.3: Tiempo medio necesario τ (medido en Paso de Monte Carlo) para hacer desaparecer una arista de un dominio cúbico de tamaño L , para $\delta = 100$. Las curvas continuas corresponden a ajustes realizados con la expresión (3.5) [11].

medio de inversión de los espines de la primera arista de un dominio cúbico, en función de J_2/T , para varios tamaños de dominios, y para $\delta = 100$ (los resultados con $\delta = 6$ son esencialmente indistinguibles, al menos para $J_2T > 0,25$).

Podemos ver en el gráfico, del tipo Arrhenius, que las curvas son bien ajustadas por rectas a bajas temperaturas, indicando que la dinámica está dominada por un proceso de activación. También podemos notar la fuerte dependencia con L , ya que aumentan las pendientes de las rectas con el tamaño del dominio. Las líneas llenas corresponden a los ajustes realizados utilizando la expresión 3.5, que claramente tienen una buena concordancia a bajas temperaturas.

También podemos ver en la figura 3.3 que a una temperatura cercana a $6J_2$ (es decir $J_2/T \sim 0,15$) la dinámica cambia de régimen, en donde las barreras de energía son independientes del tamaño del dominio (las pendientes de las curvas para $J_2/T < 0,15$ son todas aproximadamente iguales). Los autores calcularon dicha temperatura de transición dinámica mediante el análisis de la energía libre de la expresión 3.5. Tomando el límite

termodinámico, obtuvieron la barrera de energía libre por unidad de longitud L :

$$f_B \equiv \lim_{L \rightarrow \infty} \frac{F_B}{L} = 4J_2 - T \ln \left[\frac{1 + e^{-8J_2/T}}{1 - e^{-4J_2/T}} \right]. \quad (3.7)$$

Denominemos T_{CR} a la temperatura para la cual $f_B \rightarrow 0$. Cuando esto ocurre F_B no depende más exponencialmente de L , y por lo tanto T_{CR} determina la transición dinámica entre un régimen con crecimiento de dominios logarítmico a bajas temperaturas y un régimen con la dinámica usual de crecimiento de dominios $t^{1/2}$ a temperaturas intermedias. Haciendo la ecuación 3.7 igual a cero se obtiene la siguiente temperatura dinámica:

$$T_{CR} = 7,1124 J_2$$

Recordemos que el cálculo de f_B fue realizado en el límite de frustración débil, y siendo que el resto de las aproximaciones utilizadas son irrelevantes en el límite termodinámico, podemos asegurar que este valor es exacto para $\delta \rightarrow \infty$.

Los autores determinaron además una relación entre esta transición dinámica y las transiciones interfaciales, por lo que denominaron a esta temperatura como *Temperatura Corner-Rounding*. En el contexto de Formas Cristalinas de Equilibrio (ECS) [32] se muestra que agregar interacciones NNN antiferromagnéticas al modelo de Ising introduce dos temperaturas de transición, T_{CR} y T_{ER} (temperatura de ‘vértices redondeados’ y temperatura de ‘bordes redondeados’ respectivamente). Para temperaturas menores a T_{CR} las ECS son cubos con bordes y vértices filosos. A temperaturas superiores a ésta, los vértices se vuelven redondeados pero parte de los bordes se mantienen filosos. Si se aumenta aún más la temperatura, el redondeado de los vértices crece, y por sobre T_{ER} las aristas se vuelven completamente redondeadas.

En su trabajo, Shore, Holzer y Sethna [11] proponen que la temperatura de transición dinámica asociada al cambio de régimen de crecimiento de dominios es la misma temperatura de transición T_{CR} encontrada en el contexto ECS. Además, la propuesta de Shore está fuertemente justificada ya que la expresión de f_B calculada en el límite $\delta \rightarrow \infty$ es igual a la expresión encontrada por Rottman [32].

Si tenemos en cuenta todos estos argumentos, podemos decir que la hipótesis inicial del crecimiento de dominios logarítmico a bajas temperaturas tiene fundamentos bastante

fuertes. Para completar el estudio los autores realizaron simulaciones numéricas del proceso de crecimiento de dominios. Las simulaciones fueron realizadas mediante un enfriado instantáneo del sistema, pasando de una temperatura infinita (es decir, comenzando con una configuración de espines aleatoria), a una temperatura final menor a la temperatura crítica $T < T_C$, y a partir de entonces calcularon el tamaño medio de dominio en función del tiempo medido en pasos Monte Carlo (donde un paso Monte Carlo corresponde a N intentos de actualización de un espín).

Existen diferentes maneras de medir $L(t)$. Los autores utilizan una de las formas más comunes, en la cual se usa el hecho de que L es proporcional al inverso del perímetro total del borde del dominio. Es posible demostrar que en términos energéticos esto lleva a

$$L(t) \equiv \frac{-E_0^{NN}}{(E^{NN} - E_0^{NN})}$$

donde E^{NN} es la energía asociada a la interacción sólo entre primeros vecinos, y $E_0^{NN} = -3NJ_1$ es la energía en el estado fundamental. Se normalizó $L(t)$ de forma que $L = 1$ para una configuración aleatoria.

En la figura 3.4 se muestran los resultados de $L(t)$ vs. t obtenidos en la referencia [11] para un sistema tridimensional y para diferentes valores de T/J_2 . Siempre trabajaron con $\delta = 6$, salvo para $T = 8J_2$ (donde $\delta = 50$). En los gráficos se indican además los tamaños de sistema utilizados.

Podemos ver que hay un período de relajación inicial pequeño de $L(t)$, luego del cual surgen dos comportamientos diferentes: para la temperatura $T = 8J_2$ y para el caso de $J_2 = 0$, los datos se ajustan a rectas, es decir el crecimiento es del tipo $t^{n_{ef}}$, donde el exponente n_{ef} está dado por la pendiente de estas rectas. Pero para $T = 2J_2, 3J_2$ y $4J_2$, se ve una considerable curvatura en los datos, sugiriendo el tipo de crecimiento logarítmico. Esta curvatura observada para $T < 8J_2$ (que es aproximadamente la temperatura T_{CR} calculada en el límite de frustración débil) no se evidencia en absoluto para temperaturas mayores a ésta. Todos estos resultados confirman entonces la existencia de una transición dinámica a la temperatura T_{CR} , donde el crecimiento de dominios pasa de tener una ley tipo logarítmica a bajas temperaturas, a una ley algebraica a altas temperaturas, siempre dentro

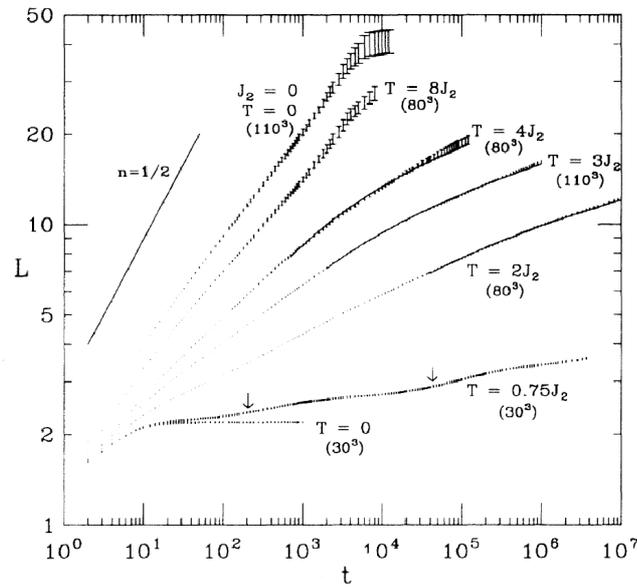


Figura 3.4: Tamaño medio de dominio $L(t)$ en función de t (medido en Paso de Monte Carlo), en escala log-log, para un sistema tridimensional. En cada conjunto de datos se indica el tamaño del sistema. Salvo para $T = 8J_2$ (donde $\delta = 50$), se consideró siempre $\delta = 6$.

de la fase ferromagnética:

$$L(t) = \begin{cases} \ln(t) & T < T_{CR} \\ t^{-n} & T_{CR} < T < T_C \end{cases} .$$

En 1995 Ras y Chakrabarti [33] confirmaron los resultados obtenidos por Shore, Holzer y Sethna [11] referidos a la dinámica lenta de crecimiento de dominios a bajas temperaturas. Ellos muestran además que a temperaturas por debajo de T_{CR} en realidad existen dos distancias características (como ocurre en el modelo de Ising con campo aleatorio (RFIM)): una, $L(t)$, que se puede asociar a la distancia promedio entre los vértices de los dominios, y otra, $R(t)$ asociada a la distancia entre interfaces ¹. Este estudio muestra además que a tiempos largos, tanto $L(t)$ como $R(t)$ crecen logarítmicamente, pero con diferentes

¹ $R(t)$ surge a partir de función de correlación del bulk $g(\vec{r}, t) \equiv \langle \phi(0, t)\phi(\vec{r}, t) \rangle$, y está definida como la distancia R al origen a la cual la correlación decae a la mitad de su valor en $r = 0$. Es decir $g(R(t), t) = g(0, t)/2$.

exponentes:

$$L(t) \sim \ln(t)$$

$$R(t) \sim (\ln(t))^{3/2}$$

Esto origina un régimen pre-asintótico, en el cual la función correlación es anisotrópica, ya que se cumple la ley de escala de la función correlación $g(\vec{r}) = g(r/L(t))$ en algunas direcciones (por ejemplo los ejes de la red) mientras que en otras direcciones (por ejemplo en las diagonales del cubo) no se cumple, e incluso depende de J_2 (es decir, es no-universal). A tiempos suficientemente largos domina una única distancia característica, R (cuando $t \rightarrow \infty$, $L(t)/R(t) \rightarrow 0$), con lo que se recupera la isotropía y la ley de escala dinámica es reestablecida.

En esta sección hemos mostrado los estudios previos del modelo, tanto en el caso bidimensional como en el tridimensional. Vimos que la termodinámica fue analizada sólo para el caso de la red cuadrada, mostrando tres diferentes estados fundamentales, dependiendo de las variables J_1 y J_2 , y que al menos una de las transiciones termodinámica es no-universal. En lo referente a la dinámica, los estudios exhaustivos de Shore y colaboradores [10, 11] muestran diferencias entre el comportamiento del modelo en la red cuadrada y cúbica, ya que sólo en esta última las barreras de energía crecen con el tamaño medio de dominios, generando una dinámica lenta con crecimiento de dominios logarítmico en el tiempo, propia de los sistemas pertenecientes a la clase 3 analizada en el contexto de crecimiento de dominios en el capítulo anterior. Por último, los estudios de Ras y colaboradores confirman la dinámica lenta observada por Shore, aunque determinan dos distancias características, ambas que crecen de forma logarítmica con diferentes exponentes.

3.3. Motivación

Nuestro interés en el modelo surge principalmente en el contexto del estudio de la dinámica de sistemas vítreos. En este sentido, el modelo SS es quizás el modelo más simple que puede brindarnos información cualitativa sobre los mecanismos responsables de la dinámica vítrea observada en muchos sistemas reales que presentan frustración a nivel microscópico pero sin la presencia de desorden. Los estudios previos de Shore y cola-

boradores [10, 11] muestran que la dinámica de crecimiento de dominios es drásticamente frenada por barreras de energía. Esto nos llevó inicialmente a hacernos la siguiente pregunta: ¿es el modelo SS con variables tipo Ising realmente un sistema vítreo? O en otras palabras, ¿es posible que el grado de frustración que presenta sea suficiente para incluir al modelo dentro de la universalidad de los vidrios?, ¿o sigue siendo la presencia de desorden indispensable para ello? Para responder a estas preguntas nos focalizamos en el estudio de la dinámica de envejecimiento y en la relación de Fluctuación-Disipación, ya que como vimos son herramientas que han mostrado ser efectivas para caracterizar a los sistemas vítreos. Además, experimentalmente se han encontrado comportamientos característicos de vidrios de espines en materiales frustrados geoméricamente pero con muy bajo nivel de desorden [34, 35] (menor al 5 %) tales como $Y_2Mo_2O_7$ (*YMO*) en la red piroclórica tridimensional, el $SSrCr_{8,6}Ga_{3,4}O_{19}$ (*SCGO*) en una doble capa de red de Kagome bidimensional y en un compuesto de jarosita $((H_3O)Fe_3(SO_4)_2(OH)_6)$ en una red de Kagome bidimensional. En otras palabras, hay suficientes estudios experimentales que confirmarían la existencia de comportamientos vítreos en materiales sin desorden.

Nuestro interés se incrementó en el año 2005, cuando Niidera y colaboradores [36] mostraron que una versión diluida del modelo con espines tipo Heisenberg reproduce al menos cualitativamente muchos de los comportamientos observados de vidrios de espín aislantes como el $Eu_xSr_{1-x}S$. Éste es un material donde se ha incluido el desorden mediante la dilución de los momentos magnéticos del europio con momentos no magnéticos del estroncio. Esto nos estimuló entonces a realizar un estudio de la dinámica del modelo SS, no sólo con variables de espín tipo Ising, sino también en una versión con espines tipo Heisenberg sin incluir desorden, a fin de poder comparar con el comportamiento del sistema donde el desorden está presente.

Si bien la motivación principal vino a través de la dinámica vítrea, también es posible utilizar este modelo en su versión Heisenberg para estudiar estadísticamente propiedades de ciertos materiales magnéticos, como por ejemplo algunos fosfatos de vanadio complejos (tales como $M(VO)_2(PO_4)_2$ con $M=Ca$ o Sr) o también los llamados espineles magnéticos. Estos materiales han mostrado ser especialmente importantes para el análisis del carácter de las interacciones magnéticas en sólidos [37, 38]. En los últimos años se han encon-

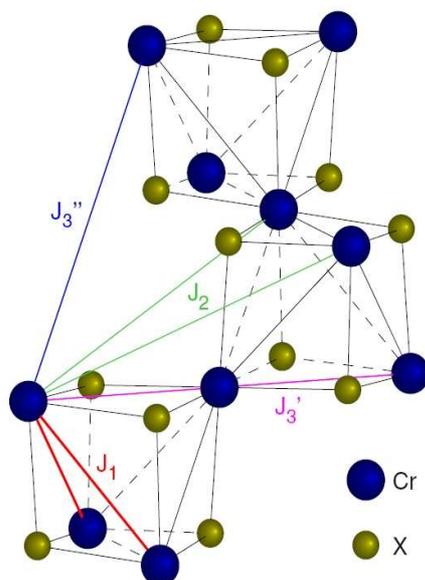


Figura 3.5: Sitios octaédricos de la red de espineles, mostrando las constantes de interacción entre primeros, segundos y terceros vecinos, de los iones de Cromo.

trado fenómenos exóticos en espineles de Cromo, lo que ha incrementado notablemente su estudio experimental y teórico [39-45]. Estos materiales pueden escribirse de la forma $A^{+2}Cr_2^{+3}X_4^{-2}$, donde A^{+2} es un catión bivalente no magnético (Zn, Cd o Hg), X^{-2} es un anión bivalente (O para los óxidos o S, Se para los calcógenos), y Cr^{+3} es un ion magnético. Los iones de Cromo forman una red piroclórica, que consiste en un tetraedro que comparte los vértices, como se muestra en la figura 3.5. La característica importante de estos materiales que atrajo nuestra atención, es que los iones de cromo interactúan entre primeros vecinos mediante intercambio directo Cr-Cr, pero las interacciones de super-intercambio o super-super-intercambio entre éstos y entre vecinos más lejanos (como Cr-X-X-Cr o Cr-X-A-X-Cr) se hacen importantes. Dependiendo de los signos de estas interacciones y de sus intensidades, la competencia que surge entre ellas puede generar complejas configuraciones en su estado fundamental, y puede ser responsable de los fenómenos encontrados recientemente.

En los espineles calcógenos, el parámetro de red es suficientemente grande como para que la interacción AFM directa sea muy débil. En estas condiciones la interacción entre pri-

meros vecinos se vuelve ferromagnética mediante el superintercambio y las interacciones entre vecinos más lejanos cobran especial relevancia. En estos materiales el estado fundamental es ferromagnético, excepto para el HgCr_2S_4 que exhibe un estado antiferromagnético complejo [42]. Cálculos de estructuras de bandas en estos materiales [44] muestran que las interacciones a segundos vecinos son en general muy débiles (ya que hay hibridaciones de diferentes signos que se cancelan entre sí), mientras que las interacciones entre terceros vecinos son realmente de intensidades importantes. Si bien éstas son motivaciones potencialmente importantes, en esta tesis nuestro principal interés es estudiar las propiedades vítreas del modelo.

En los próximos tres capítulos presentaremos los resultados originales de esta primera parte de la tesis.

La Termodinámica del Modelo Shore-Sethna

Si bien Shore, Holzer y Sethna [10, 11] por un lado y Ras y Chapuraban [33] por otro realizaron estudios exhaustivos de la dinámica de crecimiento de dominios del modelo, no hay resultados sobre las propiedades de equilibrio en la red tridimensional. Interesados en analizar la formación de patrones y las diferentes fases del modelo, en este capítulo mostraremos los resultados originales obtenidos en el estudio de sus propiedades de equilibrio, concentrándonos en la obtención de su diagrama de fases [2].

El capítulo está organizado de la siguiente forma: comenzaremos con el estudio del estado fundamental en función de δ ; luego mostraremos la transición orden-desorden, la transición entre las dos fases ordenadas, la existencia de estados meta-estables, y por último el diagrama de fases completo. Finalmente presentaremos las conclusiones que podemos obtener de los resultados obtenidos.

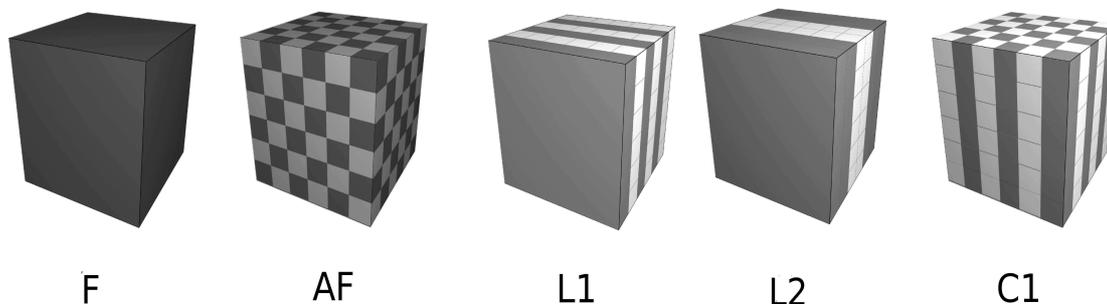


Figura 4.1: Cinco posibles estados fundamentales del sistema.

4.1. Estados Fundamentales

Analicemos en primera instancia el estado fundamental del modelo. Como ya vimos, este estudio resultó de interés para otros autores [27, 29, 31], pero sólo fue realizado en el caso bidimensional y en el modelo ANNI (Axial Next-Neighbour Ising) ¹.

Para determinar cuáles son las configuraciones de menor energía para diferentes valores de δ a temperatura nula, calculamos la energía interna del sistema para diferentes configuraciones. En la figura 4.1 se muestran esquemáticamente algunas configuraciones para las cuales calculamos la energía. Los diferentes casos corresponden a:

- F: Orden ferromagnético.
- AF: Planos antiferromagnéticos (tipo tablero de ajedrez) alternando el signo de los espines entre plano y plano.
- L1: Láminas ferromagnéticas de ancho $h = 1$, que alternan el signo del espín a lo largo de su dirección perpendicular.
- L2: Láminas ferromagnéticas de ancho $h = 2$.

¹El modelo surgió para explicar estructuras magnéticas espacialmente moduladas observadas en erbio y otras tierras raras. Consiste en un modelo Ising donde se incluyen interacciones a segundos vecinos sólo en una dirección de la red.

- C1: Columnas con espines de igual signo, formando tablero de ajedrez en los planos perpendiculares a las columnas.

Calculamos para cada espín del sistema la energía de sus interacciones ferromagnéticas a primeros vecinos más las antiferromagnéticas a segundos vecinos. En todos los casos que se muestran, cada espín del sistema tiene la misma energía E_i que los otros, es decir todos son equivalentes con respecto a sus interacciones (esto vale incluso para los espines del *borde* ya que consideramos condiciones de contorno periódicas). Por lo tanto la energía del sistema completo es $E = NE_i/2$. Veamos en detalle el cálculo de la energía por espín para la configuración C1:

$$E = E/N = \frac{1}{2}(-J_1(-4 + 2) + J_2(+4 - 8)), \quad (4.1)$$

$$E/J_2 = +\delta - 2, \quad (4.2)$$

y para las diferentes configuraciones analizadas tenemos que:

- F: $E/J_2 = -3\delta + 6$
- AF: $E/J_2 = +3\delta + 6$
- L1: $E/J_2 = -\delta - 2$
- L2: $E/J_2 = -2\delta + 2$

En la figura 4.2 se muestra la energía por espín en función del parámetro δ para las diferentes configuraciones. Podemos ver que para $0 < \delta < 4$ la configuración con menor energía es la de láminas de ancho $h = 1$, pero para $\delta > 4$ la configuración de menor energía es la ferromagnética. Podemos concluir entonces que para valores positivos de δ (el único caso que nos interesa) hay sólo dos estados fundamentales posibles: láminas de ancho $h = 1$ (L1) para $0 < \delta < 4$ y ferromagnético (F) para $\delta > \delta_c = 4$.

4.2. Transiciones de fase

Para determinar las transiciones de fase, estudiamos algunas cantidades termodinámicas a temperatura finita mediante simulaciones numéricas de Monte Carlo, utilizando dinámi-

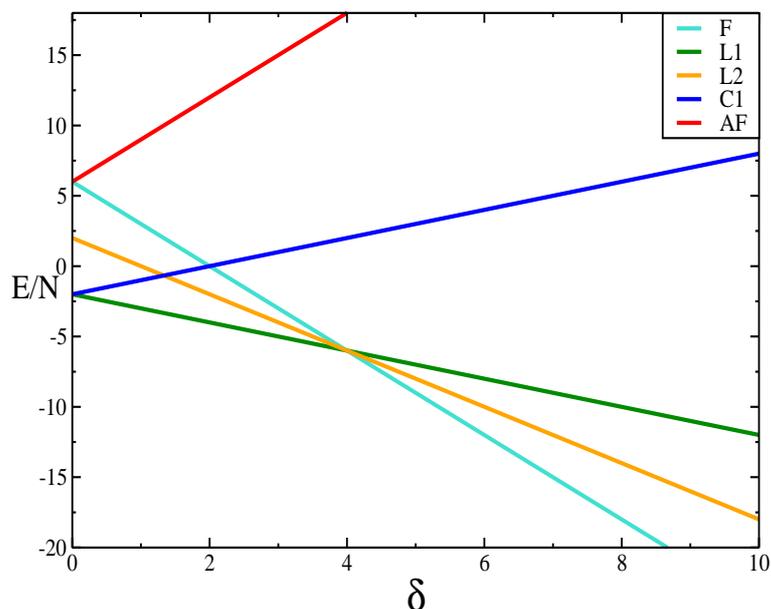


Figura 4.2: Energía por espín vs. δ para las cinco configuraciones que se muestran en 4.1.

ca de baño térmico, y condiciones de contorno periódicas. En el apéndice A se presenta una discusión detallada de este método numérico.

4.2.1. Transición orden-desorden

Para obtener las transiciones orden-desorden calculamos el calor específico por espín C_v y el parámetro de orden en función de la temperatura, para diferentes valores de δ , tanto en la fase de láminas como en la fase ferromagnética.

$$C_v = \frac{1}{N} \frac{k_B}{T^2} [\langle H^2 \rangle - \langle H \rangle^2] = \frac{k_B}{NT^2} \langle (\langle H \rangle - H)^2 \rangle, \quad (4.3)$$

$$M = \frac{1}{N} \sum_i \langle s_i \rangle. \quad (4.4)$$

Como en la fase de láminas la magnetización neta es nula, utilizamos un parámetro de orden orientacional O introducido por Booth [46] en el contexto de láminas ultra-delgadas, que toma el valor $O = 1$ cuando las fajas o láminas están completamente orientadas a lo largo de un eje, y cae a cero cuando pierde este orden orientacional (es decir en fases paramagnéticas, tetragonales, ferromagnéticas, etc.). Para determinar O calculamos las si-

güentes cantidades,

$$\begin{aligned} O_{xy} &= \left\langle \left| \frac{n_x - n_y}{n_x + n_y} \right| \right\rangle, \\ O_{xz} &= \left\langle \left| \frac{n_x - n_z}{n_x + n_z} \right| \right\rangle, \\ O_{yz} &= \left\langle \left| \frac{n_y - n_z}{n_y + n_z} \right| \right\rangle, \end{aligned} \quad (4.5)$$

donde n_α ($\alpha = x, y$ o z) es el número de pares de espines próximos (primeros vecinos) en la dirección α que están antialineados:

$$n_x = \sum_{x,y,z} (1 - \text{signo}[s(x, y, z)s(x + 1, y, z)]) \quad (4.6)$$

$$n_y = \sum_{x,y,z} (1 - \text{signo}[s(x, y, z)s(x, y + 1, z)]) \quad (4.7)$$

$$n_z = \sum_{x,y,z} (1 - \text{signo}[s(x, y, z)s(x, y, z + 1)]) . \quad (4.8)$$

$$(4.9)$$

Si el sistema se ordena en láminas, dos de estas cantidades serán próximas a uno y la otra igual a cero. Usamos como medida del orden el mayor de los tres valores calculados,

$$O = \max_{x,y,z} \{(O_{xy}, O_{xz}, O_{yz})\} \quad (4.10)$$

En todas estas definiciones, el símbolo $\langle \dots \rangle$ representa un promedio térmico sobre diferentes realizaciones y la constante de Boltzman toma el valor $k_B = 1$ (esto será así a lo largo de toda la tesis).

En las figuras 4.3 y 4.4 se muestran los resultados obtenidos para $\delta = 6$ y $\delta = 2$ y diferentes tamaños del sistema. Puede verse que el C_v vs. T desarrolla un pico a una temperatura que coincide con el valor para el cual el parámetro de orden cae abruptamente (ya sea M en la fase ferromagnética como O en la fase de láminas). Tanto con el valor más alto del calor específico como con el punto de inflexión en la caída del parámetro de orden podemos determinar las temperaturas críticas para cada δ .

Nos interesa ahora caracterizar el tipo de transición termodinámica. Una transición de primer orden está caracterizada por discontinuidades en las primeras derivadas de la energía libre, como por ejemplo en la energía interna (generando calor latente) o el parámetro de

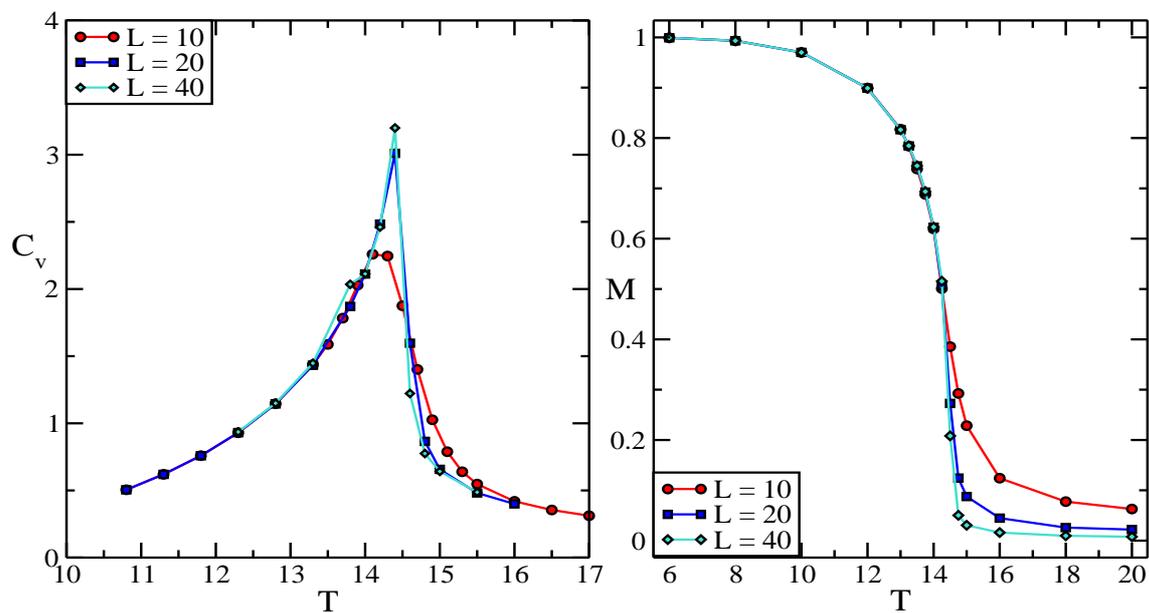


Figura 4.3: Calor específico y magnetización en función de la temperatura para $\delta = 6$ y diferentes tamaños del sistema.

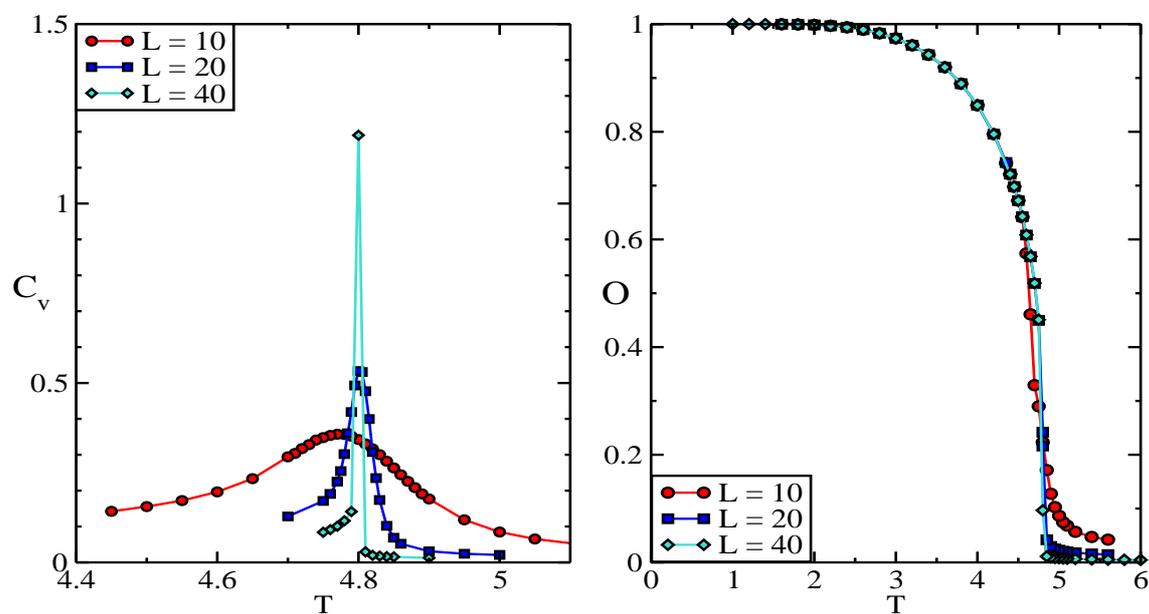


Figura 4.4: Calor específico y parámetro de orden O en función de la temperatura para $\delta = 2$ y diferentes tamaños del sistema.

orden. Esto se evidencia en una singularidad en las funciones calor específico C_v y susceptibilidad χ en la temperatura crítica. Una transición continua o de segundo orden en cambio, no presenta discontinuidades en las primeras derivadas de la energía libre, aunque puede presentar una divergencia en lugar de discontinuidad. Estas divergencias están relacionadas con el hecho de que la longitud de correlación diverge a la temperatura crítica. Por ello, en una transición continua, aunque la susceptibilidad diverge, el calor específico puede o no diverger.

En sistemas finitos estas divergencias no ocurren, y en los dos tipos de transiciones el comportamiento termodinámico es suave al atravesar la transición de fase. Uno observa, en cambio, picos finitos en el calor específico y la susceptibilidad cerca del punto de transición. Son tres los efectos que surgen por tamaño finito: un ensanchamiento de estos picos a tamaños menores, un crecimiento en la altura del pico al aumentar el tamaño del sistema, y un corrimiento en la llamada pseudo-temperatura crítica $T_c(L)$ en la cual se observa el máximo.

Los efectos de tamaño finito pueden entonces generar dificultades a la hora de determinar el orden de una transición, debido a la similitud en el comportamiento de las derivadas de la energía libre en las transiciones de primer y segundo orden y resulta útil en estos casos recurrir a otras cantidades medibles numéricamente y que brinden información para la caracterización del tipo de transición termodinámica. El problema puede tratarse fenomenológicamente utilizando *Teoría de Fluctuaciones Termodinámicas* y *Teoría de Grupo de Renormalización*, mediante el análisis de la Función de Distribución de la energía y del parámetro de orden, $P_L(E)$ y $P_L(M)$ respectivamente, sus momentos y sus cumulantes de mayor orden. En particular nos concentraremos en el análisis del cumulante de cuarto orden de la energía, al cual denotaremos V_L y está definido como:

$$V_L = 1 - \frac{\langle E^4 \rangle_L}{3\langle E^2 \rangle_L^2}, \quad (4.11)$$

y del cumulante de cuarto orden del parámetro de orden, U_L , que tiene la forma:

$$U_L = 1 - \frac{\langle M^4 \rangle_L}{3\langle M^2 \rangle_L^2}. \quad (4.12)$$

A pesar de que estos cumulantes no poseen un obvio significado experimental, son

cantidades de fácil cálculo numérico, y cada uno tiene un comportamiento característico cuando se trata de una transición de primer o de segundo orden [47, 48, 49].

El cumulante de la energía V_L tiende a $2/3$ cuando $T \rightarrow 0$ y $T \rightarrow \infty$ (cuando el tamaño del sistema diverge, $L \rightarrow \infty$) y desarrolla un mínimo a una temperatura de transición efectiva ($T_{ef}(L)$). En una transición de primer orden esta temperatura efectiva se desplaza asintóticamente hacia la temperatura crítica a medida que aumenta el tamaño del sistema, manteniendo el mínimo en el cumulante, de forma que uno puede obtener la temperatura crítica extrapolando T_{ef} para $L \rightarrow \infty$. En una transición de segundo orden en cambio, el mínimo del cumulante desaparece rápidamente al incrementar el tamaño del sistema.

El cumulante del parámetro de orden U_L tiene un comportamiento característico en una transición de segundo orden: $U_L \rightarrow 0$ para $T \rightarrow \infty$ y $U_L \rightarrow 2/3$ para $T \rightarrow 0$, siempre en el límite termodinámico $L \rightarrow \infty$. Además, las curvas de U_L en función de la temperatura cruzan en un único punto U^* que es independiente del tamaño del sistema. La temperatura correspondiente a ese cruce es la temperatura crítica. En cambio, para una transición de primer orden estos cruces de las curvas para diferentes tamaños del sistema no se observan, y el cumulante desarrolla un mínimo a la temperatura de transición efectiva (dependiente del tamaño de la muestra).

Para caracterizar entonces las transiciones orden-desorden del modelo calculamos los cumulantes de cuarto orden de la energía y el parámetro de orden, cuyos resultados se muestran en las figuras 4.5 y 4.6.

Podemos observar que en el cumulante de la energía para $\delta = 6$ el mínimo desaparece rápidamente al aumentar el tamaño del sistema, sugiriendo que la transición es de segundo orden, y podemos confirmarlo en la figura 4.6 con el cumulante del parámetro de orden, ya que las curvas para diferentes tamaños del sistema se cruzan en un mismo punto. En cambio, para $\delta = 2$, a medida que aumenta el tamaño del sistema el mínimo del cumulante de la energía decrece más lentamente que para $\delta = 6$, lo que podría estar sugiriendo que se trata de una transición de primer orden. Esto lo confirmamos mediante el histograma de energía, para temperaturas muy cercanas a la temperatura de transición, como podemos ver en el gráfico 4.7. En este gráfico mostramos la distribución de probabilidad de la energía por espín $P(E/N)$ de un sistema de tamaño lineal $L = 20$, para un total de 5×10^6 medidas

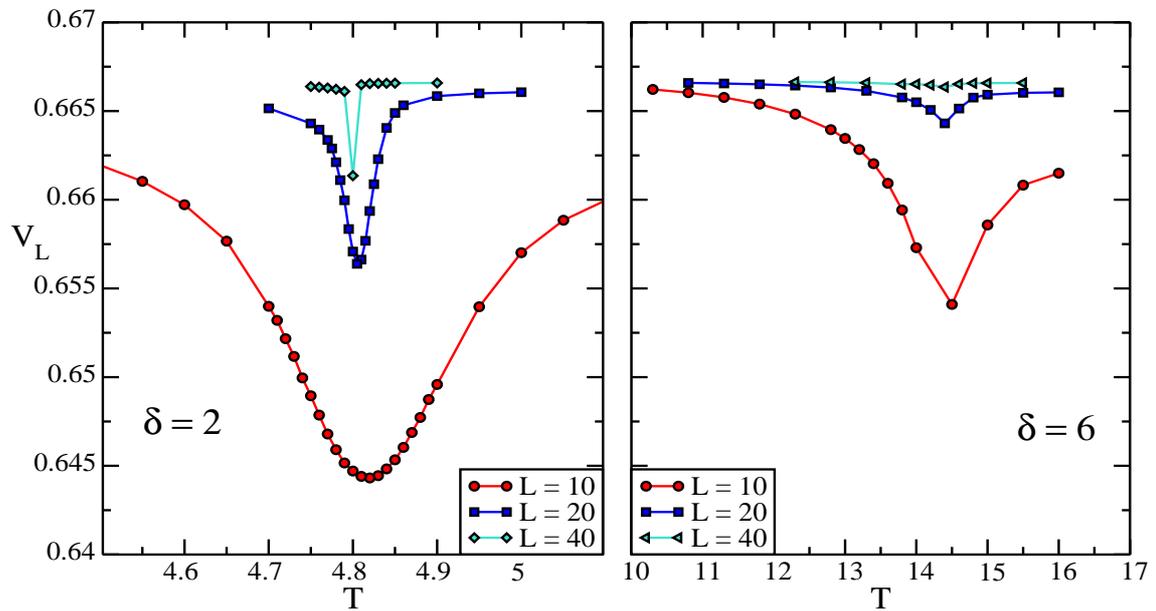


Figura 4.5: Cumulante de cuarto orden de la energía en función de la temperatura para $\delta = 2$ y $\delta = 6$, y diferentes tamaños del sistema.

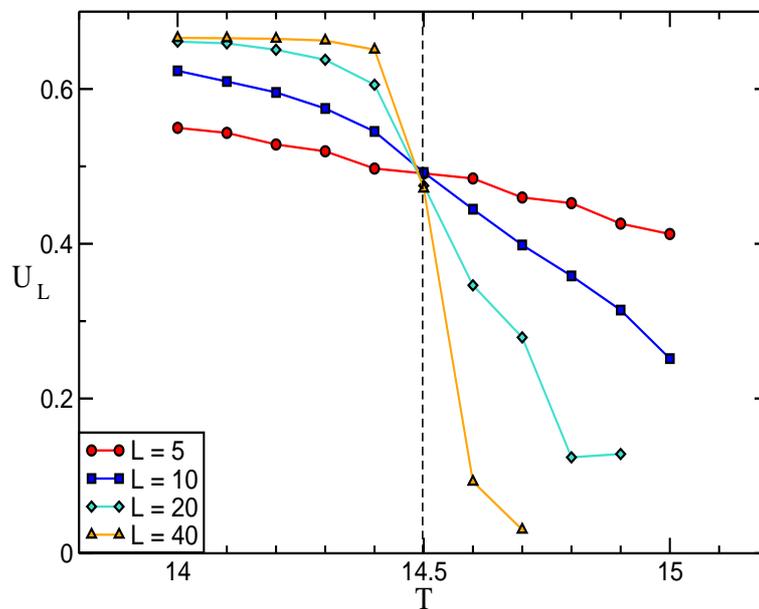


Figura 4.6: Cumulante de cuarto orden de la magnetización en función de la temperatura para $\delta = 6$ y diferentes tamaños del sistema.

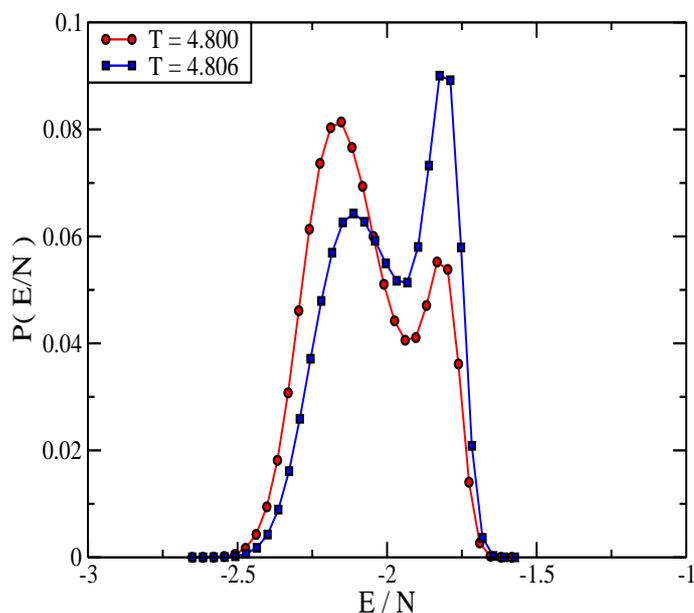


Figura 4.7: Histograma de la energía por espín para $\delta = 2$ y dos temperaturas ($T = 4,800$ y $T = 4,806$), en un sistema de tamaño $L = 20$. Los histogramas se calcularon con un total de 5×10^6 valores de energía.

de energía obtenidas en una única simulación, y repetido para dos temperaturas diferentes. Podemos ver el doble pico característico de las transiciones de primer orden, que muestra el cambio en la estabilidad entre las dos fases al atravesar la temperatura crítica. Para asegurarnos de que no se trata de un efecto de tamaño finito, calculamos estos histogramas aumentando el tamaño del sistema. En el gráfico 4.8 se muestran los histogramas de la energía para $L = 40$ y temperaturas $T = 4,800$ y $T = 4,801$. También en estos casos los histogramas se calcularon con un total de 5×10^6 valores de energía. Podemos ver en la figura que el mínimo entre los dos picos del histograma de energía se hace más pronunciado que en la figura 4.7, lo cual es una característica de las transiciones de primer orden. Hicimos también una inspección de la variación de la energía en el tiempo (en una única simulación), para estar seguros de que los dobles picos de los histogramas no se deban a un estado meta-estable. En la figura 4.9 graficamos la energía en función del tiempo (medido en PMC) para $\delta = 2$ y dos temperaturas, $T = 4,800$ y $T = 4,801$, en la que podemos ver que la energía del sistema alterna entre dos valores (esto ocurre para ambas temperaturas). Estos *saltos* entre los dos valores nos indican que la energía libre

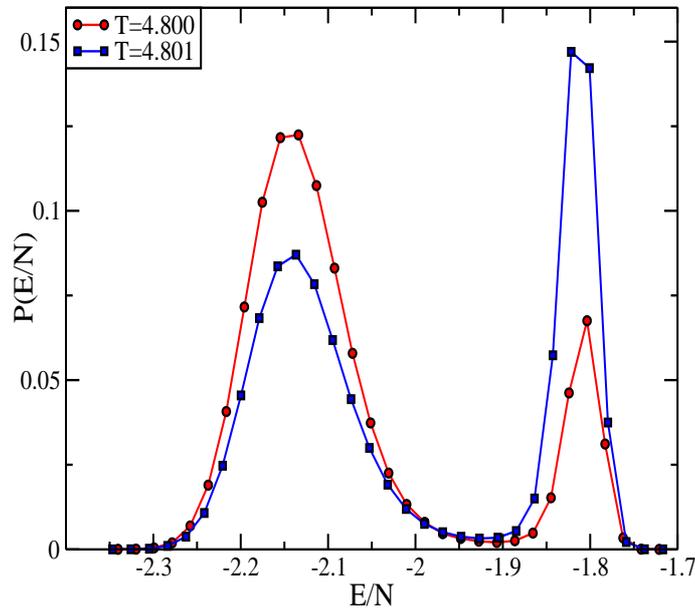


Figura 4.8: Histograma de la energía por espín para $\delta = 2$ y dos temperaturas ($T = 4,800$ y $T = 4,801$), en un sistema de tamaño $L = 40$. Los histogramas se calcularon con un total de 5×10^6 valores de energía.

del sistema tiene dos mínimos, haciendo que el sistema pase de uno a otro. Esta es una indicación más de que se trata de una transición de primer orden.

Queda determinada entonces T_C mediante el punto de cruce de las curvas para $\delta = 6$ como $T_C = 14,5 \pm 0,1$, y para $\delta = 2$ mediante el histograma de energía en $T_C = 4,801 \pm 0,002$. La determinación de las temperaturas críticas para otros valores de δ se realizó mediante el calor específico (se tomó como T_C la temperatura para la cual el calor específico tiene su mayor valor) para un tamaño fijo del sistema $L = 40$.

4.2.2. Transición Láminas-Ferromagneto

Para realizar el estudio de la transición entre las dos fases ordenadas (láminas y ferromagnética), evaluamos numéricamente la energía libre por espín del sistema, variando δ a temperatura fija $T^* < T_C$

$$f = U - T_s = U - T \int_0^T \frac{C_v(T')}{T'} dT' \quad (4.13)$$

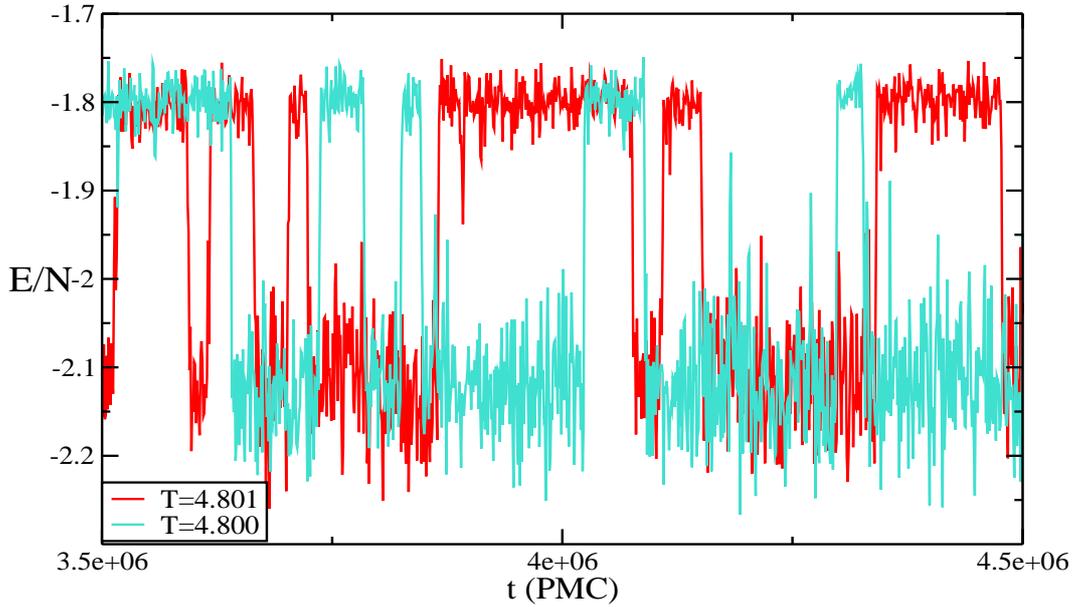


Figura 4.9: Energía en función del tiempo, medido en PMC, para un sistema de tamaño $L = 40$ y dos temperaturas, $T = 4,800$ y $T = 4,801$.

donde $U = \langle E \rangle$ es la energía interna, y C_v es el calor específico.

Para el cálculo se inició el sistema en una configuración de láminas para un δ chico, se aumentó la temperatura hasta la T^* (siempre dentro de la fase de láminas). Para cada valor de δ se calculó la energía del sistema y el calor específico en función de la temperatura para poder realizar numéricamente la integral de la ecuación (4.13). De esta forma obtuvimos la energía libre f en función de δ . El mismo procedimiento se hizo comenzando con una configuración ferromagnética para un valor grande de δ y luego de elevar la temperatura hasta T^* se disminuyó δ calculando nuevamente la energía y la integral de la ecuación.

En la figura 4.10 puede verse claramente la discontinuidad en la pendiente de la energía libre, indicando que se trata de una transición de primer orden, y que ocurre para la temperatura y δ correspondientes al punto de intersección de las dos ramas de la energía libre. Al comparar los valores de los dos términos de f , notamos que el término entrópico es despreciable frente al de la energía interna, ya que estamos trabajando a bajas temperaturas. También podemos inferir del gráfico que ambas fases tienen como estado meta-estable a la otra fase ordenada.

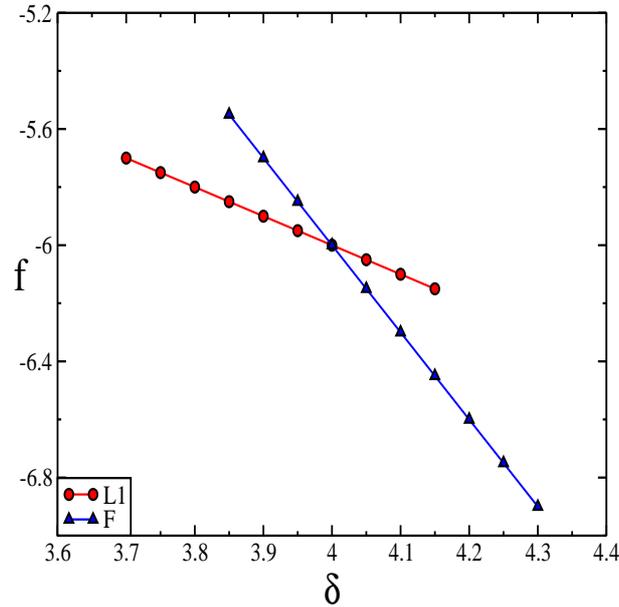


Figura 4.10: Energía Libre f de las fases de Láminas L1 (círculos) y ferromagnética F (triángulos) vs. δ para $T = 2$ en un sistema de tamaño $L = 40$.

4.3. Estados meta-estables

Una posible causa de la dinámica lenta del sistema a bajas temperaturas es la existencia de estados meta-estables. Nos referimos con ello a configuraciones del sistema que, si bien no son termodinámicamente estables, corresponden a mínimos locales de la energía libre. Dependiendo de las condiciones de enfriamiento del sistema, es posible que el mismo quede atrapado en estos mínimos locales por tiempos grandes. En particular, el hecho de que existan transiciones de primer orden confirman la existencia de meta-estabilidad (coexistencia de fases).

Para obtener información sobre la existencia de diferentes estados meta-estables, calculamos la magnetización *staggered* para diferentes configuraciones del sistema, definida como:

$$M_{ST} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N s_i^0 s_i, \quad (4.14)$$

donde s_i^0 es el valor de espín i -ésimo en un determinado estado.

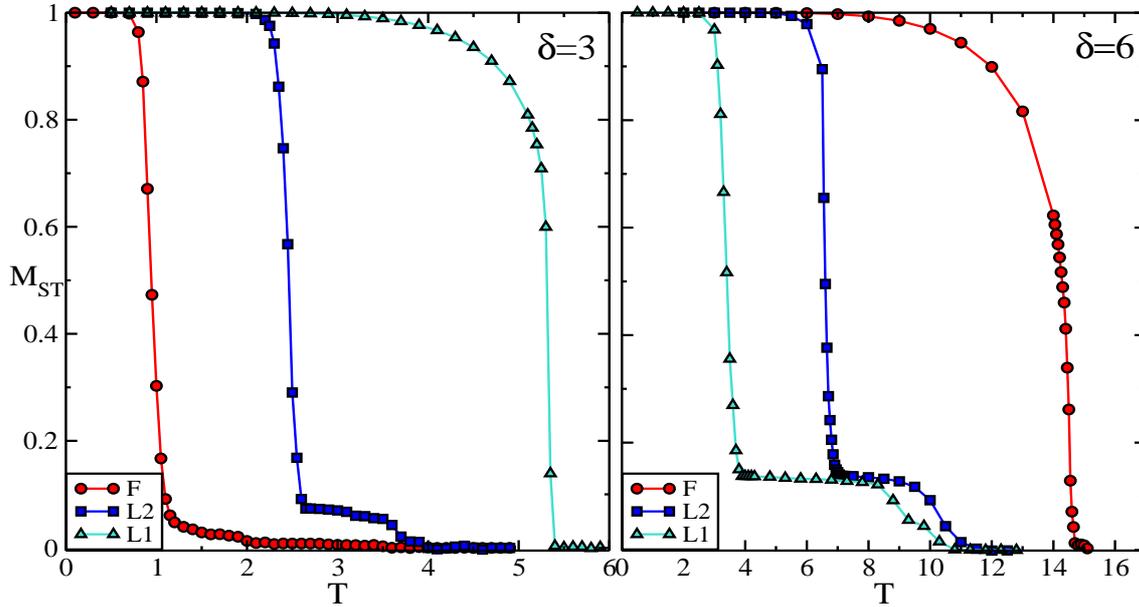


Figura 4.11: Magnetización *staggered* vs. temperatura para $\delta = 3$ y $\delta = 6$, y tres diferentes condiciones iniciales: ferromagnética (F), láminas de ancho $h = 1$ (L1) y láminas de ancho $h = 2$ (L2).

Si preparamos el sistema en una configuración inicial s_i^0 y comenzamos a aumentar la temperatura, la magnetización *staggered* definida así nos indica cuán parecida es la configuración s_i a la que tenía inicialmente. Las regiones en las cuales el parámetro M_{ST} es diferente de cero, indican que esa configuración es un estado meta-estable.

En la figura 4.11 se muestra M_{ST} en función de la temperatura, para $\delta = 3$ y $\delta = 6$, y tres configuraciones iniciales diferentes: ferromagnética (F), láminas de ancho $h = 2$ (L2) y láminas de ancho $h = 1$ (L1). Para $\delta = 3$ el estado fundamental es L1, y podemos observar que la estructura ferromagnética es un estado meta-estable hasta $T \sim 1$ mientras que la configuración de láminas L2 es meta-estable hasta $T \sim 2,5$. En $T \sim 5,4$ se observa la transición de la fase L1 a la fase paramagnética. El mismo análisis podemos hacer para $\delta = 6$, donde L1 es meta-estable hasta $T \sim 4$, L2 hasta $T \sim 7$ y en $T \sim 14,5$ se observa la transición termodinámica de la fase ferromagnética a la paramagnética. Además podemos observar que cuando se desestabilizan estas estructuras, las curvas desarrollan un *hombro* antes de decaer a cero, en donde M_{ST} se mantiene constante pero con un valor bajo (alrededor de $M_{ST} \approx 0,1$). Suponemos que esto se debe a la coexistencia con otras estructuras

laminares (que también son meta-estables) y que el sistema adopta a medida que evoluciona hacia la configuración estable (es decir la correspondiente a su fase termodinámica). Estudios similares se llevaron a cabo con configuraciones de láminas de ancho $h = 3$ y $h = 4$ que no presentamos en detalle, pero que demostraron ser también meta-estables (en el diagrama de fase se mostrarán los bordes de estabilidad de todas estas configuraciones). En otras palabras, es de esperar la existencia de muchas otras estructuras meta-estables, además de las estudiadas en esta sección. De este estudio concluimos que existe una proliferación de estados meta-estables a temperaturas suficientemente bajas. Esto nos lleva a pensar que quizá sean estas meta-estabilidades las que puedan explicar la dinámica lenta observada en el proceso de crecimiento de dominios.

4.4. Diagrama de fases

Como conclusión del estudio de equilibrio del modelo, presentamos en la figura 4.12 el diagrama de fases completo, incluyendo las líneas de meta-estabilidad.

El sistema se ordena en sólo dos posibles fases termodinámicas, dependiendo del valor de δ :

- Para $0 < \delta < 4$ (frustración alta) la configuración del estado fundamental es de láminas de ancho 1 paralelas a los ejes de la red. Como hay tres direcciones para ordenar las fajas, y los espines tienen dos direcciones posibles, este estado fundamental tiene degeneración 6.
- Para $\delta > 4$ (cuando la frustración se hace más débil) el sistema se ordena ferromagnéticamente, y este estado fundamental tiene degeneración 2.

Los círculos rojos en el diagrama representan la transición de segundo orden entre la fase ferromagnética y la fase paramagnética y los cuadrados azules y grises representan las transiciones de primer orden de la fase de láminas a las fases paramagnética y ferromagnética, respectivamente. Queda de esta forma definido un punto tricrítico en $\delta = 4$ y $T = 4,9 \pm 0,1$. Cabe la posibilidad de que además exista un punto triple para $2 < \delta < 4$ que

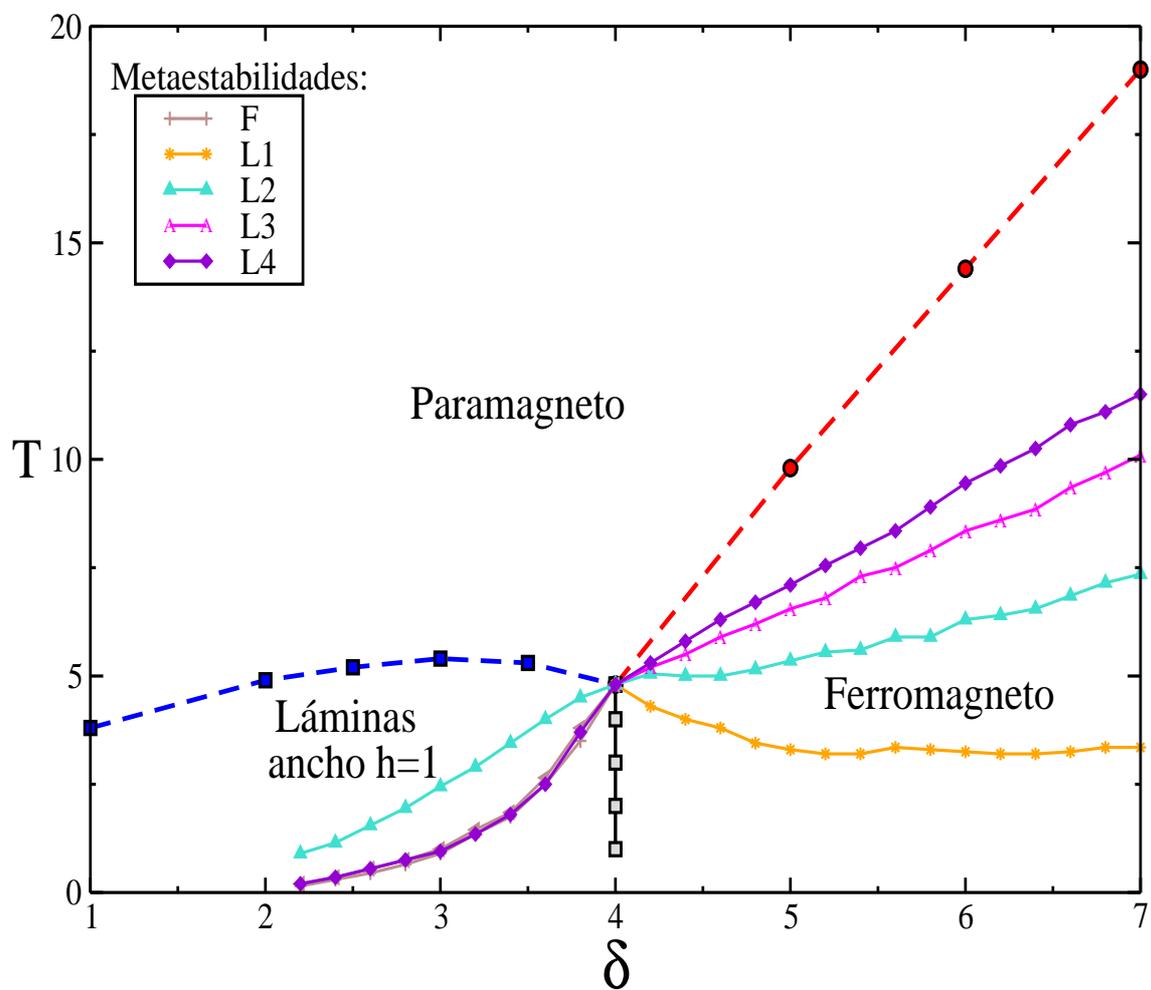


Figura 4.12: Diagrama de fases δ vs. T para un sistema de tamaño $N = 40^3$. Las fases termodinámicas son: láminas de ancho $h = 1$ ($L1$), ferromagnética (F) y paramagnética (P). Los círculos rojos indican la línea de transición de segundo orden entre la fase ferromagnética y paramagnética, obtenida de los picos del calor específico. Los cuadrados grises y azules indican las líneas de transición de primer orden obtenidas mediante la energía libre para la transición entre las dos fases ordenadas, y mediante el calor específico e histogramas de energía para la transición láminas-paramagneto. Se muestran además las líneas de meta-estabilidad de diferentes configuraciones, obtenidas mediante la magnetización *staggered*.

marque un cambio en el orden de la transición láminas-paramagneto. Sin embargo este estudio requiere de un esfuerzo numérico muy grande y está fuera de nuestro objetivo de estudio. Se pueden ver además las líneas de meta-estabilidad de diferentes configuraciones, las cuales nos muestran que hay una gran cantidad de estados meta-estables.

Vale la pena destacar el tamaño del esfuerzo numérico que estos estudios requirieron, ya que como veremos más adelante, estos sistemas tienen una lenta dinámica y fueron necesarios grandes tiempos de simulación para la determinación del diagrama.

4.5. Discusión

En este capítulo hemos analizado las propiedades de equilibrio del modelo SS mediante simulaciones de Monte Carlo. La competencia entre las interacciones ferromagnéticas y antiferromagnéticas genera la formación de estructuras tipo láminas a alta frustración ($\delta < 4$) pero al aumentar la interacción ferromagnética, ésta domina y el estado fundamental se vuelve ferromagnético ($\delta > 4$). El estudio del diagrama de fases muestra que al aumentar la temperatura el sistema sufre una transición de segundo orden entre las fases ferromagnética-paramagnética, mientras que la transición entre las fases láminas-paramagnética y la transición entre las fases ordenadas es de primer orden.

Para estos estudios fue necesario el cálculo de calores específicos, cumulantes de energía, de parámetros de orden, y energías libres. Se observa que en ambas fases ordenadas existe una proliferación de estados meta-estables. Probablemente sean estas meta-estabilidades las responsables de la dinámica lenta observada por Shore y colaboradores [10, 11].

Es importante notar cómo la inclusión de interacciones antiferromagnéticas a segundos vecinos no sólo complejiza la dinámica de crecimiento de dominos, como se mostrara en [10, 11, 32], sino que enriquece el diagrama de fases termodinámico e induce la aparición de estados meta-estables y transiciones de primer orden, fenómenos todos ausentes en el caso $J_2 = 0$ (modelo de Ising con interacciones ferromagnéticas entre primeros vecinos). Como la inclusión de interacciones competitivas ha enriquecido el diagrama de fases

del modelo y también su dinámica de crecimiento de dominios, en el próximo capítulo analizaremos si esta complejización se manifiesta en otros aspectos de su dinámica.

5

Dinámica de Relajación en el Modelo Shore-Sethna

Sabemos por los estudios de Shore y colaboradores que la dinámica del modelo en la fase ferromagnética es drásticamente frenada por barreras de energía, dando lugar a una ley de crecimiento de dominios logarítmica en el tiempo (clase 3). Sin embargo, esta dinámica lenta no se observa a temperaturas mayores, donde se recupera el crecimiento de dominios algebraico. Vimos en el capítulo anterior que a bajas temperaturas, la inclusión de interacciones antiferromagnéticas da lugar a la aparición de estructuras meta-estables. En este capítulo mostraremos los resultados originales del estudio de la dinámica del modelo, a fin de determinar si se manifiestan otros comportamientos vítreos a bajas temperaturas [3]. También nos interesa ver si es posible detectar diferencias en la dinámica a bajas y altas temperaturas, y con ello determinar la temperatura de transición dinámica. Estudiaremos entonces la dinámica de envejecimiento y la Relación de Fluctuación-Disipación en sus dos fases ordenadas.

5.1. Dinámica de Envejecimiento

Para estudiar la dinámica de envejecimiento del modelo utilizamos nuevamente el algoritmo de Monte Carlo, conforme se discute en el Apéndice A. Simulamos inicialmente un enfriado instantáneo al sistema desde una temperatura $T > T_C$ (vamos a asumir el enfriado desde temperatura infinita, es decir con una configuración inicial aleatoria) hasta una temperatura $T < T_C$, dentro de la fase ordenada. El sistema entonces evoluciona un tiempo de espera t_w , y desde entonces se mide la auto-correlación a dos tiempos

$$C(t, t_w) = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \langle s_i(t_w + t) s_i(t_w) \rangle \quad (5.1)$$

donde los corchetes indican promedio térmico. Notemos una vez más que aquí t se refiere al número de pasos Monte Carlo medidos a partir del tiempo t_w .

En la figura 5.1 se muestran los resultados de la función de auto-correlación $C(t, t_w)$ en función del tiempo t , para $\delta = 6$, dos temperaturas y diferentes tiempos de espera $t_w = 3^k$ ($k = 4, \dots, 9$, de abajo hacia arriba). En el gráfico superior el sistema es de tamaño $L = 200$ y $T = 12$, mientras que el gráfico inferior corresponde a $L = 120$ y $T = 3$. El tamaño del sistema utilizado para las diferentes temperaturas finales varía entre $120 < L < 200$, ya que a temperaturas menores los tiempos de cálculo se hacen demasiado largos, por lo que es necesario utilizar sistemas de menor tamaño. En ambos casos se observa una fuerte dependencia con la historia de la muestra, y la formación de un plató, que confirma la estructura aditiva de la auto-correlación. Para analizar la forma de escala, en la figura 5.2 se muestra $C(t, t_w)$ reescalada de la forma t/t_w , para dos temperaturas, $T = 7$ y $T = 3$. Podemos ver que en el caso de $T = 7$ se obtiene un buen colapso de las curvas confirmando que el sistema sufre en esta región de la fase ferromagnética *envejecimiento simple*. Sin embargo a $T = 3$ las curvas no colapsan, y decaen más lentamente a medida que el tiempo de espera es mayor (el t_w mayor corresponde a la curva superior). Este decaimiento más lento a medida que t_w crece es lo que comúnmente se llama *súper-envejecimiento* [21], e indica que $L(t)$ crece más lento que una ley de potencias. Sabemos que para los valores de parámetros $\delta = 6$ y $T = 3$, la fase ferromagnética tiene un crecimiento de dominios

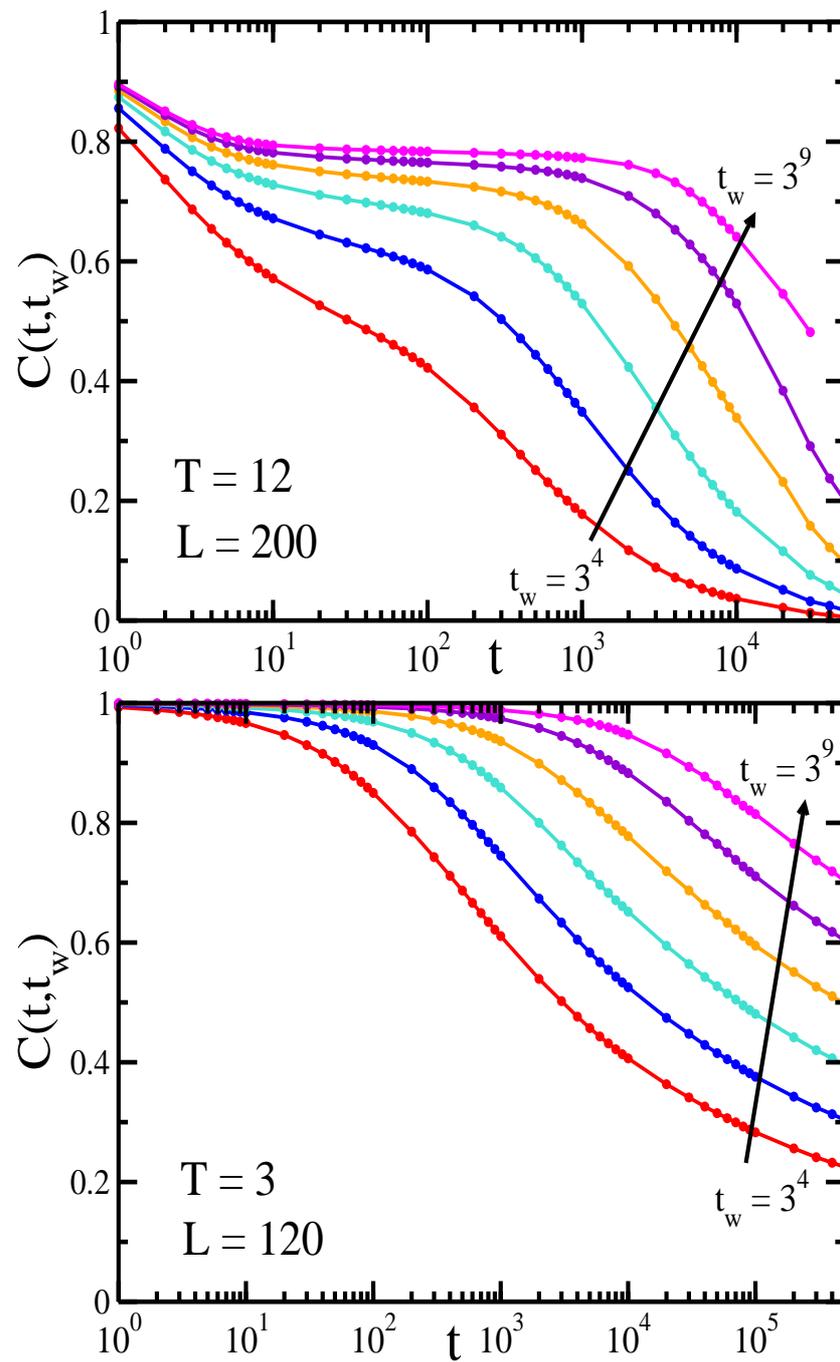


Figura 5.1: Función de auto-correlación a dos tiempos $C(t, t_w)$ en función del tiempo para $\delta = 6$, diferentes tiempos de espera $t_w = 3^k$ ($k = 4, \dots, 9$) y dos temperaturas dentro de la fase ferromagnética: $T = 12$ y $L = 200$ (arriba); $T = 3$ y $L = 120$ (abajo).

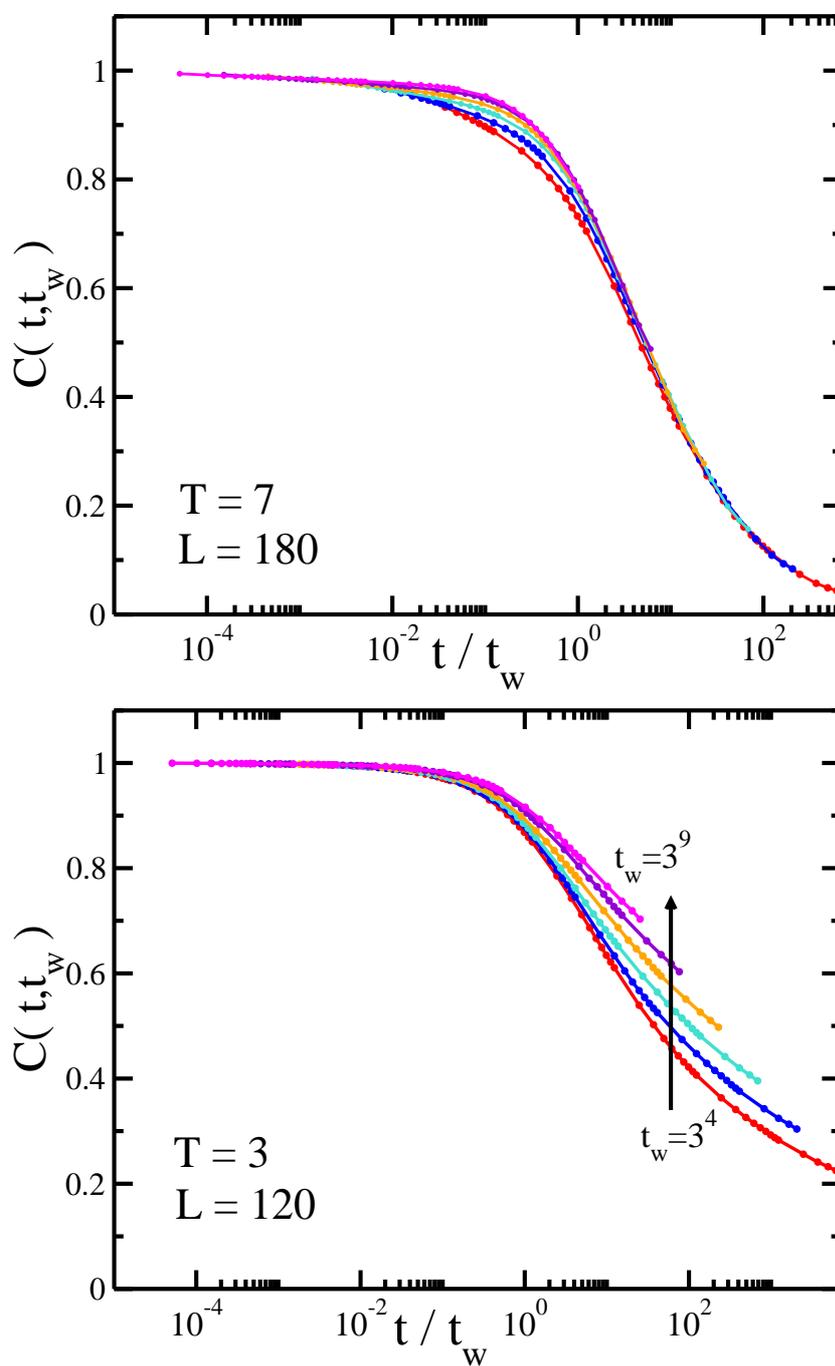


Figura 5.2: Función de auto-correlación a dos tiempos $C(t, t_w)$ en función de t/t_w , para $\delta = 6$, diferentes tiempos de espera $t_w = 3^k$ ($k = 4, \dots, 9$) y dos temperaturas dentro de la fase ferromagnética: $T = 7$ y $L = 180$ (arriba); $T = 3$ y $L = 120$ (abajo).

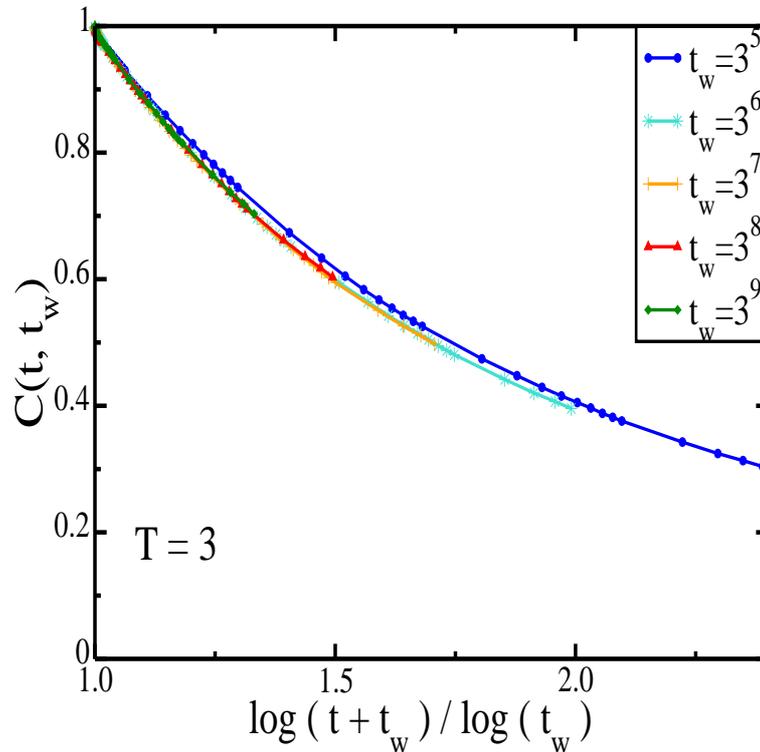


Figura 5.3: Función de auto-correlación a dos tiempos $C(t, t_w)$ reescalada con la forma $\log(t+t_w)/\log(t_w)$ para $\delta = 6$, $T = 3$ y diferentes tiempos de espera $t_w = 3^k$ ($k = 4, \dots, 9$).

logarítmico [11] $L(t) \propto \log(t)$, por lo que podemos esperar una dependencia de la forma:

$$C_{env}(t, t_w) = f\left(\frac{L(t+t_w)}{L(t_w)}\right).$$

Este comportamiento se confirma en la figura 5.3 donde graficamos $C(t, t_w)$ en función de $\log(t+t_w)/\log(t_w)$ para $T = 3$. Vemos el buen colapso de las curvas, particularmente para grandes valores de t_w .

Se realizaron cálculos similares para otras temperaturas en el intervalo $2 < T < 12$, y los resultados muestran que para temperaturas $T \geq 7$ la auto-correlación escala como t/t_w y para $T \leq 6$ escala como $\log(t+t_w)/\log(t_w)$. Este resultado confirma la existencia de dos fases dinámicas en la fase ferromagnética y nos da un valor estimativo de la temperatura de transición dinámica, que podemos determinar como $T_d = 6,5 \pm 0,5$. Este valor es muy cercano al determinado analíticamente por Shore y colaboradores en el límite de frustración débil ($\delta \rightarrow \infty$), $T_d = 7,11$. En otras palabras, el comportamiento de las curvas de la función

de auto-correlación confirman, a través de los estudios de escala, que el comportamiento de dominios se correlaciona con el comportamiento del proceso de envejecimiento. Esto nos permite entonces determinar por primera vez en la literatura el valor de la temperatura de transición dinámica T_d para un valor finito de $\delta = 6$, cercano a δ_c , donde la frustración es muy relevante. Vale destacar que este cálculo, si bien es costoso, es mucho más económico, en términos computacionales, que la determinación de la ley que gobierna el crecimiento de $L(t)$. Si esta transición dinámica a temperatura T_d está efectivamente relacionada con la temperatura de *corner-rounding*, entonces podemos decir que nuestro cálculo confirma la débil dependencia de esta temperatura dinámica con el valor del parámetro δ .

En la fase de láminas L1 también se observa dependencia con la historia de la muestra y una dinámica de envejecimiento simple, como puede verse la figura 5.4, donde mostramos la función de auto-correlación a dos tiempos para $\delta = 2$ y $T = 2$ en función de t (arriba) y reescalada con t/t_w (abajo).

Nuestros resultados en las fases ferromagnética y L1 muestran que la dinámica de envejecimiento siempre se corresponde con la ley de crecimiento de dominios (ya que no se aparta de la relación $C_{env}(t, t_w) = f(L(t)/L(t + t_w))$). Es decir que el mecanismo responsable de la dependencia con la historia de la muestra es simplemente el crecimiento de dominios.

5.2. Relación de Fluctuación-Disipación

Para estudiar la relación de Fluctuación Disipación en el modelo, calculamos la correlación a dos tiempos y la función respuesta a un campo externo débil.

Para realizar el estudio de la función respuesta se aplicó al sistema un campo magnético externo h_i . Para sistemas desordenados, el campo aplicado puede ser uniforme o aleatorio. Sin embargo, para sistemas sin desorden, un campo uniforme favorecería uno de los dos estados fundamentales, acelerando el crecimiento de estos dominios. En estos casos, debe usarse entonces un campo aleatorio, y medirse la magnetización *staggered*:

$$M_{ST}(t) = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \langle s_i(t) \text{signo}(h_i) \rangle \quad (5.2)$$

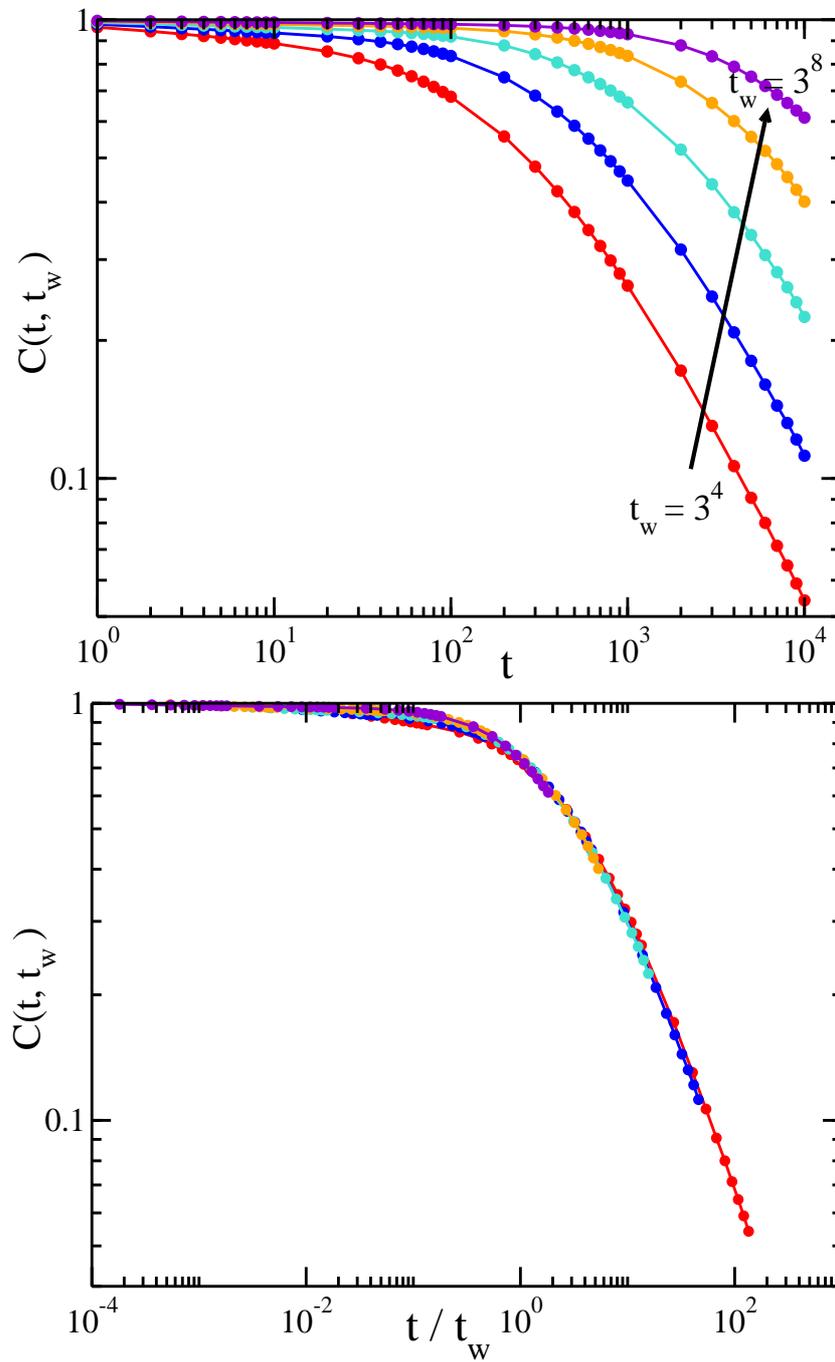


Figura 5.4: Función de auto-correlación a dos tiempos $C(t, t_w)$ para $\delta = 2, T = 2$ y diferentes tiempos de espera $t_w = 3^k$ ($k = 4, \dots, 8$) en función del tiempo t (arriba) y reescalada con la forma t/t_w (abajo).

donde h_i es el campo local de cada sitio, generalmente de la forma bimodal $h_i = \pm h$, y donde la barra indica un promedio sobre diferentes realizaciones de campo.

Nos aseguramos de que el campo magnético aleatorio tenga una intensidad suficientemente baja, de forma de estar trabajando en el régimen de respuesta lineal. Entonces podemos obtener la susceptibilidad a partir de la expresión,

$$\chi(t) = \frac{M_{ST}(t)}{h} \quad (5.3)$$

Si simultáneamente medimos la correlación a dos tiempos, es posible construir la curva paramétrica $\chi = M_{ST}(t, t_w)/h$ vs. $C(t, t_w)$, tal como se explicó en el capítulo 2.

Para la medición de estas cantidades se realiza un enfriado instantáneo desde temperatura infinita (configuración inicial aleatoria) a la temperatura final en la fase ordenada. Se deja evolucionar el sistema libremente un tiempo de espera t_w medido en PMC, a partir del cual se enciende el campo magnético aleatorio, y se mide la magnetización *staggered* y la función de auto-correlación a dos tiempos.

En la figura 5.5 se muestran curvas de $T\chi = TM_{ST}/h$ vs. $C(t, t_w)$ obtenidas para un sistema de tamaño $L = 50$, y para 3 conjuntos de parámetros:

- $\delta = 6$ y $T = 9$ (fase ferromagnética, arriba de T_d),
- $\delta = 6$ y $T = 2$ (fase ferromagnética, debajo de T_d),
- $\delta = 2$ y $T = 2$ (fase de láminas),

para dos tiempos de espera $t_w = 128$ y $t_w = 256$. La línea negra es la curva correspondiente al TFD de equilibrio (pendiente -1).

Podemos observar en el gráfico que en ambas fases ordenadas las curvas se apartan rápidamente del régimen de equilibrio, y que incluso a bajas temperaturas la susceptibilidad se mantiene constante o comienza a decaer a medida que disminuye la auto-correlación. Este es el escenario característico de sistemas con dinámica de crecimiento de dominios, donde $T_{ef} = \infty$. Es decir que los resultados de la Relación de Fluctuación Disipación en el modelo, al igual que los resultados del estudio de envejecimiento, nos muestran que el sistema posee una dinámica propia de crecimientos de dominios. Queremos destacar que a

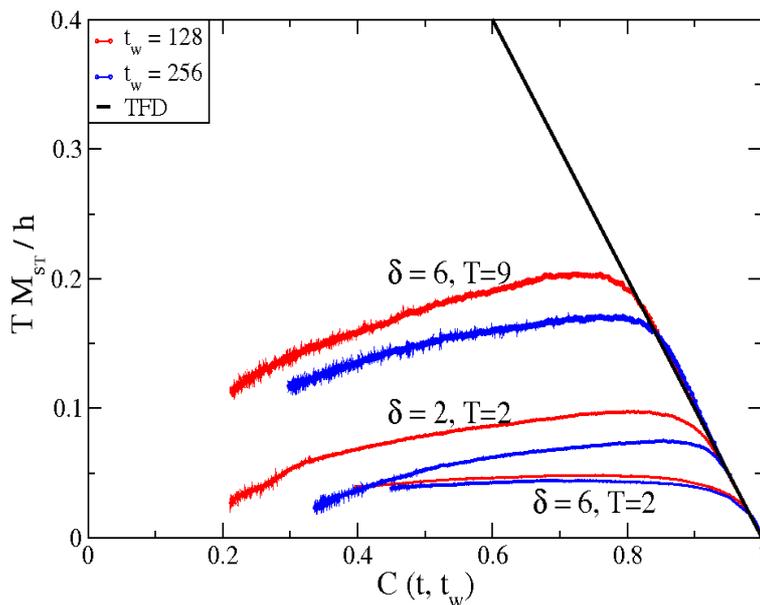


Figura 5.5: Susceptibilidad vs. auto-correlación para un sistema de tamaño $L = 50$, y diferentes parámetros δ y T , que se muestran en la figura. Los tiempos de espera utilizados son $t_w = 128$ y $t_w = 256$. La línea negra corresponde al TFD de equilibrio.

principios del año 2005 F. Krzakala publicó un trabajo [50] en el que estudiaba propiedades vítreas en modelos ferromagnéticos bidimensionales con dinámica de Kawasaki [51]. En él presentó un gráfico con el estudio de la Relación de Fluctuación-Disipación en el modelo SS tridimensional, cuyos resultados son similares a los mostrados en la figura 5.5 pero en un contexto dinámico diferente.

5.3. Discusión

En todas las fases ordenadas del modelo hemos encontrado una fuerte dependencia con la historia de la muestra y una violación del Teorema de Fluctuación Disipación, indicando que el sistema queda atrapado en estados de no-equilibrio estacionarios. En lo concerniente a la pregunta original sobre el rol de la frustración en el comportamiento de sistemas ordenados, podemos concluir que el modelo SS presenta una dinámica de envejecimiento simple y una relación de Fluctuación-Disipación propias de sistemas con dinámica

de crecimiento de dominios:

$$C(t, t_w) \sim f\left(\frac{L(t)}{L(t_w)}\right) \quad \text{y} \quad T_{ef} = \infty.$$

Podemos entonces afirmar que más allá del frenado dinámico por debajo de la transición de *corner-rounding*, la dinámica no es similar a la observada en vidrios estructurales, tal como sugerían originalmente los autores de [11]. En este sentido todo parece indicar que la frustración presente en este modelo, por importante que sea, no alcanza para modelar con espines tipo Ising la física de sistemas vítreos sin desorden.

Otro resultado importante de este capítulo fue la determinación por primera vez, para un valor finito de δ , de la temperatura de transición T_d entre los dos regímenes dinámicos de la fase ferromagnética. Como este valor no difiere mucho del obtenido analíticamente en el límite de frustración débil ($\delta \rightarrow \infty$) podemos concluir que dicha temperatura es poco sensible al efecto del término de interacción a segundos vecinos en el Hamiltoniano.

El modelo Shore-Sethna en su versión Heisenberg

En este capítulo estudiaremos una modificación al modelo analizado en los capítulos anteriores, que resulta de reemplazar las variables de Ising por variables clásicas de Heisenberg. En otras palabras, cada espín es ahora un vector \vec{S}_i de módulo unitario. Consideraremos las mismas interacciones competitivas del modelo SS Ising, o sea, ferromagnéticas y antiferromagnéticas a primeros y segundos vecinos, respectivamente, y nos restringiremos al caso de una red tridimensional cúbica. Ignoraremos a la vez cualquier tipo de anisotropía.

Podemos pensar que esta versión del modelo resulta más adecuada para modelar materiales reales tridimensionales, tales como los espineles, o incluso para comparar con algunos materiales sin desorden que mostraron tener comportamientos típicos de vidrios de espines [34, 35] y cuyos momentos magnéticos son siempre variables tipo Heisenberg. Además, sabemos que la versión diluida de este modelo reproduce la fenomenología de ciertos vidrios de espines aislantes [36] como el $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{S}$ y $\text{Fe}_x\text{Al}_{1-x}$.

La inclusión de interacciones a segundos vecinos en el modelo Heisenberg en la red cuadrada, usualmente llamado *frustrated square lattice* (FSL), ha sido ampliamente estudiada en el contexto de sistemas de espines cuánticos [52-56]. Mediante el estudio de transi-

ciones cuánticas se determinó que el diagrama tiene tres fases ordenadas: ferromagnética, antiferromagnética de Néel (AF), y antiferromagnética en columnas (SAF). Además existen regiones críticas alrededor de puntos críticos cuánticos en los que el sistema muestra un estado fundamental denominado *líquido de espines*. Éste es un estado paramagnético cooperativo (hay correlación magnética de corto alcance) y difiere de un vidrio de espín en que no se observa una temperatura de *freezing*, es decir, los espines, o al menos una gran fracción de ellos, se mantienen dinámicos aún a las más bajas temperaturas accesibles. Este estado desordenado surge a partir de las fluctuaciones cuánticas que impiden el orden magnético de largo alcance. Si bien este modelo ha sido estudiado intensamente en la última década, su complejidad sigue siendo fuente de constantes estudios, los cuales se concentran casi exclusivamente en redes bidimensionales, y aún no hay extensiones a modelos en redes tridimensionales.

En este capítulo abordaremos primero el estudio del diagrama de fases, a fin de determinar los diferentes órdenes presentes en el modelo. Nos interesa particularmente el análisis de su dinámica a fin de compararla con los resultados obtenidos en el modelo con espines tipo Ising mostrados en el capítulo 5 ya que, como veremos, este cambio resultará muy relevante.

El capítulo está organizado de la siguiente forma: en la primera sección presentaremos el modelo. Luego mostraremos el diagrama de fases termodinámicas y a continuación analizaremos la dinámica de envejecimiento en sus fases ordenadas y la relación de Fluctuación-Disipación. Por último discutiremos los resultados obtenidos.

6.1. El modelo

El modelo consiste de un sistema de $N = L^3$ espines Heisenberg clásicos ubicados en los nodos de una red cúbica que interactúan ferromagnéticamente entre primeros vecinos y antiferromagnéticamente entre segundos vecinos. El Hamiltoniano puede escribirse de la siguiente forma:

$$H = -J_1 \sum_{NN} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j + J_2 \sum_{NNN} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j, \quad (6.1)$$

donde los espines \vec{S}_i son vectores de módulo 1 y componentes S_i^x, S_i^y, S_i^z . J_1 y J_2 son ambos parámetros definidos positivos que representan, respectivamente, la magnitud de las interacciones ferro y antiferromagnéticas. La primera suma (NN) se realiza sobre pares de espines primeros vecinos y la segunda (NNN) sobre pares de espines segundos vecinos.

De la misma forma que hicimos en el capítulo 2 vamos a redefinir el Hamiltoniano (6.1) de la forma:

$$\mathcal{H} = \frac{H}{J_2} = -\delta \sum_{NN} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j + \sum_{NNN} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j. \quad (6.2)$$

Las simulaciones de Monte Carlo fueron realizadas usando el algoritmo de Metrópolis, con condiciones de contorno periódicas y actualización completamente aleatoria en la esfera unitaria. O sea, se escoge un espín \vec{S}_i en forma aleatoria, se sorteja una nueva dirección aleatoria (caracterizada por dos ángulos θ y ϕ) y se aplica el algoritmo de Metrópolis. Como siempre, diremos que un paso Monte Carlo (PMC) corresponde a N intentos aleatorios de actualizar espines.

6.2. Diagrama de fases

La complejidad de este sistema, en comparación con el modelo con variables Ising, dificulta el cálculo de energías para determinar el estado fundamental. Es de esperar que en el límite de frustración débil el sistema se ordene ferromagnéticamente, por lo tanto medimos el calor específico y la magnetización total en función de la temperatura para diferentes valores de δ :

$$M = \sqrt{M_x^2 + M_y^2 + M_z^2},$$

donde

$$M_\alpha = \frac{1}{N} \sum_i \langle S_i^\alpha \rangle,$$

y $\alpha = x, y$ ó z .

En la figura 6.1 mostramos el calor específico y la magnetización total en función de la temperatura para un sistema de tamaño $N = 30^3$ y para tres valores diferentes de $\delta = 2, 5$ y 6 . Podemos determinar en cada caso la temperatura crítica mediante el pico del calor

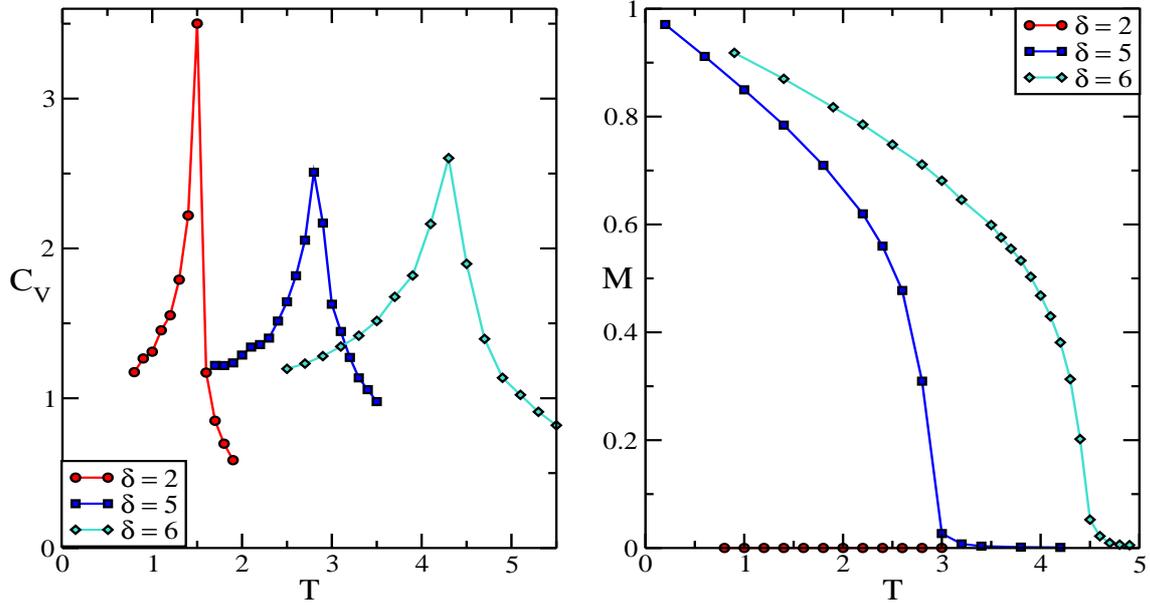


Figura 6.1: Calor específico y magnetización en función de la temperatura para un sistema de $N = 30^3$ espines y para $\delta = 2, 5$ y 6 .

específico. Verificamos además que el sistema se ordena ferromagnéticamente para $\delta = 5$ y 6 , pero no para $\delta = 2$.

Como el sistema no tiene ninguna dirección privilegiada (el modelo no posee anisotropía), cuando se ordena ferromagnéticamente la magnetización total puede tomar cualquier dirección, como podemos ver en la figura 6.2 en el que mostramos la magnetización neta y también los promedios del valor absoluto de M_x , M_y y M_z .

En la figura 6.1 vimos que para $\delta = 2$ la magnetización neta es nula incluso al atravesar la temperatura crítica (determinada mediante el calor específico), es decir que el sistema se ordena en algún estado antiferromagnético, y una posibilidad es la formación de láminas ferromagnéticas que alternan entre ellas la dirección de sus espines, como ocurre en el modelo con variables tipo Ising. Para analizar esta posibilidad utilizamos el parámetro de orden orientacional O que generaliza la definición introducida en la expresión 4.5 del capítulo 4. Para ello redefinimos:

$$n_x = \sum_{x,y,z} 1 - \text{signo}(\vec{S}(x, y, z) \cdot \vec{S}(x + 1, y, z))$$

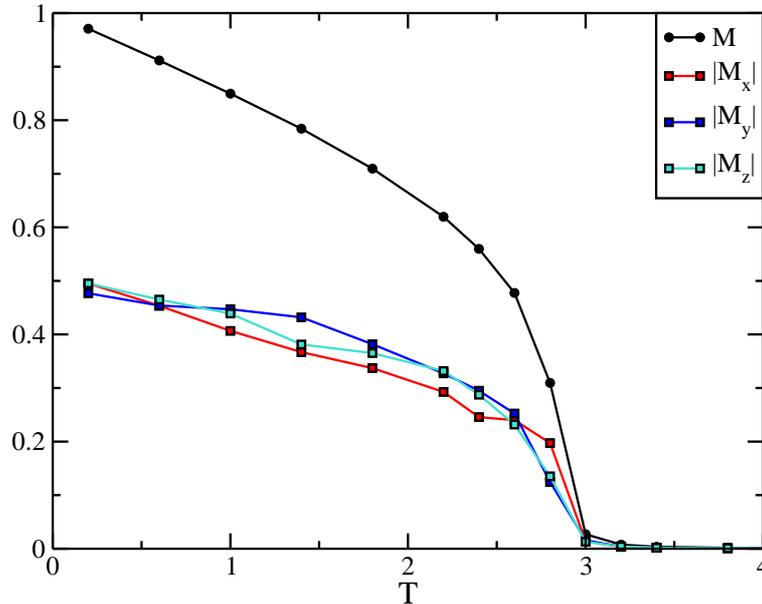


Figura 6.2: Magnetización total y sus tres componentes en función de la temperatura para $\delta = 6$, en un sistema de $N = 30^3$ espines.

(y análogamente n_y y n_z) donde \cdot representa el producto escalar. Es decir que n_α es el número de pares de espines próximos (primeros vecinos) en la dirección $\alpha = x, y$ o z que forman un ángulo $90^\circ < \Theta \leq 180^\circ$.

En la figura 6.3 se muestra el parámetro de orden O en función de la temperatura para $\delta = 2$ y cuatro tamaños del sistema. Tal como ocurre en el modelo con variables de espín Ising, el sistema se ordena formando láminas. Para analizar el ancho de las láminas, y el ángulo que forman los espines, calculamos el ángulo entre espines próximos en las tres direcciones x, y y z . Pudimos así determinar que las láminas son de ancho $h = 1$, y que se forman paralelas a los ejes de la red, lo cual es lo esperado ya que una configuración de láminas ordenadas diagonalmente en la red tiene mayor cantidad de interacciones frustradas, y por ende tiene mayor energía. En la figura 6.4 se muestran los histogramas del ángulo Θ que forma cada espín con su vecino próximo. Uno de los histogramas tiene un valor medio $\bar{\Theta} \approx 165^\circ$, y corresponde a los ángulos que forman los espines vecinos en la dirección perpendicular a las láminas. Vemos que estos espines están prácticamente antialineados, y el hecho de que el valor medio sea menor a 180° se debe a los efectos de las fluctuaciones

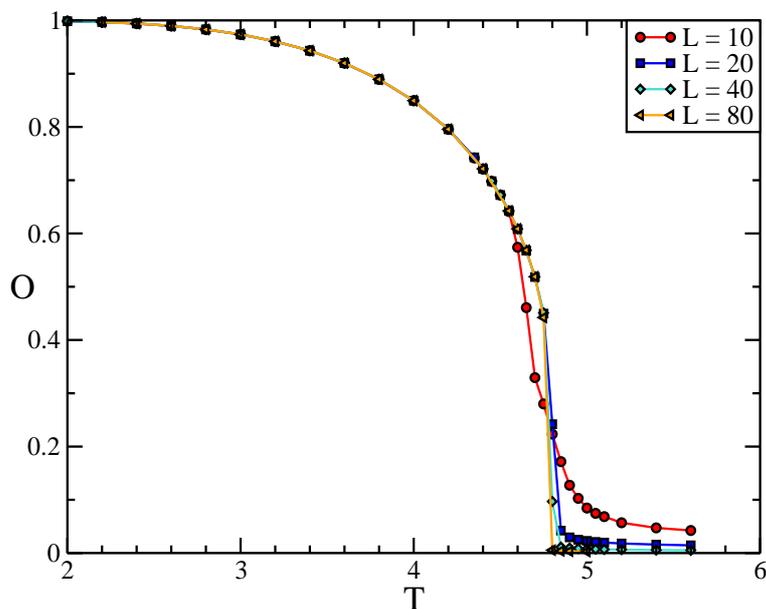


Figura 6.3: O vs. temperatura para $\delta = 2$ para $L = 10, 20$ y 30 .

térmicas (esto pudo corroborarse ya que al disminuir la temperatura el ángulo Θ medio se acerca a 180°). El otro histograma corresponde a los ángulos entre vecinos próximos en las otras dos direcciones, y su valor medio es $\bar{\Theta} \approx 25^\circ$, es decir que en ambas direcciones los espines están prácticamente alineados.

Mediante el análisis de los parámetros de orden M y O pudimos determinar que, al igual que ocurre en el modelo con variables Ising, el estado fundamental es ferromagnético para $\delta > 4$ y láminas de ancho $h = 1$ para $0 < \delta < 4$. No descartamos la posibilidad de que existan otros estados complejos, por ejemplo al pasar del estado ferro al de láminas (como ocurre en el caso bidimensional en el que el sistema desarrolla una fase nemática [56]), pero su determinación escapa al interés de este trabajo.

Mediante el calor específico determinamos las temperaturas críticas para diferentes valores de δ y así construimos el diagrama de fases que se muestra en la figura 6.5 para un sistema de tamaño $N = 30^3$. Como estamos interesados preferentemente en el estudio de la dinámica del modelo, no nos detuvimos en caracterizar las transiciones termodinámicas.

Notemos que este diagrama es cualitativamente similar al obtenido en el capítulo 4.

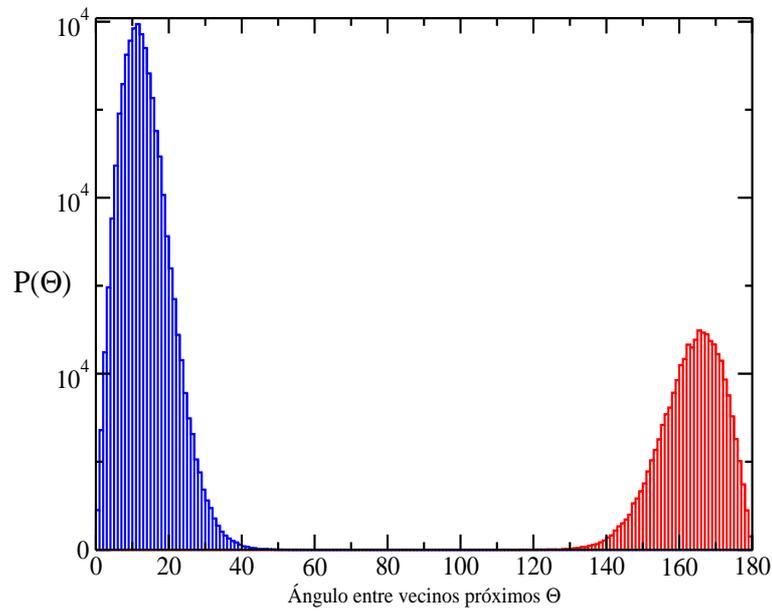


Figura 6.4: Distribución de probabilidad del ángulo Θ entre vecinos próximos en la dirección perpendicular a las láminas (rojo) y en las otras dos direcciones (azul), para $L = 30$ y $\delta = 2$.

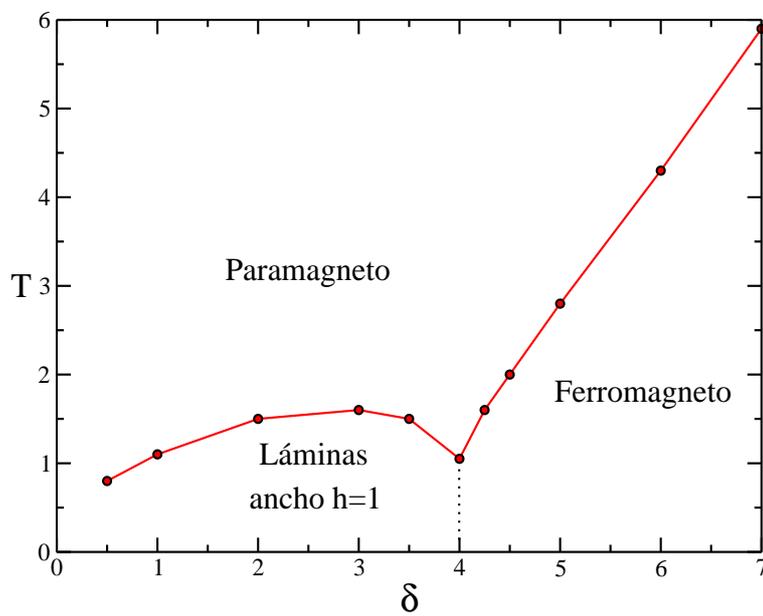


Figura 6.5: Diagrama de fases T vs. δ para un sistema de $L = 30$. Las fases son: láminas de ancho $h = 1$ (L1), ferromagnética (F) y paramagnética (P).

Cuantitativamente podemos ver, en primer lugar, que los estados fundamentales son los mismos, incluso para los mismos valores de δ . Con este diagrama de fases tenemos ahora información sobre los estados de ordenamiento del sistema para los parámetros δ y T , y estudiaremos a partir de él las propiedades dinámicas en las próximas secciones.

6.3. Dinámica de Envejecimiento

Para estudiar la dinámica de envejecimiento del modelo utilizamos el mismo protocolo explicado en el capítulo 5, es decir, realizamos un enfriado instantáneo del sistema desde una temperatura $T > T_C$ (vamos a asumir el enfriado desde temperatura infinita) hasta una temperatura $T < T_C$, dentro de la fase ordenada. El sistema entonces evoluciona durante un tiempo de espera t_w , y desde entonces se mide la función de auto-correlación a dos tiempos. Los resultados se obtuvieron para un sistema de tamaño $L = 100$, para diferentes tiempos de espera $t_w = 3^k$ ($k = 4, \dots, 9$) y en dos puntos diferentes de su diagrama de fases, uno en cada fase ordenada, a baja temperatura:

- $\delta = 3$ y $T = 0,5$ (fase de láminas),
- $\delta = 6$ y $T = 1$ (fase ferromagnética).

En la figura 6.6 se muestra la función de auto-correlación a dos tiempos en función del tiempo para los parámetros explicados previamente. Puede verse que en todos los casos hay una fuerte dependencia con la historia de la muestra, es decir que el sistema presenta dinámica de envejecimiento. Comparando con los resultados mostrados en el caso Ising, aquí se observa un decaimiento inicial mucho más pronunciado, hasta alcanzar el estado de casi-equilibrio, desde el cual decae finalmente a cero.

Sabemos que en el caso de sistemas que presentan dinámica de crecimiento de dominios se espera un comportamiento del tipo

$$C_{env}(t, t_w) = f\left(\frac{L(t + t_w)}{L(t_w)}\right), \quad (6.3)$$

donde $L(t)$ es el tamaño lineal medio de un dominio al tiempo t . En el caso en que el crecimiento de dominios es algebraico, se espera que la contribución de envejecimiento

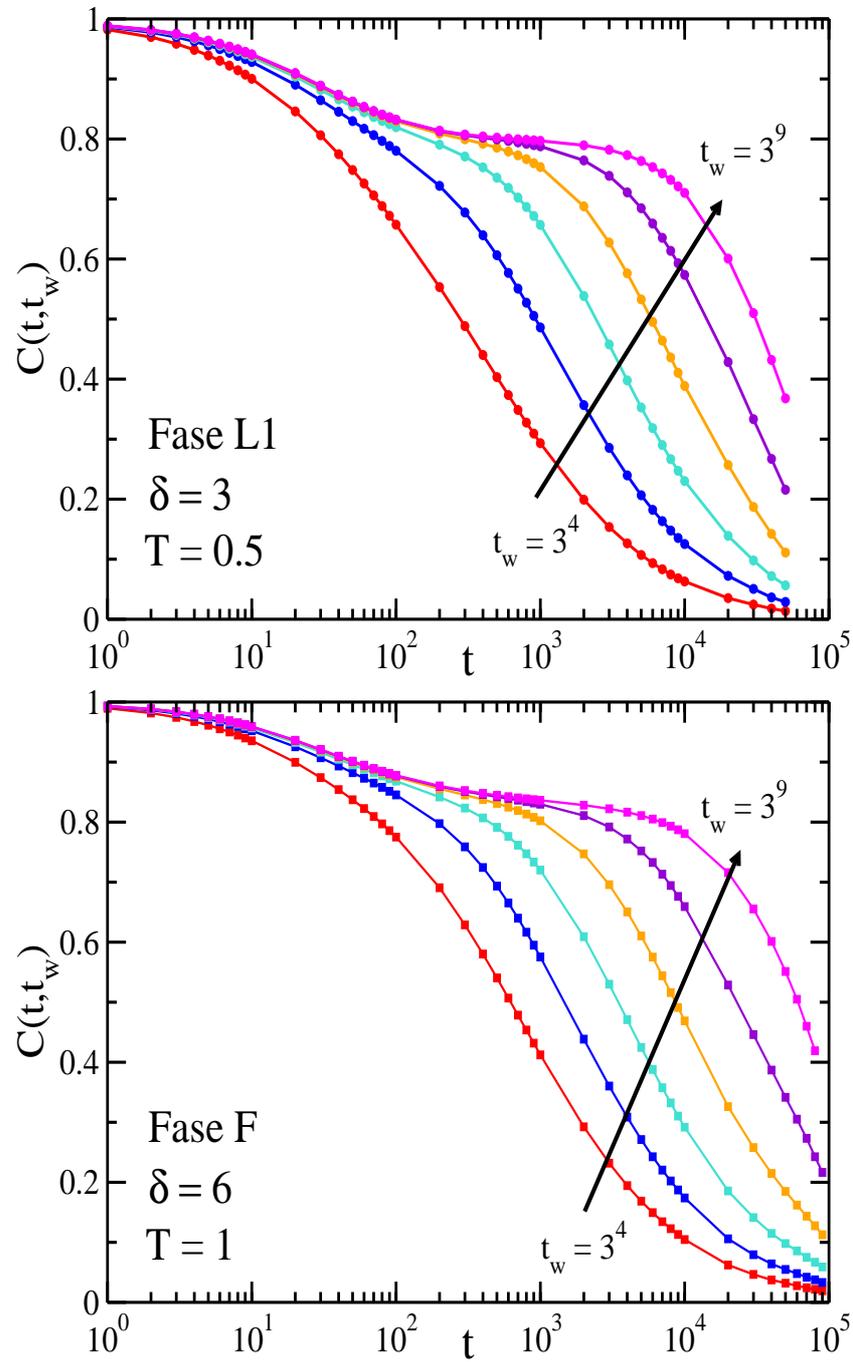


Figura 6.6: Función de auto-correlación a dos tiempos $C(t, t_w)$ vs. t para $\delta = 3$ $T = 0,5$ (izquierda) y $\delta = 6$ $T = 1$ (derecha), y diferentes tiempos de espera $t_w = 3^k$ ($k = 4, \dots, 9$), en un sistema de tamaño $L = 100$.

escale como t/t_w , es decir, que el sistema tenga una dinámica del tipo envejecimiento simple.

En la figura 6.7 mostramos las curvas del gráfico 6.6 pero reescaladas con t/t_w . Podemos observar que no se logra un buen colapso de las curvas; los t_w mayores corresponden a las curvas inferiores, indicando que a mayor tiempo de espera la relajación se hace más rápida. Este comportamiento recibe el nombre de *sub-envejecimiento* refiriéndose a que a medida que la *edad* del sistema aumenta, ésta se hace menos importante en su relajación, tal cual vimos en el capítulo 2. Este comportamiento contrasta con el observado en el modelo con variables tipo Ising en la fase ferromagnética a bajas temperaturas, ya que en aquel caso se observó una dinámica de súper-envejecimiento (en la cual t_w mayores correspondían a las curvas superiores, indicando que la relajación era más lenta a tiempos de espera mayores), debido a que su crecimiento de dominios era logarítmico en el tiempo.

En general, para cualquier sistema que presenta dinámica de envejecimiento se espera que la contribución de envejecimiento escale de la forma

$$C_{env}(t, t_w) = f\left(\frac{h(t + t_w)}{h(t_w)}\right) \quad (6.4)$$

donde $h(t)$ es una función monótona creciente en el tiempo (en el caso de dinámicas de crecimiento de dominios $h(t) = L(t)$).

Como vimos en el capítulo 2 una forma muy común de escalar estas funciones es usar

$$h(x) = \exp\left(\frac{1}{1-\mu} \left(\frac{x}{\tau_0}\right)^{1-\mu}\right), \quad (6.5)$$

donde μ es un exponente que mide el apartamiento del envejecimiento simple. Recordemos que para $\mu > 1$ se dice que el sistema presenta súper-envejecimiento que se corresponde con crecimientos de dominios logarítmicos. En el otro extremo, $\mu < 1$ se denomina sub-envejecimiento, y es el comportamiento observado en vidrios estructurales y vidrios de espín. En el caso $\mu = 1$ recuperamos el envejecimiento simple.

Con esta función se obtiene:

$$\frac{h(t)}{h(t_w)} = u(t, t_w) = \frac{1}{1-\mu} [(t + t_w)^{1-\mu} - t_w^{1-\mu}]. \quad (6.6)$$

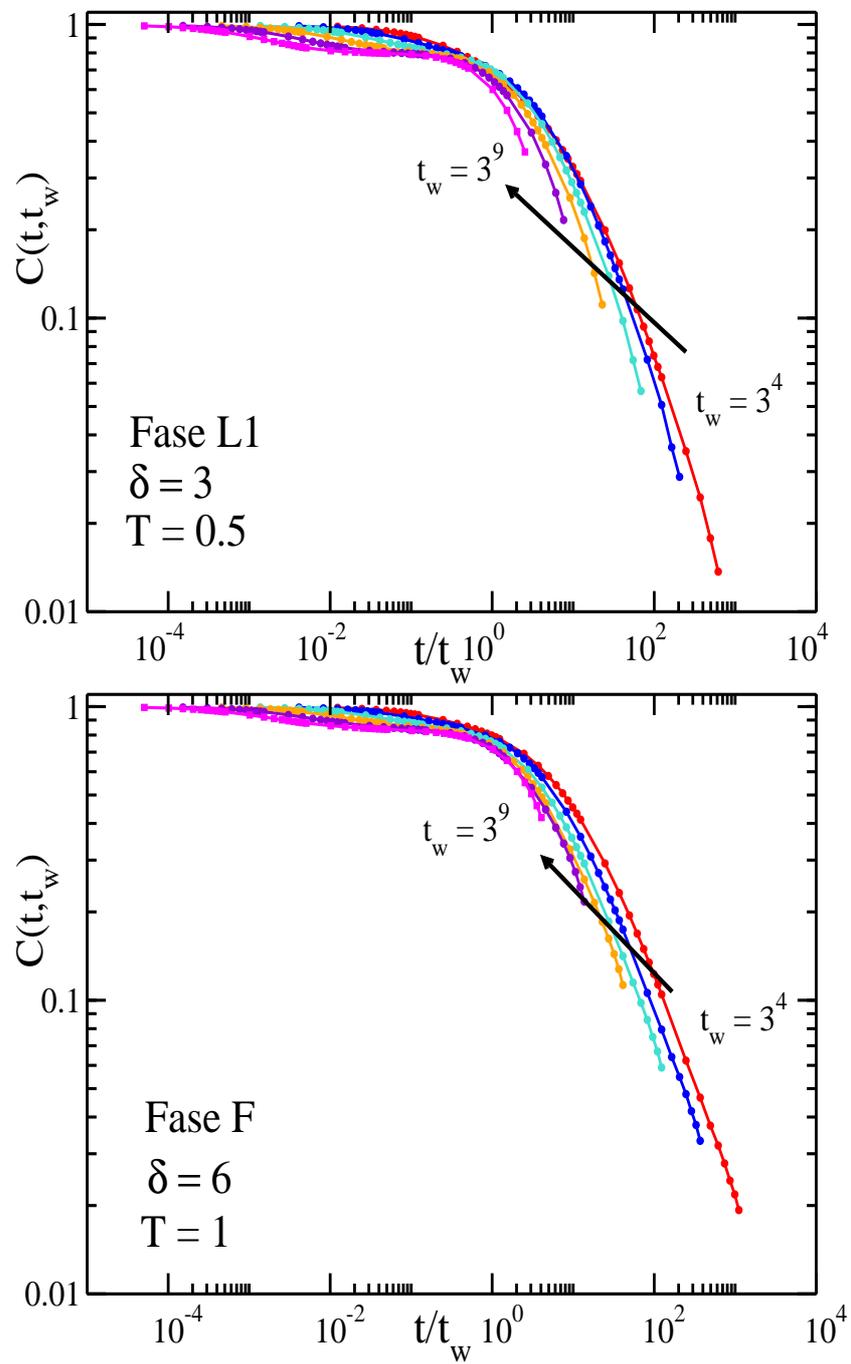


Figura 6.7: Función de auto-correlación a dos tiempos $C(t, t_w)$ para $\delta = 3$, $T = 0,5$ (izquierda) y $\delta = 6$, $T = 1$ (derecha), $L = 100$ y diferentes tiempos de espera $t_w = 3^k$ ($k = 4, \dots, 9$) en función de la forma de escala simple t/t_w .

En otras palabras, la edad relevante del sistema no es t_w sino $t + t_w$.

Como en la figura 6.7 vemos un comportamiento del tipo sub-envejecimiento, utilizamos 6.6 y ajustamos el parámetro μ hasta lograr el mejor colapso de las curvas. En la figura 6.8 mostramos los resultados para ambos valores, $\delta = 3$ y $T = 0,5$, $\delta = 6$ y $T = 1$. En el primer caso obtuvimos un valor de $\mu = 0,90$, y en el segundo caso $\mu = 0,92$, ambos valores muy similares a los obtenidos en vidrios de espín y otros sistemas nítidamente vítreos.

Realizamos estudios de la dinámica de envejecimiento para otros valores de δ y T (no se pudo elevar mucho la temperatura ya que la función de auto-correlación decae rápidamente) y en todos los casos analizados se observa sub-envejecimiento con $\mu \approx 0,92$.

Podemos concluir del análisis de la dinámica de envejecimiento del modelo que, a diferencia de lo que ocurre con el modelo con variables de espín tipo Ising, en este caso la dinámica en todas sus fases ordenadas se vuelve compleja, mostrando una forma de escala correspondiente a sub-envejecimiento. No hemos encontrado ninguna evidencia de transición dinámica, como en el caso Ising, entre regímenes diferentes de envejecimiento. Estos resultados son particularmente importantes porque ahora sí hemos encontrado indicios de una dinámica muy complicada, similar a la observada en vidrios de espín y vidrios estructurales, en un modelo con frustración pero sin desorden. En la próxima sección veremos que información podemos extraer de la relación de Fluctuación-Disipación.

6.4. Relación de Fluctuación-Disipación

Además del estudio de la dinámica de envejecimiento en las fases ordenadas, realizamos el análisis de la relación de Fluctuación-Disipación con los mismos parámetros δ y T que usamos en la sección precedente.

En la figura 6.9 mostramos las curvas de susceptibilidad magnética vs. la función de auto-correlación para dos tiempos de espera diferentes ($t_w = 3^6 = 729$ y $t_w = 3^7 = 2187$), en un sistema de $L = 100$, $\delta = 1$ y $T = 0,5$, es decir en la fase de láminas. En la figura 6.10 los parámetros son $\delta = 6$ y dos temperaturas, $T = 1$ y $T = 2$, ambas en la fase ferromagnética. En esta figura (cuyos parámetros corresponden a la fase de láminas) podemos

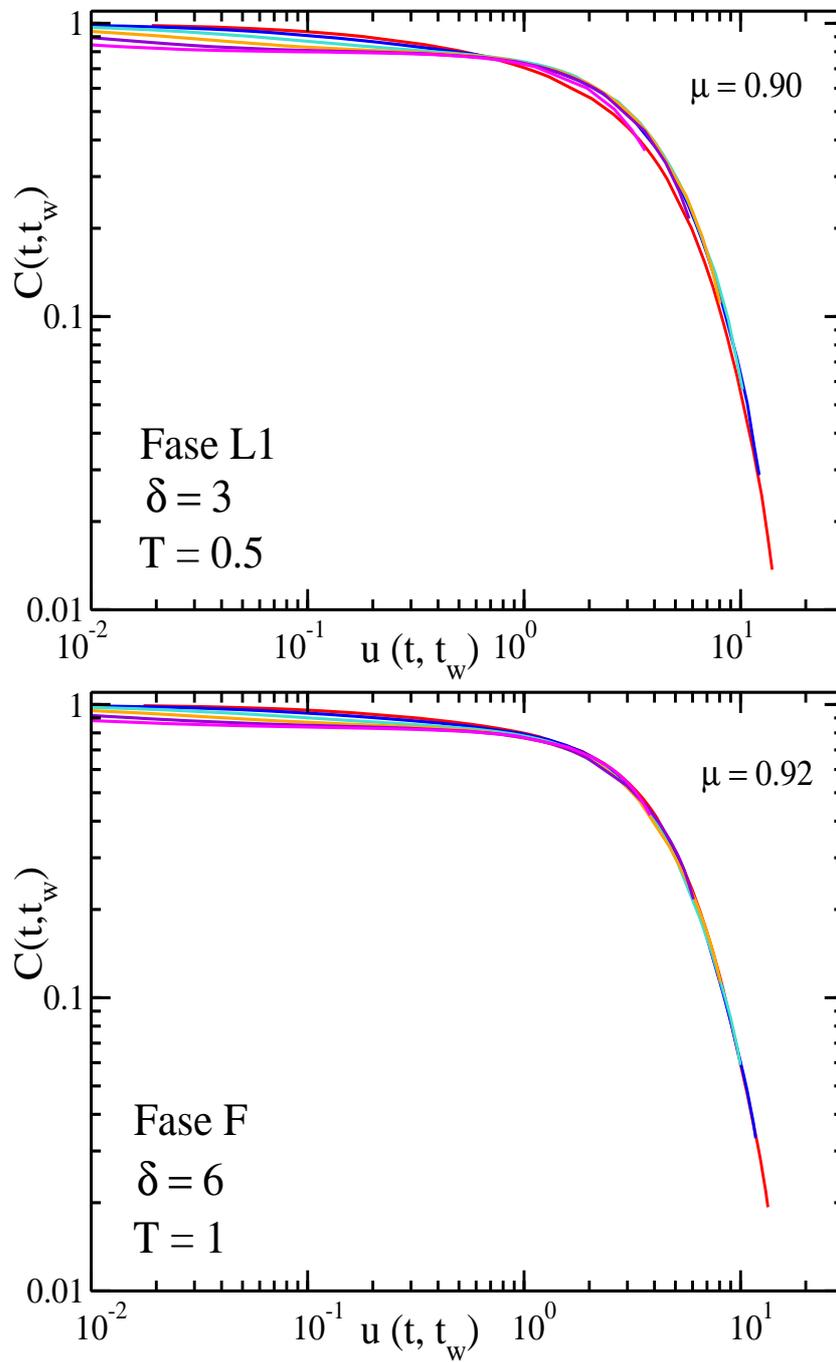


Figura 6.8: Función de auto-correlación a dos tiempos $C(t, t_w)$ vs. $u(t, t_w)$ para $\delta = 3$ $T = 0,5$ y $\delta = 6$ $T = 1$, $L = 100$ y diferentes tiempos de espera $t_w = 3^k$ ($k = 4, \dots, 9$).

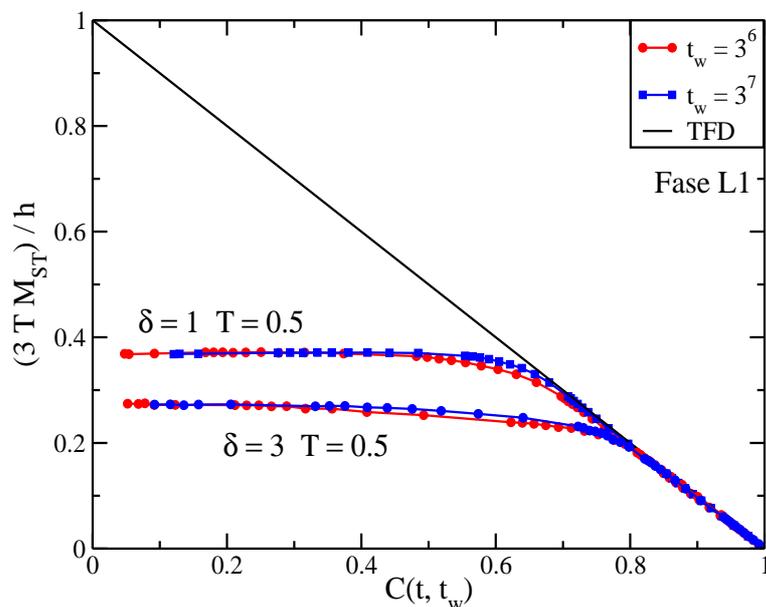


Figura 6.9: Susceptibilidad vs. función de auto-correlación para un sistema de tamaño $L = 100$, en la fase de láminas: $\delta = 1, T = 0,5$ y $\delta = 3, T = 0,5$. Los tiempos de espera son $t_w = 729$ y $t_w = 2187$. La línea negra corresponde a la Relación de Fluctuación-Disipación en equilibrio.

ver que hay un período inicial donde el sistema se encuentra en un régimen de equilibrio, que se evidencia porque se cumple el TFD. Luego de este período las curvas cambian su pendiente, haciéndose ésta nula. Es decir que para estos parámetros la Razón de Fluctuación-Disipación es cero, indicando por lo tanto una temperatura efectiva infinita.

En cambio, la figura 6.10, correspondiente a la fase ferromagnética, muestra un comportamiento diferente. Para ambas temperaturas se observa que, luego de que el sistema abandona el régimen de equilibrio, las curvas se apartan de la línea correspondiente al TFD, pero lo hacen con una pendiente constante, y diferente de cero. El hecho de que estas curvas sean rectas, y de menor pendiente que la línea de equilibrio, nos indica que la dinámica de este modelo en esta zona de su diagrama de fases tiene un claro comportamiento vítreo.

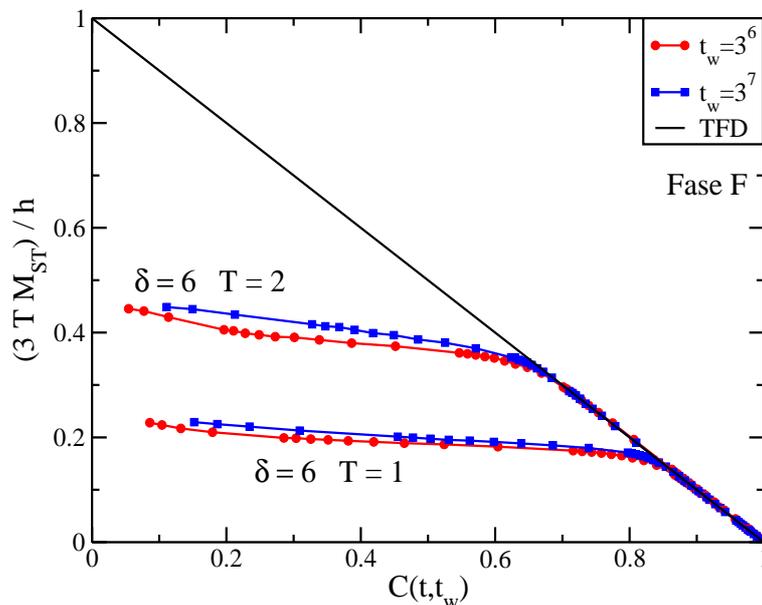


Figura 6.10: Susceptibilidad vs. función de auto-correlación para un sistema de tamaño $L = 100$, en la fase ferromagnética: $\delta = 6$ y dos temperaturas, $T = 1$ y $T = 2$. Los tiempos de espera utilizados son $t_w = 729$ y $t_w = 2187$. La línea negra corresponde a la Relación de Fluctuación-Disipación en equilibrio.

6.5. Discusión

En este capítulo hemos mostrado los resultados originales obtenidos para un modelo Heisenberg tridimensional con interacciones competitivas. Se realizó el diagrama de fases, que cualitativamente es muy similar al modelo estudiado en el capítulo 4. Sin embargo su dinámica es mucho más rica, ya que en todas sus fases ordenadas presenta sub-envejecimiento, comportamiento típico de los vidrios estructurales y vidrios de espín. La relación de Fluctuación-Disipación por otro lado nos dice que la fase ferromagnética tiene un comportamiento por su vez más complejo que el de la fase de láminas, ya que la temperatura efectiva no diverge. Esto sin duda nos indica que el paisaje energético es extremadamente complejo, y sería muy interesante en un futuro poder analizar cómo es la dinámica de crecimiento de dominios del modelo a fin de tener un panorama completo del comportamiento estático y dinámico de este modelo, ya que como vimos en este capítulo es un buen modelo de vidrio, sin desorden impuesto.

Parte II

Modelado de películas magnéticas ultra-delgadas

Películas magnéticas ultra delgadas

Los seres humanos hemos intentado siempre manipular y crear los materiales más adecuados (o sea, con las propiedades deseadas) para cada una de las múltiples herramientas que fueron desarrollándose a lo largo de nuestra historia. Y a partir del desarrollo de la física y las ciencias de los materiales este objetivo se ha potenciado y renovado notablemente, hasta hacer posible hoy la elaboración de un sinnúmero de materiales útiles, curiosos y fascinantes. Sin duda la construcción de estos materiales se ve altamente facilitada cuando conocemos los detalles de la composición, disposición e interacción entre sus constituyentes microscópicos, y más aún cuando contamos con teorías fiables acerca de la dinámica de los mismos y modelos termo-estadísticos adecuados que los describen. Las llamadas películas magnéticas ultra-delgadas, que nos inspiran en esta parte de la tesis, son sin duda un buen ejemplo del resultado de esta carrera entre conocimiento y desarrollo tecnológico.

Los avances logrados recientemente en las técnicas de crecimiento de películas, como así también en los métodos de caracterización de las mismas no sólo han permitido la aplicación de estos nuevos materiales en desarrollos tecnológicos, sino también han brindado la posibilidad de estudiar problemas fundamentales y aún abiertos de la física de la materia condensada de sistemas magnéticos, tales como el rol de la competencia y la frustración a nivel de las interacciones intra-atómicas (o intra-moleculares) en el comportamiento mesoscópico y macroscópico de la materia.

Desde el punto de vista de sus aplicaciones tecnológicas, las películas magnéticas ultra-delgadas tienen un enorme potencial en el desarrollo de dispositivos magnéticos de almacenamiento de datos. Como veremos, el hecho de que se ordenen en estructuras complejas y nanoscópicas, algunas incluso meta-estables y con los momentos magnéticos alineados perpendicularmente al plano que las define (al contrario de lo que sucede en los dispositivos actuales donde los momentos son paralelos al plano) permitiría mejorar muchísimo el desempeño de estos dispositivos. Sin embargo su preparación y caracterización sigue siendo difícil y cara, y son múltiples aún las dudas e interrogantes que su comportamiento nos plantea a los físicos.

El objetivo de este capítulo es brindar al lector un resumen de los principales resultados teóricos y experimentales, a fin de que pueda entender la fenomenología de estos materiales y sobre todo los mecanismos responsables de la formación de estructuras magnéticas consistentes en dominios con escalas meso y nanoscópicas.

Una descripción realista de estos materiales debe incluir tres ingredientes fundamentales: la interacción de intercambio de corto alcance, la interacción dipolar de largo alcance y la anisotropía magneto-cristalina de sitio, ya que se sabe que la aparición de orden de largo alcance en un sistema bidimensional requiere que se rompa la simetría rotacional del espín. La naturaleza última de esta anisotropía está determinada por la combinación de las interacciones magneto-cristalinas (debidas a la presencia de la superficie y del bulk) y de la interacción dipolar, la cual es por definición inherentemente anisotrópica.

La interacción dipolar es usualmente ignorada en la mayoría de los estudios estadísticos sobre orden magnético, y sin embargo juega un rol fundamental en el proceso de estabilización de orden de largo alcance en sistemas bidimensionales, como así también en la morfología y naturaleza de los estados ordenados. Otra característica importantísima de las interacciones dipolares es su decaimiento algebraico, dándole el carácter de alcance infinito. Si bien la magnitud de esta interacción es varios órdenes de magnitud menor que la interacción de intercambio, su largo alcance compensa esta diferencia. De hecho, como discutiremos más adelante, la competencia entre las interacciones de intercambio de corto alcance y las interacciones dipolares de largo alcance es el principal ingrediente en la formación de dominios magnéticos complejos.

Este capítulo está organizado de la siguiente forma. En la sección 7.1 revisaremos los principales resultados experimentales encontrados en estos materiales a fin de brindar al lector una descripción fenomenológica del comportamiento dinámico y termodinámico de las películas magnéticas ultra-delgadas. A continuación, en la sección 7.2 analizaremos el rol de las diferentes interacciones microscópicas en el comportamiento del sistema. Esto nos permitirá construir un modelo microscópico simplificado pero adecuado para los objetivos de nuestro estudio.

7.1. Resultados Experimentales

Los notables avances logrados en la técnicas de crecimiento y caracterización de películas magnéticas metálicas de unos pocos átomos de espesor, crecidas sobre sustratos metálicos no magnéticos, han permitido realizar numerosas mediciones sobre el orden que alcanzan estos sistemas.

En uno de los trabajos pioneros del área, en 1990 Pappas, Kámper y Hopster [57] estudiaron diferentes películas de hierro (Fe), todas de aproximadamente tres átomos de espesor, depositadas sobre cobre [Cu(100)]. Utilizando espectroscopía de electrón polarizado encontraron que, en el régimen de bajas temperaturas, los momentos magnéticos de los átomos de Fe estaban alineados perpendicularmente al plano definido por la película. A medida que calentaban la muestra, hallaron que el sistema entraba en una región sin magnetización neta alguna, la cual reaparecía a temperaturas aún mayores, ahora con una preponderancia de la componente planar. Un poco por encima del surgimiento de la magnetización planar, aparecía además una pequeña componente de la magnetización perpendicular. En la figura 7.1, extraída de la referencia [57], mostramos los resultados entonces obtenidos. Es importante destacar que estos cambios ocurrían a temperaturas menores a los $350K$, en una región donde el material era estructuralmente estable. A temperaturas mayores se observaba una pérdida total de la magnetización, asociada probablemente a una transición de fase estructural. Los autores atribuyeron entonces esta observación de un intervalo sin magnetización (*gap*) a una transición desde un estado uniaxial perpendicular al plano a bajas temperaturas a un estado *canted* (con un orden de largo alcance con los

espines orientados casi planarmente) debido a la anisotropía interfacial. Para la aparición del gap de magnetización entre la fase uniaxial y la fase *canted* esbozaron dos posibles explicaciones:

- la primera imaginaba la existencia de un verdadero estado paramagnético en la región del gap como consecuencia de un campo de demagnetización que cancelaría exactamente la anisotropía interfacial, y por lo tanto le permitiría al sistema recuperar la simetría rotacional.
- En el segundo escenario posible, los momentos atómicos se ordenarían formando dominios estáticos, con magnetización neta nula.

Las limitaciones experimentales impidieron entonces a estos autores definir el mecanismo que originaba el gap. Ellos observaron también otro fenómeno muy curioso: la temperatura a la cual ocurría esta transición decrecía a medida que se incrementaba el ancho de la película. En la figura 7.2 mostramos la dependencia de la temperatura de Transición de Reorientación de Espines en función del ancho de la película obtenido por Pappas y colaboradores [57].

También en 1990 Allenspach, Stampanoni y Bishof [58] estudiaron películas de cobalto (Co) sobre oro (Au(111)) demostrando la existencia de una fuerte dependencia de la estructura magnética con el ancho de la muestra a una temperatura constante de $300K$. Cuando el espesor de la película era de 3 (tres) monocapas atómicas, los momentos magnéticos atómicos se encontraban alineados perpendicularmente al plano de la película y formando dominios irregulares. Pero a medida que aumentaba el espesor de la película, los momentos de los dominios rotaban continuamente, hasta alcanzar el ancho de aproximadamente 5 (cinco) capas atómicas, donde los espines se encontraban casi completamente paralelos al plano de la película. Berger y Hopster [59, 60] hicieron estudios similares con películas de hierro (Fe) en plata (Ag(100)), encontrando básicamente el mismo efecto descrito en los experimentos anteriores.

La naturaleza de esta transición de reorientación como así también la naturaleza del orden magnético en la vecindad de la transición se pudo resolver recién dos años más tarde mediante el uso de la técnica de *Scanning Electron Microscopy* con análisis de polarización,

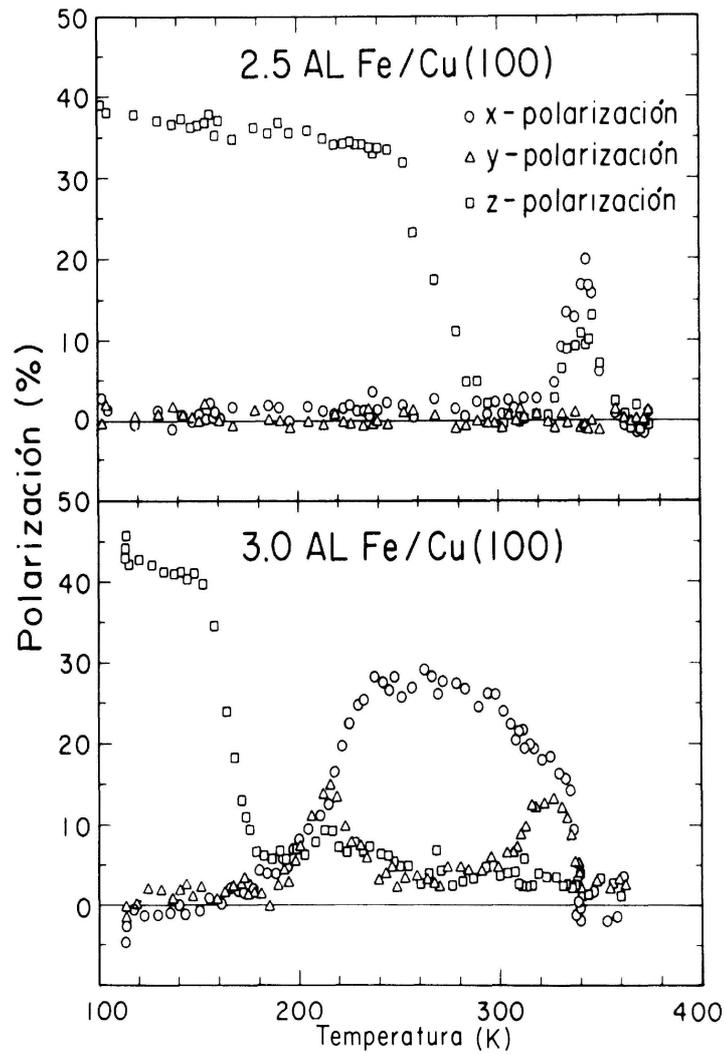


Figura 7.1: Polarización de espín de los electrones secundarios en función de la temperatura para una película de Fe/Cu(100) con dos espesores diferentes: 2,5 ML (arriba) y 3,5 ML (abajo). (ML: Mono Layers) [57].

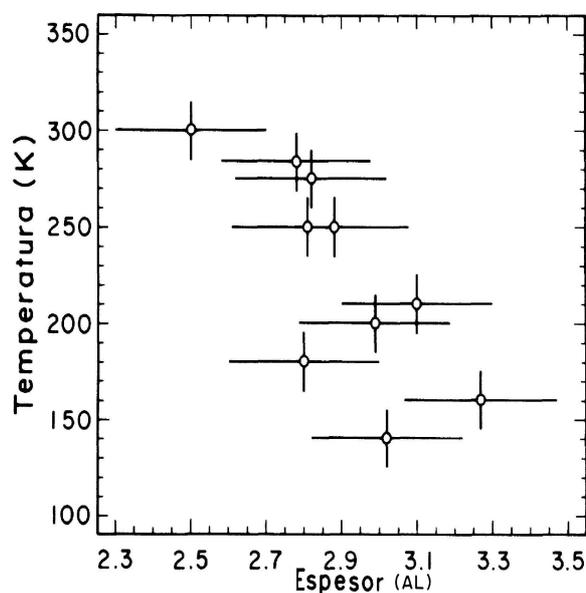


Figura 7.2: Temperatura de transición entre las fases de magnetización perpendicular y de magnetización planar en función del ancho de las películas [57].

la cual permite visualizar la estructura magnética a escalas micrométricas. En 1992 Allenspach y Bischof estudiaron láminas de Fe en Cu(100) [61] con espesor fijo y en función de la temperatura. Ellos encontraron por primera vez que la región de magnetización neta nula correspondía a la formación de dominios alargados con los momentos magnéticos invertidos y orientados perpendicularmente al plano. Esto explicaba entonces la observación del gap de magnetización.

Desde entonces estos estudios continuaron realizándose prolíficamente y es hoy enorme la cantidad de resultados obtenidos en el estudio de diferentes tipos de películas ultra-delgadas crecidas en diferentes sustratos. La existencia de una clara transición de reorientación magnética sumada a la presencia de patrones de orden magnético de fajas despertó así la curiosidad de físicos teóricos y experimentales. Resumiendo, podemos entonces imaginar el siguiente escenario:

- Para películas muy finas y manteniendo el espesor constante, los espines se alinean perpendicularmente al plano para temperaturas muy bajas. Al aumentar esta tempe-

ratura el sistema sufre una transición de reorientación a un estado donde la magnetización se orienta predominantemente en el plano de la película. En el estado de bajas temperaturas los espines se ordenan en estados de fajas magnéticas de anchos variables y dependientes tanto de T como del espesor de la película. La transición de reorientación no necesariamente implica la existencia de un estado planar con orden ferromagnético. El sistema puede eventualmente pasar a un estado desordenado planar antes de alcanzar el estado paramagnético con recuperación de la simetría rotacional. Ahora bien, cuando el sistema transiciona a un estado ferromagnético planar, esta transición puede darse con o sin la existencia de un intervalo intermedio de magnetización global nula, dependiendo del espesor y la preparación de la muestra.

- Si se mantiene la temperatura fija y se varía el espesor de la muestra, entonces el sistema también se reordena. Para películas muy delgadas, en la mayoría de los casos se observa que los espines se alinean perpendicularmente al plano, y a medida que el espesor crece los espines se reorientan otra vez preferencialmente paralelos a la película.

Como vemos, de esta fenomenología surge claramente que tanto la dinámica como la termodinámica de estos sistemas está fuertemente determinada por la anisotropía. En general, la presencia de anisotropía permite que un sistema bidimensional se ordene. Sin embargo vemos que en este caso el proceso es mucho más complejo, ya que se detectaron dos tipos de orden, ferromagnético y de fajas, y dos orientaciones preferenciales, perpendicular o paralela al plano definido por la película, respectivamente. Y esta complejización surge de dos tipos diferentes de competencia: por un lado la competencia entre las interacciones de corto y largo alcance, y por otro lado la competencia entre la anisotropía propia de la interacción dipolar y la anisotropía magneto-cristalina del material, la cual se relaciona con el ancho de la película.

A fin de ejemplificar la rica fenomenología observada en estos materiales, hemos escogido la figura 7.3 obtenida por Wong y colaboradores [82] en una película de Fe/Ni/Cu(001) y estudiada con microscopía de fotoemisión de electrones de alta resolución (PEEM). En la secuencia vemos los patrones magnéticos para una película de $20\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$, de espesor constante (Fe(2,7 ML)/Ni(5,4 ML)/Cu(001)), cuando la temperatura aumenta desde 300K

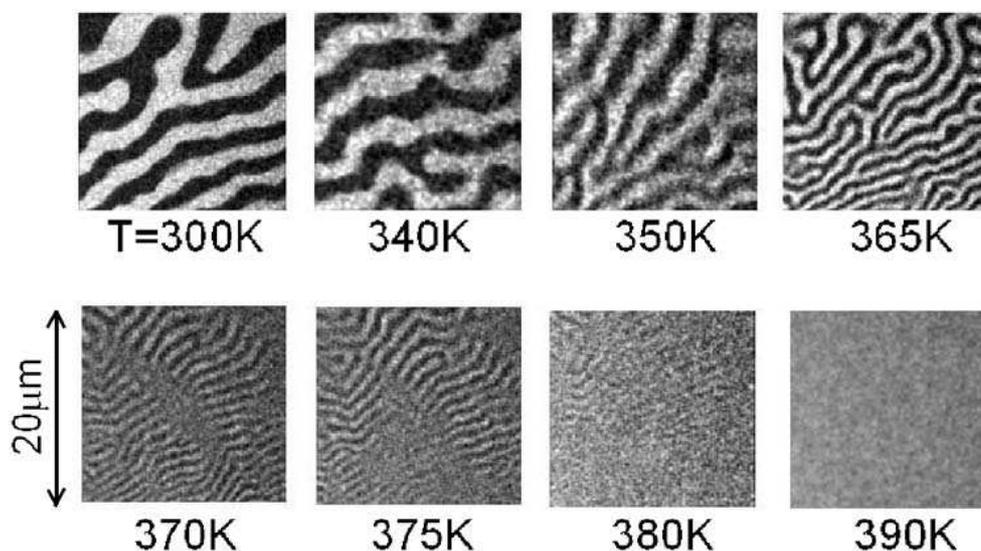


Figura 7.3: Imágenes obtenidas con PEEM de películas magnéticas ($20\mu m \times 20\mu m$) de Fe(2,7 ML)/Ni(5,4 ML)/Cu(001) a diferentes temperaturas. El sistema sufre una transición de fajas a paramagneto perpendicular a $T = 380K$, antes de que ocurra la transición de reorientación.

hasta $390K$. Se observa la formación de fajas con la dirección de los espines perpendiculares a la muestra. Al aumentar la temperatura tanto el ancho de las fajas como el contraste decrecen, y en $T = 380$ los dominios desaparecen completamente debido a la transición a la fase paramagnética perpendicular.

En la próxima sección discutiremos en detalle los ingredientes relevantes de estos sistemas a fin de construir un adecuado modelo microscópico que nos permita estudiar numéricamente la física de las películas magnéticas ultra-delgadas.

7.2. La física microscópica de las películas ultra-delgadas

En esta sección analizaremos en detalle los diferentes tipos de interacciones que es necesario tener en cuenta para construir un modelo realista de películas magnética ultra-delgadas, capaz de reproducir al menos cualitativamente la fenomenología observada.

7.2.1. Interacciones de intercambio

La forma más simple de modelar un sistema bidimensional en ausencia de campo magnético externo consiste en incluir en el Hamiltoniano las interacciones de intercambio entre pares de espines $\langle i, j \rangle$ primeros vecinos:

$$\mathcal{H}_{int} = -J_1 \sum_{\langle i, j \rangle} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j, \quad (7.1)$$

donde \vec{S}_i es un espín clásico de n componentes. Los estados ordenados de este modelo son notablemente simples, independientemente del valor de n .

Si la anisotropía fuese tan grande como para forzar a los espines a alinearse perpendicularmente al plano definido por la película, entonces sería suficiente considerar la versión uniaxial del Hamiltoniano (7.1), donde despreciamos las componentes x e y ($S_i^x \approx 0$ y $S_i^y \approx 0$) y entonces $S_i^z = \pm 1$. Esto nos lleva al famoso modelo de Ising bidimensional:

$$\mathcal{H}_{int}^{Ising} = -J_1 \sum_{\langle i, j \rangle} S_i^z S_j^z. \quad (7.2)$$

Si asumimos que la estructura cristalina se puede modelar mediante una red cuadrada, el análisis es más simple aún. Cuando la constante de intercambio J_1 es positiva el estado fundamental corresponde a un estado ferromagnético ordenado con todos los espines alineados en paralelo. Este estado fundamental tiene doble degeneración. Por otro lado, si la constante J_1 es negativa, el sistema se ordena en un estado antiferromagnético con espines próximos anti-alineados. Si la estructura de la red es más compleja, este análisis puede complicarse más aún en el caso en que la constante J_1 sea negativa. En el caso de una red triangular, por ejemplo, no es posible encontrar un estado que minimice simultáneamente todos los términos de la primera suma, y como fruto de esta frustración, la degeneración es infinita y el sistema no se ordena a ninguna temperatura finita.

Otro caso particularmente relevante para nuestro estudio es aquel en el cual la anisotropía de la interacción dipolar es tal que los espines viven casi confinados a moverse en el plano definido por la película. En otras palabras, podemos asumir aquí que $S_i^z \approx 0$ y entonces el Hamiltoniano definido por la Ec. (7.1) se transforma en el conocido modelo XY

(o modelo planar) de la forma:

$$\mathcal{H}_{int}^{XY} = -J_1 \sum_{\langle i,j \rangle} (S_i^x S_j^x + S_i^y S_j^y). \quad (7.3)$$

En este caso se sabe [62] que el sistema sufre una transición asociada con el apareamiento de vórtices a la temperatura de Korsterlitz-Thouless.

Finalmente, para el caso con simetría rotacional total descrito por el Hamiltoniano (7.1), sabemos que el sistema no se ordena espontáneamente (o sea, en ausencia de campo) a ninguna temperatura finita.

Como consecuencia de este análisis simple de las tres posibilidades ligadas al estudio del Hamiltoniano (7.1), vemos que ninguna de ellas sirve para describir una fenomenología compleja que permita el desarrollo de dominios magnéticos de escalas nano o mesoscópicas. Es por esto que necesitamos encontrar otros ingredientes microscópicos capaces de dar cuenta de la aparición de estas estructuras.

7.2.2. Las interacciones dipolares

De los cursos de grado de Electromagnetismo sabemos que entre dos momentos magnéticos siempre existe una interacción dipolar, la cual debe sumarse a la interacción de intercambio descrita recientemente, y que ésta tiene la forma [63]:

$$\mathcal{H}_{dip} = g \sum_{(i,j)} \left(\frac{\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j}{r_{ij}^3} - 3 \frac{(\vec{S}_i \cdot \vec{r}_{ij})(\vec{S}_j \cdot \vec{r}_{ij})}{r_{ij}^5} \right). \quad (7.4)$$

Aquí (i, j) indica que la suma corre sobre todos los pares distintos de espines de la red. En casi todos los estudios teóricos tridimensionales, los físicos estadísticos desprecian esta interacción cuando trabajan con sistemas atómicos o moleculares, ya que g es usualmente muchos órdenes de magnitud menor que los valores usuales de J_1 , la magnitud de la interacción de intercambio. Sin embargo, cuando se trabaja con sistemas particulados (donde se modela el momento de un pequeño grano) la interacción dipolar es sin duda la más importante.

En el caso de sistemas bidimensionales la interacción dipolar, aunque pequeña en magnitud, puede jugar un papel muy importante. Como vimos en la subsección anterior, el mo-

delo clásico de espines de Heisenberg isotrópico en la red cuadrada no se ordena en ausencia de campo a ninguna temperatura finita. No obstante, la interacción dipolar, dependiendo de la relación entre g y J_1 , puede introducir una anisotropía tal en el Hamiltoniano (7.1) que ayude a estabilizar orden de largo alcance a temperaturas finitas [64]. Más aún, la interacción dipolar entre dos espines cualesquiera de la red no sólo decae lentamente con la distancia sino que también depende tanto de la orientación relativa entre los dos espines (primer término de (7.4)) como de la orientación relativa de éstos al vector \vec{r}_{ij} que los une. El estado fundamental del Hamiltoniano dipolar (7.4) es entonces diferente de aquel correspondiente al Hamiltoniano de intercambio (7.1). En otras palabras, cuando ambas interacciones están presentes, el sistema es inherentemente *frustrado*.

Otra propiedad importante de las interacciones dipolares en sistemas bidimensionales es que también produce un quiebre en la simetría entre la orientación perpendicular al plano y la orientación paralela al plano, siendo también responsable del otro fenómeno que, como ya dijimos, nos interesa: la transición de reorientación de espines (TRE).

Resumiendo, podemos decir que la interacción dipolar es un ingrediente fundamental en el modelado de películas magnéticas ultra-delgadas (casi bidimensionales) por ser las responsables de:

- (a) la estabilización del orden de largo alcance con formación de dominios magnéticos de escala nano o mesoscópicas y
- (b) el surgimiento de la transición de reorientación de espines.

7.2.3. Anisotropía magnetocristalina

Un momento magnético ubicado en un sólido cristalino puede sufrir, además de la fuerza de intercambio y de la fuerza dipolar, también una fuerza localizada y originada en la interacción con el medio cristalino. Y en muchos sistemas de interés, como es el caso de las películas magnéticas ultra-delgadas, este último término puede ser descrito por un Hamiltoniano de la forma:

$$\mathcal{H}_{an} = \kappa \sum_i \sum_{\alpha\beta} A_{\alpha\beta} S_i^\alpha S_i^\beta, \quad (7.5)$$

donde i indica los sitios de la red y α y β denotan las componentes cartesianas. En el caso de películas metálicas en substratos metálicos, es necesario realizar cálculos *ab initio* o cálculos de teoría de bandas para descubrir la naturaleza última de la matriz $A_{\alpha\beta}$ [65].

En general, podemos decir que la interfase substrato-película induce una anisotropía perpendicular al plano, en tanto la estructura cristalina de la película produce una anisotropía mucho más compleja. Como en este trabajo nos limitaremos a considerar películas ultra-delgadas en el límite de una única capa, podemos quedarnos solamente con el término perpendicular, el cual a su vez es suficiente para estabilizar el orden de largo alcance, rompiendo la simetría de rotación del Hamiltoniano de Heisenberg:

$$\mathcal{H}_{an} \approx -\kappa \sum_i (S_i^z)^2. \quad (7.6)$$

7.2.4. Un modelo estadístico para películas magnéticas ultra-delgadas

Con este análisis recién presentado sobre los diferentes tipos de interacciones microscópicas, llegamos finalmente al Hamiltoniano más simple capaz de modelar muchos de los fenómenos observados en películas ultra-delgadas, el cual tiene la forma:

$$\begin{aligned} \mathcal{H} &= \mathcal{H}_{int} + \mathcal{H}_{dip} + \mathcal{H}_{an} \\ &= -J_1 \sum_{\langle i,j \rangle} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j + g \sum_{(i,j)} \left[\frac{\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j}{r_{ij}^3} - 3 \frac{(\vec{S}_i \cdot \vec{r}_{ij})(\vec{S}_j \cdot \vec{r}_{ij})}{r_{ij}^5} \right] - \kappa \sum_i (S_i^z)^2, \end{aligned} \quad (7.7)$$

donde J_1 es la intensidad de la interacción de intercambio, g es la intensidad de la in-/te-/rac/-ción dipolar y κ es la intensidad del término de anisotropía cristalina. Dado que vamos a trabajar siempre tratando de reproducir los experimentos en los cuales se varía la temperatura dejando fijo el ancho de las películas, usaremos una red cuadrada, despreciando la importancia del espesor. Además, como ya vimos, asumimos que la anisotropía cristalina sólo tiene componente en la dirección perpendicular al plano. Todas estas suposiciones no impiden que el mismo modelo pueda eventualmente ser usado para diferentes estructuras cristalinas y para diferentes espesores.

Resumiendo, hemos hecho tres drásticas simplificaciones en el modelo:

- Asumimos que el espesor de la película no es relevante y que la podemos modelar

con una red bidimensional.

- Suponemos que la estructura cristalina del material es poco importante y consideramos sólo el caso de una red cuadrada con condiciones de contorno periódicas.
- Dado que trabajamos con una única capa atómica, asumimos que el término de anisotropía cristalina favorece el ordenamiento perpendicular al plano y que es homogéneo en toda la muestra.

A fin de simplificar el trabajo y la interpretación de los resultados, transformamos el Hamiltoniano (7.7) en su forma adimensional:

$$\mathcal{H} = -\delta \sum_{\langle i,j \rangle} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j + \sum_{(i,j)} \left[\frac{\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j}{r_{ij}^3} - 3 \frac{(\vec{S}_i \cdot \vec{r}_{ij})(\vec{S}_j \cdot \vec{r}_{ij})}{r_{ij}^5} \right] - \eta \sum_i (S_i^z)^2, \quad (7.8)$$

donde ahora $\delta = J_1/g$, $\eta = \kappa/g$. Es decir que a partir de ahora mediremos la temperatura T y la energía del sistema E en unidades de la magnitud de la interacción dipolar g , sin por esto perder generalidad en nuestros resultados.

Veremos en la próxima sección algunos resultados teóricos obtenidos previamente por otros autores con este modelo y con su versión uniaxial (versión tipo Ising).

7.3. Resultados Teóricos

7.3.1. El límite de simetría uniaxial

Cuando se analiza una película ultra-delgada en el límite de pequeño espesor o baja temperatura, hemos visto que los espines se orientan perpendicularmente al plano por ella definido. En este caso los momentos magnéticos pierden la simetría orientacional y más aún, es posible despreciar las componentes planares x e y , quedándonos solamente con la componente perpendicular z . Bajo estas condiciones es posible entonces reemplazar las variables de Heisenberg por variables de Ising, y el Hamiltoniano toma la forma simplificada:

$$\mathcal{H}_{Ising} = -J_1 \sum_{\langle i,j \rangle} s_i s_j + g \sum_{(i,j)} \frac{s_i s_j}{r_{ij}^3} - \kappa \sum_i (s_i)^2, \quad (7.9)$$

donde $s_i = S_i^z = \pm 1$, siempre definido en la red cuadrada. Este modelo ha sido muy estudiado en los últimos años, en especial en el Grupo de Teoría de la Materia Condensada de la Facultad de Matemática, Astronomía y Física de la Universidad Nacional de Córdoba [66-75]

En 1995 Mac Isaac y colaboradores [76] introdujeron este modelo uniaxial y presentaron por primera vez en la literatura su diagrama de fases. Mostraron que para $J_1/g < \delta_c = 0,425$ el estado fundamental es antiferromagnético mientras que para $J_1/g > \delta_c$ el sistema se ordena a temperatura cero en estados de fajas de ancho h (medido en unidades de espaciado de red). Más aún, fue posible probar que h crece muy rápidamente a medida que J_1/g crece, pero que para cualquier valor finito de esta cantidad, el estado completamente ferromagnético es desestabilizado por un estado de fajas. En otras palabras, por pequeña que sea la intensidad de la interacción dipolar g , ella siempre rompe el orden ferromagnético. Con respecto al diagrama de fases termodinámico, el mismo fue detalladamente estudiado por diferentes trabajos y sin duda en [75] se presenta su versión más completa. Podemos decir, para resumir, que las fases ordenadas de fajas están separadas por líneas de transición $h \rightarrow h + 1$ que no dependen del valor de J_1/g (son verticales en un diagrama J_1/g vs. T/g). Estas transiciones entre estados ordenados a bajas temperaturas y a medida que J_1/g varía, son siempre de primer orden, incluso aquella que separa el orden antiferromagnético del orden de fajas con $h = 1$.

El estudio de las transiciones fajas-paramagnético ha sido hasta hoy un tema de ardua controversia, motivo por el cual le dedicaremos especial atención. En simulaciones Monte Carlo en la red cuadrada, Booth y colaboradores [46] encontraron clara evidencia de una fase de fajas a bajas temperaturas con orden posicional y orientacional, reminiscente de orden esméctico en cristales líquidos. También encontraron una transición desde la fase de fajas a una fase altas temperaturas con pérdida del orden orientacional, a la cual llamaron *líquido tetragonal*. En esta fase surgen dominios de fajas orientados perpendicularmente entre sí, formando patrones con aspecto laberíntico. A temperaturas aún mayores estos dominios colapsan y el sistema alcanza continuamente (sin transición termodinámica de por medio) un estado paramagnético usual. A partir de estudios numéricos del calor específico concluyeron que la transición de fajas a líquido tetragonal era de segundo orden. No obs-

tante, trabajos posteriores, llevados a cabo con el método de series temporales en el mismo modelo y los mismos valores de los parámetros, sugirieron que dicha transición en realidad es de primer orden.

En un trabajo realmente importante en el área, Abanov y colaboradores [77] utilizaron una aproximación continua para analizar el orden de la transición. En él los autores predijeron uno de los dos siguientes posibles escenarios:

En el primero de ellos el sistema tiene a bajas temperaturas un estado termodinámico con orden tipo esméctico, donde la correlación espacial decae algebraicamente con la distancia. Esta fase se caracteriza por un orden de casi-largo-alcance y el parámetro de orden orientacional es no nulo. La proliferación de pares de dislocaciones ligadas cuando aumenta la temperatura conlleva la destrucción de este orden a través de una transición tipo Kosterlitz-Thouless hacia una fase nemática, que mantiene aún el orden orientacional. A temperaturas aún mayores, incluso el orden orientacional se pierde a través de la aparición de dominios perpendiculares entre sí, característicos de la fase de líquido-tetragonal. Como en esta transición se recupera la simetría orientacional Z_2 , los autores sugirieron que esta transición debería estar en la clase de universalidad del modelo de Ising bidimensional.

En el segundo escenario el sistema no es capaz de estabilizar el orden nemático y transiciona directamente de la fase esméctica al líquido-tetragonal por medio de una transición de primer orden. Más recientemente, Cannas, Stariolo y Tamarit [72] abordaron el mismo problema analíticamente, mediante una aproximación continua del Hamiltoniano (tipo Landau-Ginzburg) (7.9). Ellos mostraron que surge una transición de primer orden inducida por fluctuaciones. O sea, sus resultados se asemejaban al segundo escenario sugerido por Abanov y colaboradores.

Sin embargo, algunos años después, Cannas y colaboradores [74] realizaron un exhaustivo estudio numérico, utilizando técnicas de Monte Carlo, con el cual fueron capaces de verificar que el Hamiltoniano (7.9) puede presentar los dos tipos de comportamientos predichos en la referencia [77], dependiendo del cociente entre la intensidad de la interacción de intercambio y la intensidad de la interacción dipolar. Este resultado fue fundamental para resolver esta controversia sobre el tipo de orden observado en el sistema.

Recientemente, Pighín y Cannas [75] presentaron el estudio más completo del modelo uniaxial, donde distinguen cuidadosamente las regiones donde existe una fase intermedia con orden nemático de aquella donde el sistema pasa de fajas a líquido tetragonal a través de una transición de primer orden. En este valioso estudio se realizó también una muy interesante comparación entre los resultados obtenidos con métodos numéricos de Monte Carlo y la aproximación de campo medio.

Finalmente digamos que también han sido analizadas cuidadosamente las propiedades dinámicas de las diferentes fases del modelo uniaxial. En la referencia [66] se realizó un estudio de las propiedades de envejecimiento, obteniéndose resultados muy parecidos a los que nosotros obtuvimos en el modelo de Shore. A muy bajas temperaturas se observó envejecimiento logarítmico, pero este se tornaba envejecimiento simple si la temperatura aumentaba, siempre dentro de las fases de fajas. Posteriormente en la referencia [67] se realizó un análisis de la Relación de Fluctuación-Disipación. En el trabajo [69] se presentó un estudio del crecimiento de dominios que sugiere, a muy bajas temperaturas, que el sistema debe sortear largos transitorios logarítmicos antes de que se alcance el régimen algebraico esperado.

7.3.2. El modelo de Heisenberg

Vimos recién que hay muchos estudios de modelos de películas ultra-delgadas con espines Ising. Pero en cambio son muy pocos los que utilizan espines de Heisenberg (Hamiltoniano (7.7)). En el año 1998 Maclsaac, De'Bell y Whitehead [78] calcularon el estado fundamental de este modelo en el plano (η, δ) en base a cálculos de energías, y confeccionaron el diagrama de fases a temperatura nula que mostramos en la figura 7.4. En esta figura podemos ver que para anisotropía alta el sistema se ordena formando fajas, con la dirección de los espines perpendicular al plano de la muestra, y que el ancho de las fajas aumenta a medida que crece la interacción de intercambio. Para anisotropías bajas el sistema se ordena ferromagnéticamente, siendo la dirección de los espines paralela al plano de la película. Sólo a muy bajas anisotropía e intercambio la configuración del estado fundamental es dipolar con los espines en la dirección del plano.

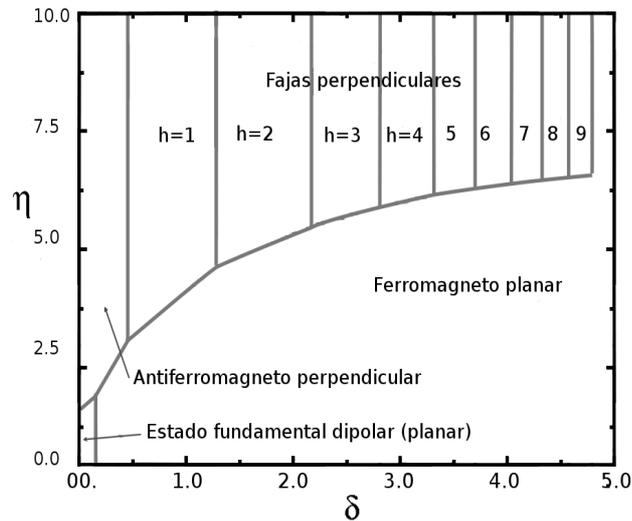


Figura 7.4: Diagrama de fases a temperatura nula en el plano (η, δ) . h indica el ancho de las fajas de espines con dirección perpendicular a la muestra. El gráfico ha sido adaptado de la publicación [78].

Además, estos mismo autores realizan estudios numéricos mediante simulaciones de Monte Carlo del diagrama de fases a temperatura finita, para el parámetro $\delta = 3$, que mostramos en la figura 7.5. Del estudio del estado fundamental se ve que para el valor del parámetro $\delta = 3$ el sistema se ordena en fajas de ancho $h = 4$ para anisotropía alta, y como ferromagneto planar a anisotropía baja, siendo el punto de transición $\eta_c = 5,8$. Según el diagrama de fases a temperatura finita vemos que hay una región donde el sistema sufre una transición del estado ferromagnético planar a bajas temperaturas a un estado de fajas con los espines perpendicular al plano a temperaturas mayores. Es decir, la línea de Transición Reorientación tiene una pendiente negativa en el plano (η, T) . Este resultado es contrario a lo que se observa experimentalmente, ya que las mediciones muestran una reorientación de espines perpendiculares al plano a bajas temperaturas a espines paralelos al plano a temperaturas mayores, como vimos ya en este capítulo. En el próximo capítulo mostraremos nuestros resultados originales del estudio del diagrama de fases y la transición de reorientación, y veremos que estos resultados obtenidos por Maclsaac y colaboradores eran erróneos.

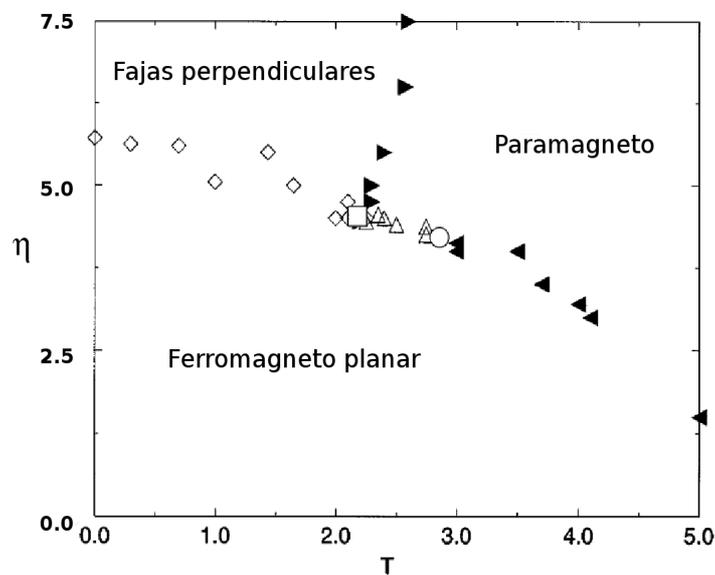


Figura 7.5: Diagrama de fases en el plano (η, T) para $\delta = 3$, obtenido por Maclsaac y colaboradores [78].

Resumiendo, en este capítulo hemos presentado una introducción sucinta a la física de las películas magnéticas ultra-delgadas cubriendo tanto sus aspectos fenomenológicos como los estudios teóricos. En particular, hemos introducido el modelo microscópico descrito por el Hamiltoniano adimensional (7.8) que será objeto de nuestro estudio en el próximo capítulo.

Diagrama de fases y transición de reorientación

En este capítulo presentaremos los resultados originales de nuestro estudio termostadístico del modelo de películas magnéticas ultra-delgadas [4] presentado en el capítulo anterior y cuyas propiedades físicas, tanto micro como macroscópicas, describimos en el capítulo 7. Nos limitaremos a analizar dos fenómenos básicos y llamativos observados en algunas películas magnéticas ultradelgadas: el origen del orden de fajas observado a bajas temperaturas, y la naturaleza de la transición de reorientación y su dependencia con el parámetro de anisotropía cristalina. Quedan pendientes para futuros trabajos, el estudio de fenómenos dinámicos tales como la dinámica de relajación en las diferentes fases y su dependencia con la historia de la muestra, los efectos de campos magnéticos externos (dc y ac) como así también la inclusión de ingredientes más realistas, como por ejemplo multicapas atómicas, rugosidad y desorden posicional.

Las simulaciones numéricas fueron realizadas usando el algoritmo de Metrópolis (ver Apéndice A) con actualización aleatoria y asincrónica de espines (es decir, de a un espín por vez), y las condiciones periódicas de contorno se implementaron de acuerdo al método de las *Sumas de Ewald* (ver Apéndice B). El hecho de que las interacciones dipolares sean de largo alcance, hace que los efectos de tamaño finito sean realmente muy significativos.

Como el decaimiento de las interacciones dipolares es lento, se suele aplicar el método llamado Sumas de Ewald, que básicamente consiste en realizar varias *réplicas* del sistema, pero descomponer la suma en la energía (que recordemos es entre todos los pares de espines, y ahora incluyendo también los de las réplicas) en un conjunto de series rápidamente convergentes que se pueden truncar con seguridad. En este sentido hemos realizado los cálculos analíticos para el caso bidimensional (y lo extendimos al caso de varias capas y de tres dimensiones para futuros trabajos), y se confeccionó el algoritmo que calcula la matriz de las sumas. En el Apéndice B se detallan los cálculos realizados para cada uno de los tres casos mencionados.

Todos los resultados que presentamos en este capítulo se obtuvieron para el caso $\delta = 3$, pero los verificamos también para algunos otros valores a fin de confirmar la validez general de los mismos para un amplio intervalo de δ . Como discutimos en el capítulo anterior, el espesor de la película está íntimamente relacionado al término de anisotropía cristalina y en general se puede considerar que el primero es inversamente proporcional al segundo. De esta manera, como veremos al final del capítulo, a través del parámetro $\eta = \kappa/J_2$ podemos simular el espesor de la película.

Del estudio del estado fundamental del sistema se conoce que para $\delta = 3$ y en el límite de anisotropía infinita (en el cual las variables de Heisenberg se transforman en variables de Ising) el sistema se ordena formando fajas de ancho $h = 4$. En el otro extremo, para anisotropía nula, el sistema se ordena en un estado ferromagnético planar de degeneración infinita. Los estudios de Maclsaac y colaboradores [78] referidos al diagrama de fases a temperatura nula muestran que la transición entre esos dos estados ocurre a $\eta = 5,8$, y éste es entonces el único punto que tenemos del diagrama de fases que deseamos construir.

Para obtener las diferentes fases termodinámicas y sus líneas de transición a temperatura finita analizamos a lo largo de este capítulo diferentes cantidades macroscópicas, que describimos a continuación.

En primer lugar, calculamos la magnetización perpendicular al plano de la película, definida como:

$$M_z \equiv \frac{1}{N} \sum_{\vec{r}} \langle S^z(\vec{r}) \rangle . \quad (8.1)$$

En segundo lugar la magnetización paralela al plano definido por la película:

$$M_{||} \equiv \sqrt{(M_x)^2 + (M_y)^2}, \quad (8.2)$$

y finalmente el parámetro de orden orientacional introducido por Booth y discutido ya en el capítulo 6 [46]:

$$O_{hv} \equiv \left\langle \left| \frac{n_h - n_v}{n_h + n_v} \right| \right\rangle, \quad (8.3)$$

donde las variables n_h y n_v representan el número de pares de espines próximos (primeros vecinos) con componentes z antialineadas, tanto en sentido horizontal como vertical, respectivamente. Es decir

$$n_h = \frac{1}{2} \sum_{\vec{r}} \{1 - \text{signo}[S^z(r_x, r_y) \cdot S^z(r_x + 1, r_y)]\}, \quad (8.4)$$

y de forma equivalente podemos definir n_v .

También calculamos el calor específico:

$$C_v \equiv \frac{1}{NT^2} \left(\langle H^2 \rangle - \langle H \rangle^2 \right), \quad (8.5)$$

y el valor promedio de la magnetización perpendicular al plano definido por la película,

$$P \equiv \frac{1}{N} \sum_{\vec{r}} \langle |S^z(\vec{r})| \rangle. \quad (8.6)$$

En todas estas definiciones, N es el número total de espines de la red, o sea, $N = L \times L$, y el símbolo $\langle \dots \rangle$ representa un promedio térmico sobre diferentes realizaciones (o sea, diferentes simulaciones usando diferentes secuencias de números aleatorios).

Protocolos Numéricos:

Para obtener el diagrama de fases T vs. η analizamos el comportamiento de las cantidades recién definidas fijando el valor de η y variando T , o viceversa. Todas las curvas fueron obtenidas usando dos protocolos diferentes.

1. Para analizar las propiedades de equilibrio se inicializó el sistema en cierta configuración cercana al equilibrio termodinámico y el parámetro independiente (T o η) varía

discretamente. La configuración inicial para cada valor del parámetro independiente se tomó como la última del valor previo. Se dejó el sistema evolucionar t_e pasos Monte Carlo sin calcular cantidad alguna a fin de dejar termalizar el sistema en su nuevo estado, y luego se promedió durante t_m PMC cada una de las cantidades definidas previamente. Un paso Monte Carlo se define como el ciclo completo de N intentos de actualizar un espín de acuerdo al algoritmo de Metropolis. Estudiamos los valores adecuados de t_e para garantizar que el sistema estuviera adecuadamente termalizado y de este estudio surgieron valores aproximados a los 10^5 PMC. Los valores de t_m utilizados variaron entre 10^3 y 10^4 PMC, dependiendo de la región del diagrama de fases considerada.

2. Para analizar la posible existencia de efectos de histéresis usamos procedimientos de enfriamiento y calentamiento, variando la temperatura en cada paso Monte Carlo de acuerdo a la relación lineal $T(t) = T(0) \pm rt$, donde T_0 es la temperatura inicial de la experiencia numérica, t es el tiempo medido en PMC y r es la razón lineal de variación, siempre independiente de t . En todos los casos, antes de comenzar el enfriamiento o el calentamiento, dejamos el sistema termalizar durante t_e PMC a partir de cierta configuración inicial adecuadamente escogida como para acelerar esta inicialización. En este protocolo guardamos la evolución temporal completa de la o las cantidades medidas.

Salvo cuando se aclare lo contrario, las mediciones realizadas incluyen promedios sobre diferentes realizaciones térmicas (típicamente entre 50 y 100 promedios).

8.1. El diagrama de fases

Vamos a comenzar presentando en la figura 8.1 el diagrama de fases termodinámico completo en el plano (T, η) . Las diferentes líneas de transición se obtuvieron midiendo más de una cantidad, como se indica en la figura con diferentes símbolos y como veremos en las próximas secciones.

Como se puede observar, todas las líneas son suficientemente suaves, dando confia-

bilidad a la calidad de los datos obtenidos. Podemos distinguir tres diferentes fases: fajas perpendiculares para bajas temperaturas y alta anisotropía, ferromagneto planar para bajas temperaturas y baja anisotropía y paramagnético para altas temperaturas.

En las próximas secciones analizaremos cada una de las líneas de transición termodinámicas y las diferentes fases observadas que mostramos en este gráfico, y sobre el cual volveremos en varias oportunidades.

8.2. La transición de reorientación de espín

Como dijimos al inicio de este capítulo, uno de los objetivos del trabajo aquí presentado consistió en analizar numéricamente la transición de reorientación de espín (TRE) observada experimentalmente en sistemas de películas magnéticas ultra-delgadas, donde los espines pasan de estar orientados perpendicularmente al plano de la película a estar paralelos al él.

Para analizar esta transición calculamos el parámetro de orden orientacional O_{hv} , la magnetización perpendicular al plano M_z y la magnetización planar $M_{||}$ para diferentes valores de η . Recordemos que a $T = 0$ la transición ocurre para $\eta = 5,8$, por lo que trabajamos con valores cercanos a éste; si observamos la TRE para valores menores a éste, estaremos viendo en el plano (T, η) una pendiente de la línea de transición negativa, como la que observaron Maclsaac y colaboradores (figura 7.5), mientras que si la encontramos para valores de $\eta > 5,8$ la pendiente de la línea será positiva.

En el gráfico 8.2 mostramos las cantidades recién mencionadas para $\eta = 6,5$ en función de la temperatura T , para un sistema de tamaño $N = 40 \times 40$. Estos datos corresponden a promedios térmicos sobre más de 50 muestras obtenidas equilibrando el sistema en cada paso.

Podemos ver que a temperaturas bajas el sistema está ordenado formando fajas con la dirección de los espines perpendicular al plano de la muestra, ya que el parámetro de orden orientacional O_{hv} es cercano a uno (recordemos que la definición del parámetro sólo incluye la componente z de los espines), mientras que tanto $M_{||}$ como M_z son nulas. A $T \approx 0,8$ se

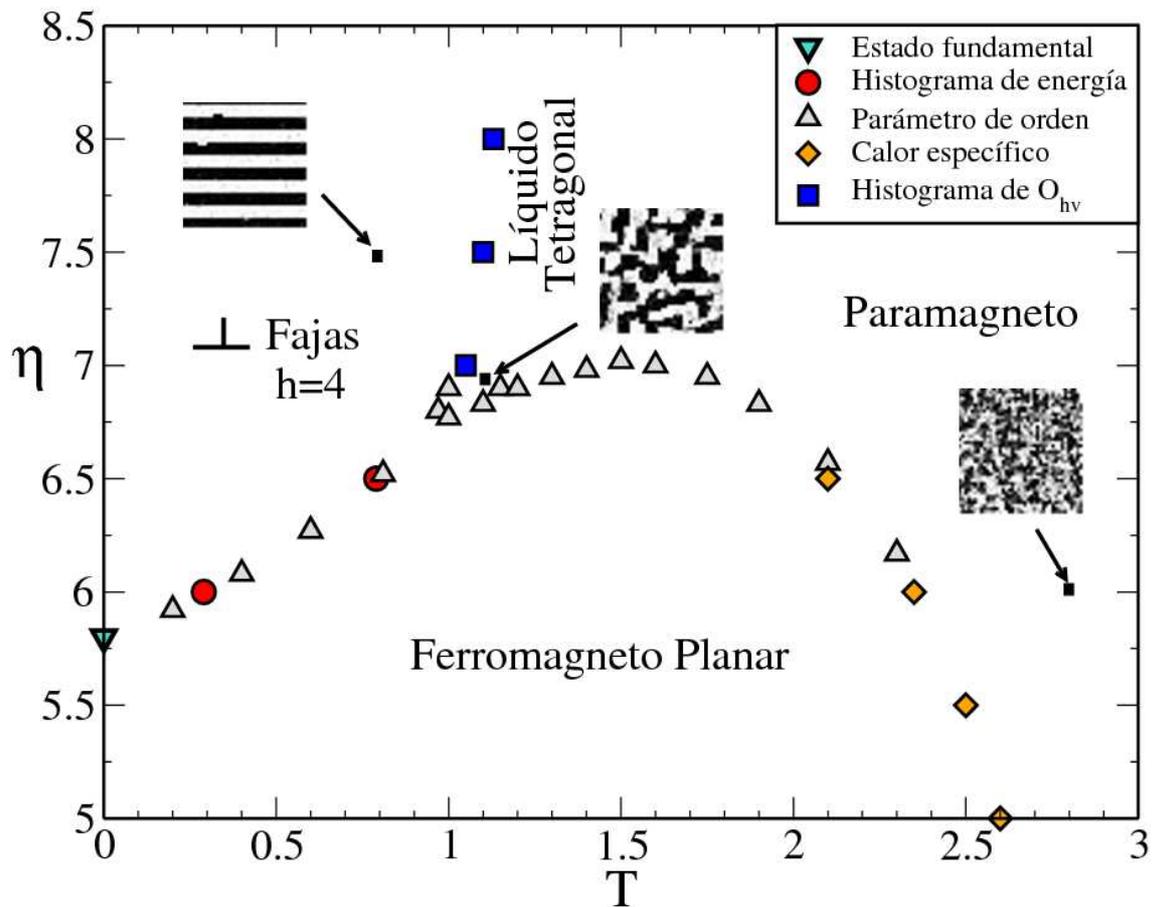


Figura 8.1: Diagrama de fases en el plano (T, η) para $\delta = 3$. Los diferentes símbolos corresponden a diferentes métodos de cálculo de las líneas de transición: triángulo hacia abajo (verde): cálculos de estado fundamental [78]; círculo (rojo): cálculos del histograma de energía; triángulo hacia arriba (blanco): cálculo de equilibrio y no equilibrio de los parámetros de orden; rombo (amarillo): simulación del calor específico. Se muestran además configuraciones típicas de cada una de las fases encontradas.

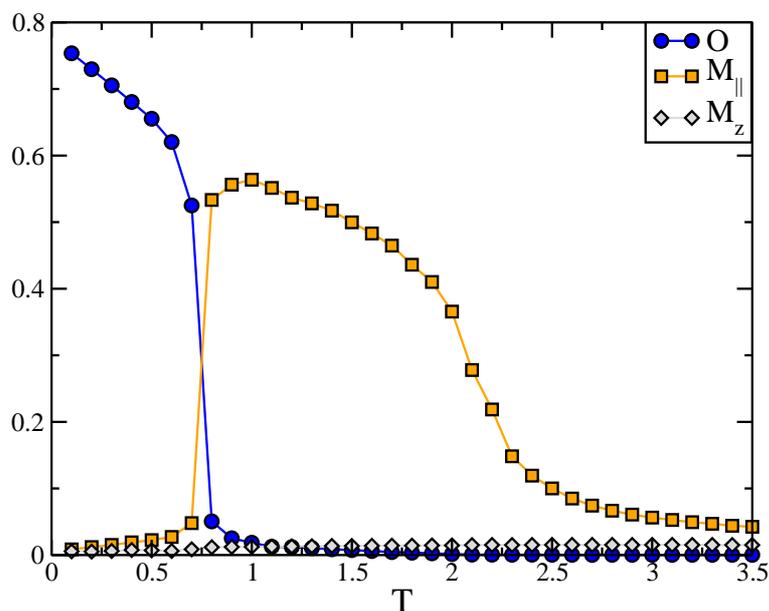


Figura 8.2: Parámetro de orden O_{hv} , magnetización planar $M_{||}$ y magnetización perpendicular M_z , todas en función de la temperatura T para $\delta = 3$, $\eta = 6,5$ y $L = 40$. El sistema fue inicializado a una temperatura finita, termalizado a $T = 6$ y luego enfriado termalizando en cada nueva temperatura.

produce la transición de reorientación de los espines, ya que el parámetro O_{hv} decae a cero y la componente M_z sigue siendo nula, pero ahora la componente de la magnetización paralela al plano crece notablemente, indicando que los espines se *acostaron* paralelos al plano de la película. Resultados similares obtuvimos para $6,0 \leq \eta < 7$ indicando que éste es el rango donde ocurre la transición de reorientación.

También realizamos el cálculo de los parámetros O_{hv} y $M_{||}$ a temperatura fija y variando η , en la misma región. En la figura 8.3 mostramos ciclos de estos parámetros variando la anisotropía η para una temperatura fija $T = 0,6$. Los ciclos se realizaron termalizando el sistema a $\eta = 7,5$ (fases de fajas), luego se hizo disminuir η con una tasa de $r = 10^{-5}$ hasta el valor mínimo, y luego crecer nuevamente con la misma tasa. Las curvas muestran un fuerte efecto de histéresis sugiriendo que podría tratarse de una transición de primer orden. Para confirmar esta hipótesis calculamos el histograma de energía para temperaturas muy cercanas a la temperatura de transición obtenida mediante el parámetro de orden orientacional. En la figura 8.4 podemos ver los histogramas de energía para $\eta = 6,5$ y dos valores

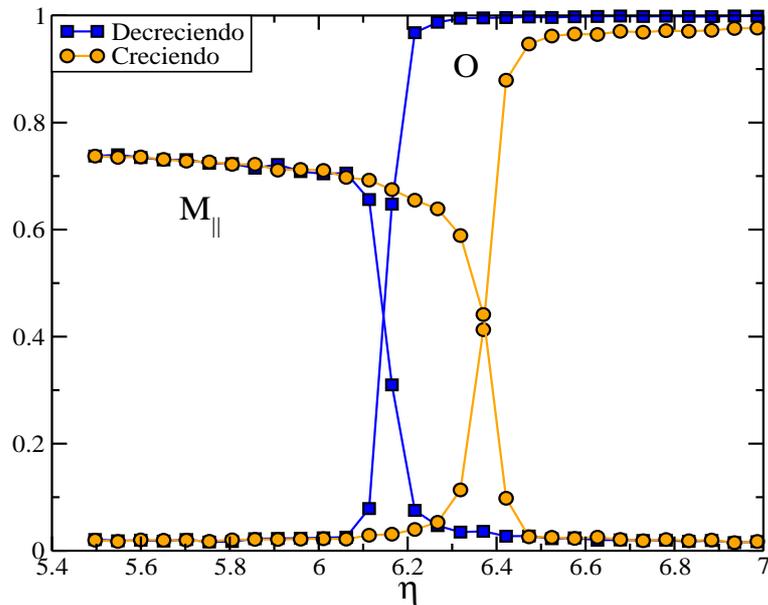


Figura 8.3: Parámetro de orden O_{hv} y magnetización planar $M_{||}$ como función del parámetro η para $\delta = 3$ y $T = 0,6$. El sistema fue inicializado en una configuración de fajas de ancho 4, termalizado a $\eta = 7,5$ y luego η disminuyó y creció en un ciclo cerrado a un tasa lineal $r = 10^{-5}$.

de temperatura, que muestran el cambio de estabilidad entre la fases de fajas y planar, confirmando la naturaleza discontinua de esta línea de transición de reorientación de espines, como fue predicho teóricamente por otros autores [79, 80].

Hemos entonces obtenido la línea de transición de reorientación de espín para $\delta = 3$, cuya pendiente es positiva en el plano (T, η) indicándonos que *el sistema pasa de un estado con los espines perpendiculares al plano de la película a una configuración con los espines paralelos al plano, a medida que la temperatura aumenta*. Nuestros resultados concuerdan con estudios teóricos realizados con teoría de perturbaciones y con análisis de grupo de renormalización donde puede verse que al aumentar la temperatura los efectos de las fluctuaciones térmicas renormalizan las constante de acoplamientos (J, κ, g) haciéndolas más débiles, de forma tal que la anisotropía se debilita más rápidamente que la interacción dipolar (incluso si $\kappa(T = 0) > g(T = 0)$). Por lo tanto $\kappa(T)$ se vuelve menor que $g(T)$ y como consecuencia se establece el estado de espines paralelos al plano ya que la interacción dipolar lo favorece. El desarrollo de estos parámetros en función de la temperatura permite

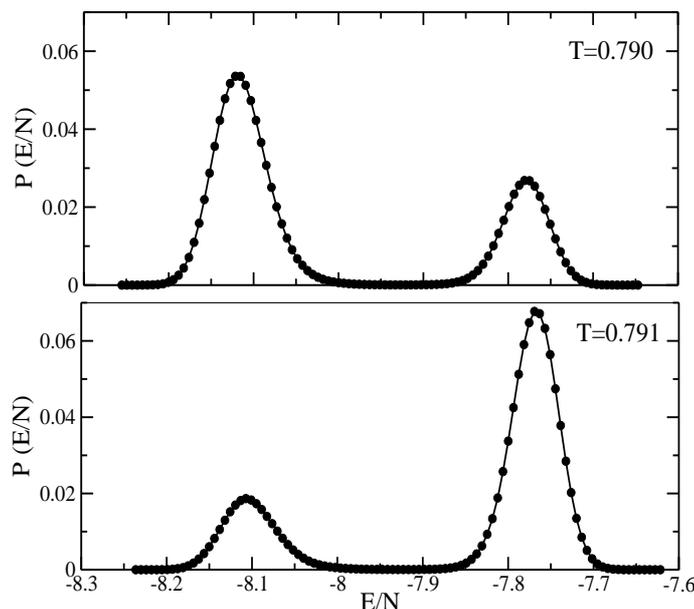


Figura 8.4: Histograma de la energía por espín para $\delta = 3$, $\eta = 6,5$ y $T = 0,790$ (arriba) y $T = 0,791$ (abajo). Los histogramas se calcularon utilizando 30×10^6 valores de la energía medidos a lo largo de una única simulación Monte Carlo.

predecir una dependencia lineal en la línea de transición de reorientación del parámetro η con la temperatura T , con pendiente positiva tal como muestran nuestros cálculos, y al contrario de lo encontrado en [78] por Maclsaac y colaboradores (resultados que ya mostramos en el capítulo anterior en la figura 7.5). Nuestros resultados también concuerdan con las observaciones experimentales, como vimos en el capítulo 7.

Habiendo ya determinado la TRE, nos quedan por estudiar las transiciones de la fase de fajas a $\eta > 7$ (ya que observamos que aquí termina la región de reorientación) y también de la fase ferromagnética planar a $\eta < 7$, hacia fases que suponemos, en ambos casos desordenadas, ya que se está aumentando la temperatura.

8.3. La transición fajas-tetragonal

Para obtener esta línea de transición calculamos el parámetro de orden de fajas O_{hv} para valores de $\eta > 7$. En el gráfico 8.5 se muestra este parámetro de orden orientacional

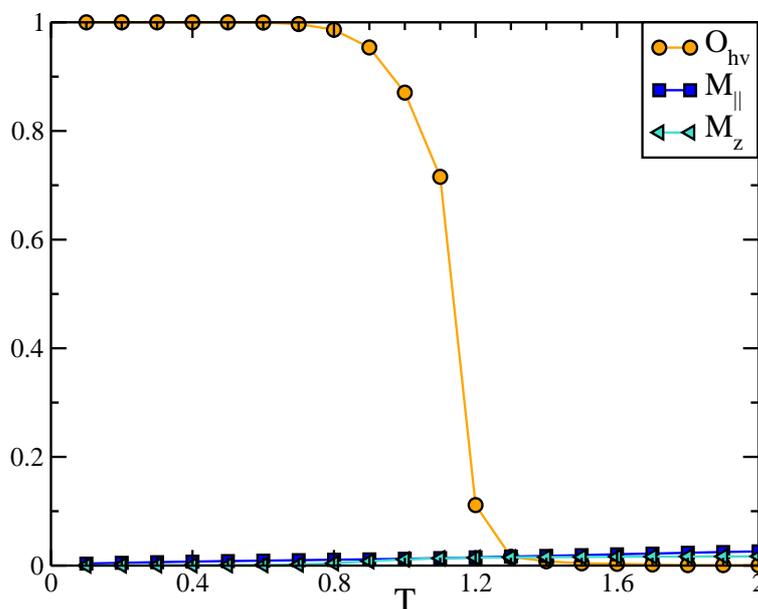


Figura 8.5: Parámetro de orden O_{hv} , M_z y $M_{||}$ en función de la temperatura T para $\eta = 9,0$.

simultáneamente con M_z y $M_{||}$ en función de la temperatura para $\eta = 9,0$. Podemos ver que a temperaturas bajas el sistema se ordena formando fajas, y a $T \approx 1,1$ este orden se desestabiliza, pero a diferencia de lo que ocurre en la TRE mostrada en la sección anterior, aquí tanto M_z como $M_{||}$ se mantienen nulas.

Una vez obtenidas las temperaturas de transición para algunos valores de η nos concentramos en obtener el histograma del parámetro O_{hv} a temperaturas cercanas al punto de transición. En la figura 8.6 mostramos uno de estos cálculos, obtenidos para $\eta = 7,5$ y tres temperaturas diferentes, $T = 1,07$; $1,10$ y $1,13$. Vale destacar que cada curva corresponde a una única simulación muy larga, a fin de evitar en este caso particular efectos de promediación. En esta figura vemos evidencia de la presencia de una transición de fase de primer orden a una temperatura $T \approx 1,10$. Observemos que para la temperatura más alta, $T = 1,13$, el parámetro de orden tiene su moda en el valor cero y presenta una distribución bastante ancha pero con forma normal. Esto nos indica que el sistema se encuentra en un estado con bajo orden de fajas. En el otro extremo, para la menor temperatura considerada, $T = 1,07$, el pico se ha desplazado a un valor nítidamente distinto de cero ($\bar{O}_{hv} \approx 6,5$),

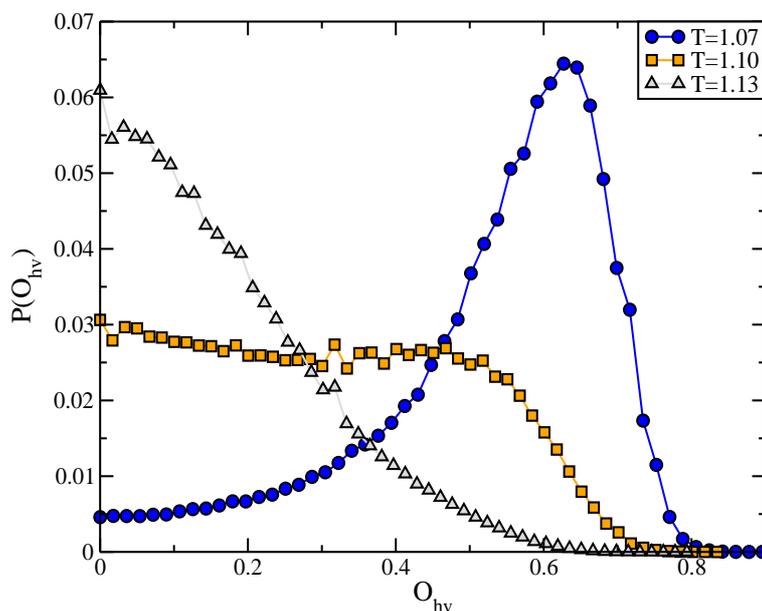


Figura 8.6: Histograma del parámetro de orden O_{hv} por espín para $\eta = 7,5$ y tres temperaturas diferentes. Los histogramas fueron calculados con 30×10^6 valores de la energía a lo largo de cada corrida.

señalando la existencia de orden de fajas. En la temperatura intermedia ($T = 1,10$) en cambio, vemos una distribución ancha, indicando coexistencia de ambas soluciones.

Este resultado es contradictorio con el presentado por Maclsaac y colaboradores en la referencia [78], pues ellos encontraron (utilizando el mismo modelo y con una dinámica equivalente) una línea de segundo orden. El hecho de que esta transición sea de primer orden coincide con recientes resultados numéricos obtenidos para el modelo de Ising [75], o sea, en el límite de anisotropía infinita ($\eta \rightarrow \infty$). En otras palabras, es de esperar que para valores altos de η nuestros resultados coincidan con aquellos obtenidos con el modelo de Ising.

La aparición de una fase de fajas perpendiculares al plano en películas magnéticas ultra-delgadas a bajas temperaturas en materiales fuertemente anisotrópicos (FE/Cu(100)) y la aparición de una fase tetragonal al subir la temperatura, fue encontrada por Vaterlaus y colaboradores [81]. Incluso Abanov *et al.* [77] introdujeron un modelo teórico capaz de predecir la existencia de una fase con simetría de 90° , inducida por la simetría subyacente de la red cristalina. Este modelo funciona muy bien en el límite de anisotropía infinita

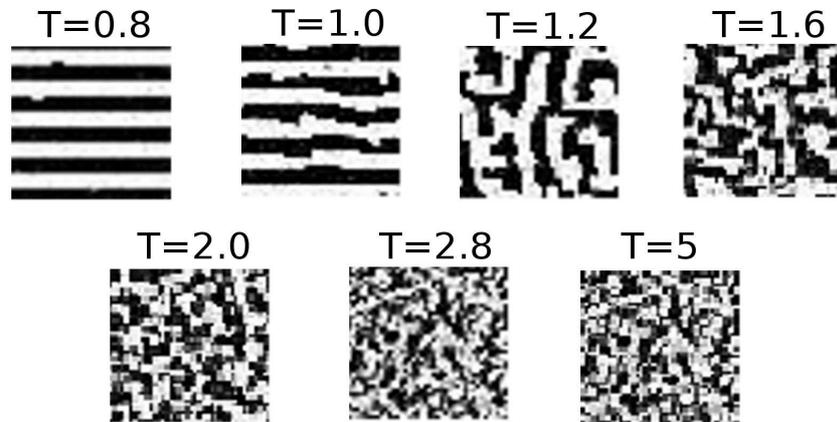


Figura 8.7: Fotos instantáneas a diferentes temperaturas de la componente S_z de los espines de un sistema de tamaño $L = 40$ para $\eta = 7,5$. Negro corresponde a $S_z = 1$ y blanco a $S_z = -1$. En la figura se indican las diferentes temperaturas.

($\eta \rightarrow \infty$) donde la componente perpendicular al plano es la más relevante. Y éste es el escenario encontrado por nosotros, ya que la transición de la fase de fajas a la paramagnética está mediada por una *fase tetragonal*. Esto lo podemos evidenciar en la figura 8.7 (a) en la que mostramos fotos instantáneas de la componente z de los espines de un sistema de $L = 40$ para diferentes temperaturas, a $\eta = 7,5$. El color negro representa espines con $S_z = 1$ y blanco $S_z = -1$. Cubrimos un amplio rango de temperatura, desde $T = 0,8$ en la fase de fajas, hasta $T = 2,8$ en plena fase paramagnética. Podemos ver que a $T = 0,8$ y $1,0$ las fajas están bien formadas, mientras que a $T = 1,2$ la configuración ha perdido el orden de fajas y ha evolucionado a un orden con simetría de 90° . A medida que la temperatura aumenta se va perdiendo la simetría de ángulos rectos, aunque es notable que los espines se mantienen con una componente z bastante alta (la figuras se mantienen en negros y blancos) y recién a partir de $T = 2,6$ se hace un poco más visible el color gris, indicando que la componente z ha disminuido.

En conclusión, hemos observado que el modelo pasa de una fase de fajas con la dirección de los espines perpendicular la muestra a una fase tetragonal también con dirección perpendicular mediante una transición de primer orden y desde allí evoluciona continua-

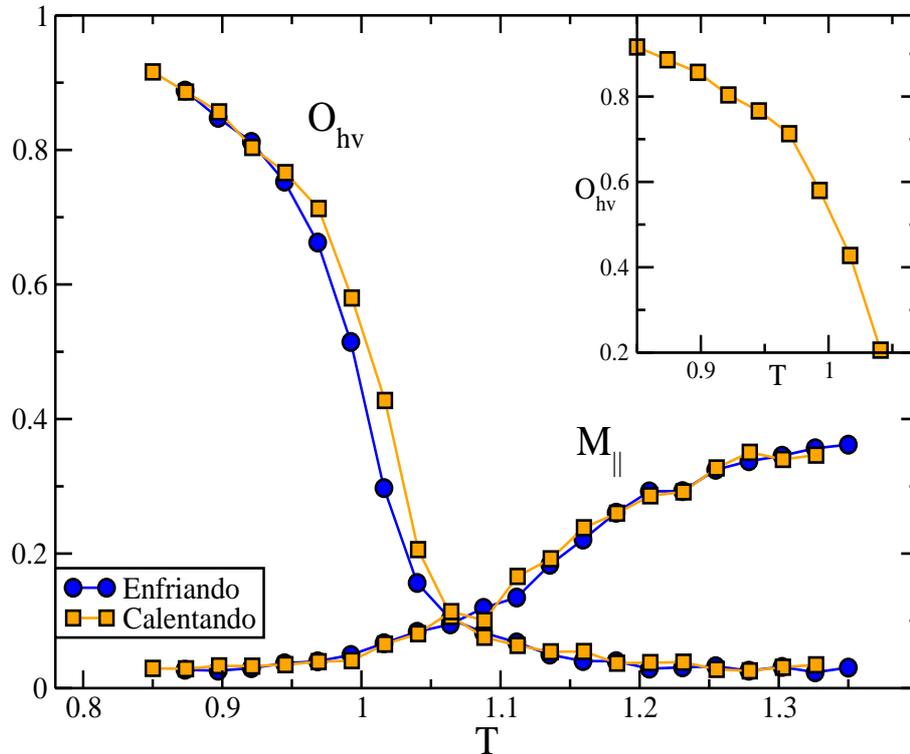


Figura 8.9: Parámetro de orden O_{hv} y magnetización paralela al plano definido por la película $M_{||}$ en función de la temperatura para $\delta = 3$ $\eta = 6,9$. El sistema fue primero termalizado a $T = 1,4$, enfriado con una tasa lineal $r = 10^{-7}$ y luego calentado otra vez con la misma tasa. Las barras de error son del mismo orden del tamaño de los símbolos. El gráfico interno muestra una ampliación de la curva de calentamiento.

de $r = 10^{-7}$. Notemos que la transición fajas-tetragonal presenta muy poco efecto histérectico, indicando que puede tratarse de una transición de primer orden débil que involucra poco calor latente.

Pero lo más importante es observar que en el rango de temperaturas entre $1,03 < T < 1,15$ los valores de el parámetro O_{hv} y de $M_{||}$ son bajos, lo que nos indica la existencia de un *gap* donde no se mide magnetización. Como vimos, este tipo de resultado fue encontrado en experimentos en películas ultra-delgadas de Fe/Cu(100) por Pappas y colaboradores [57], quienes encontraron un *gap* en la magnetización entre la fases perpendicular y planar. No obstante, en aquellos primeros experimentos no estaba muy clara la naturaleza del *gap* observado. Los propios autores apuntaban en el trabajo dos posibilidades: la existencia de

un verdadero *gap*, lo cual no deja de ser sorprendente pues significaría que el sistema se desordena a medida que se baja la temperatura, o un problema de resolución en la medición ya que las fajas podrían estar por debajo de la capacidad de identificación, marcando magnetización nula cuando en realidad hay orden de fajas. En este sentido es sugestivo el hecho de que los autores de aquel trabajo se referían a muestras con magnetización finita a bajas temperaturas, y no a fases con fajas. Allenspach y colaboradores [61] confirmaron esta segunda hipótesis para el mismo tipo de muestras analizadas originalmente por Pappas y colaboradores [57]. En un trabajo más reciente, Won y colaboradores [82] analizaron la formación de dominios magnéticos y la naturaleza de la transición de reorientación en películas ultra-delgadas de Fe/Ni/Cu(001) usando imágenes obtenidas con Microscopía de Fotoemisión de Electrones de alta resolución [82]. Ellos observaron dos tipos de mecanismos, dependiendo del grosor de la película: una transición de reorientación directa y una transición mediada por un *gap* paramagnético. En este último caso los autores no excluyen la posibilidad de que el *gap* sea ficticio y debido a dominios muy delgados que se mueven muy rápidamente.

En nuestras simulaciones (por ejemplo para $\eta = 6,9$) el *gap* de magnetización se origina en la aparición de la fase tetragonal. Esto queda claro explorando configuraciones microscópicas, como las que se muestran en la figura (8.10). No obstante, en un experimento el instrumento no capta una configuración microscópica instantánea sino en realidad un promedio temporal de muchas de ellas. Para emular en forma más realista la adquisición de las imágenes por medio de técnicas de Fotoemisión de Electrones, calculamos el promedio temporal de la magnetización local:

$$\overline{m}_\tau(\vec{r}) \equiv \frac{1}{\tau} \sum_{t=1}^{\tau} S^z(\vec{r}, t), \quad (8.7)$$

para diferentes valores del *tiempo de adquisición* τ , donde todos los tiempos están medidos en PMC.

En la figura 8.10 (a) mostramos el resultado numérico de simular $\overline{m}_\tau(\vec{r})$ en un sistema de $L = 40$, para $\eta = 6,9$, dos temperaturas ($T = 0,9$ y $T = 1,1$) y cuatro valores diferentes de τ ($\tau = 1$ corresponde a una foto instantánea). Al igual que en las fotos mostradas anteriormente, negro corresponde a $S_z = 1$ y blanco a $S_z = -1$. La falta de contraste en la

fase tetragonal para valores relativamente cortos de τ muestra que el tiempo característico para las fluctuaciones en esta fase es mucho menor que en la fase de fajas, en donde el contraste se mantiene prácticamente igual para todos los tiempos τ . Es decir, que si bien el sistema se ordena en un estado tetragonal, los dominios se están moviendo constantemente, y en consecuencia si miramos una foto donde se ha promediado la imagen en el tiempo, ésta pierde contraste. Es por esto que a esta fase la podemos llamar *líquido tetragonal*.

En la figura 8.10 (b) mostramos una foto instantánea de un sistema de tamaño $L = 20$ (el tamaño es menor para poder tener una mejor imagen de los vectores) para $\eta = 6,9$ y $T = 1,1$, es decir en la zona tetragonal antes de la reentranza. Podemos ver que no hay un orden establecido de esta componente de los espines y que, en general, ésta es muy pequeña ya que como vimos en la foto de (a) para $\tau = 1$ los espines están preferentemente orientados en la dirección z .

Orden nemático

Volviendo a la figura 8.9, en el gráfico insertado se destaca la presencia de un pequeño hombro en la curva del parámetro de orden orientacional. Este efecto es más marcado en las realizaciones individuales y se suaviza al presentar el promedio térmico, como es el caso en la figura 8.9. El mismo efecto aparece también para valores grandes de η . Esto deja abierta la posibilidad de que se trate una transición de fase de segundo orden como la predicha por Abanov et al. [77] desde una fase nemática con orientación perpendicular al plano, la cual existiría entre la fase de fajas de baja temperatura y la fase tetragonal. Esta fase nemática estaría caracterizada por orden orientacional de largo alcance pero carecería de orden posicional, al contrario de lo que sucede en la fase de fajas. Existen evidencias fuertes previas de la existencia de esta transición para valores grandes de η presentadas en un estudio reciente llevado a cabo numéricamente en el límite $\eta \rightarrow \infty$ utilizando la versión uniaxial (Ising) de este modelo [74], como así también de análisis teóricos de la transición nemática en sistemas bidimensionales con interacciones competitivas [83, 84].

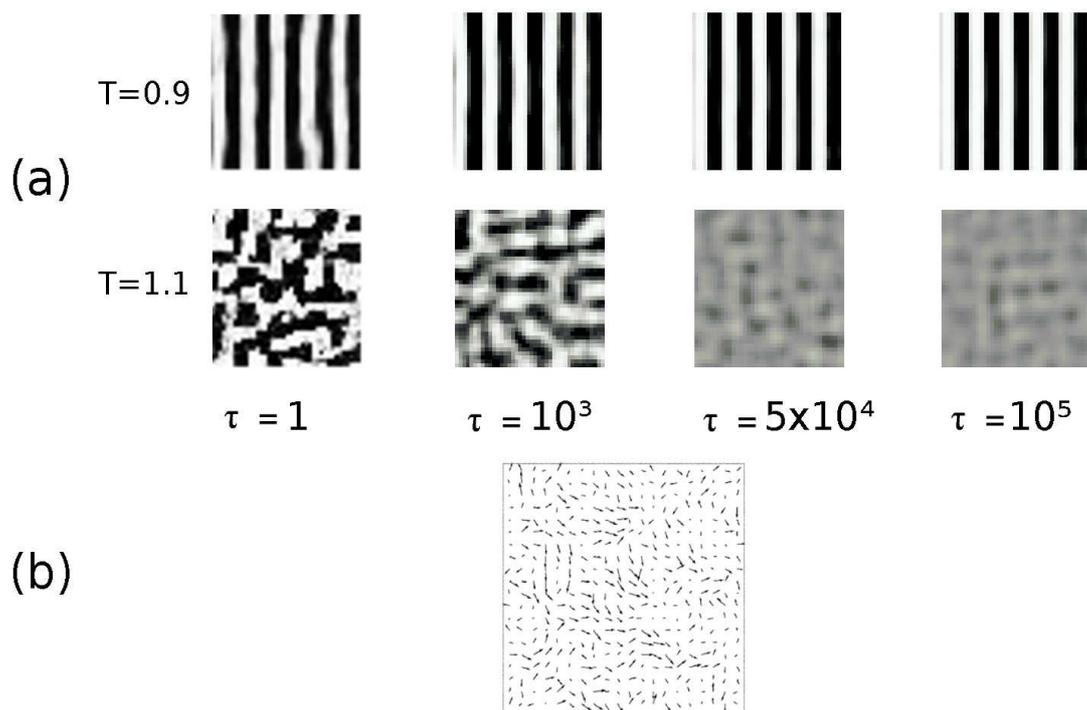


Figura 8.10: (a): Promedio temporal de la magnetización local perpendicular al plano definido por la película $\overline{m}_\tau(\vec{r})$ para $\eta = 6,9$, $L = 40$ y diferentes tiempo de promediación τ (todos los tiempos son medidos en PMC, y $\tau = 1$ corresponde a una foto instantánea). Antes de comenzar a calcular el promedio temporal el sistema fue termalizado durante $t = 10^5$ PMC a cada temperatura ($T = 0,9$ en la fase de fajas, y $T = 1,1$ en la fase tetragonal). (b): Foto instantánea de la componente planar de un sistema de tamaño $L = 20$ para $\eta = 6,9$ y $T = 1,1$, en la fase tetragonal.

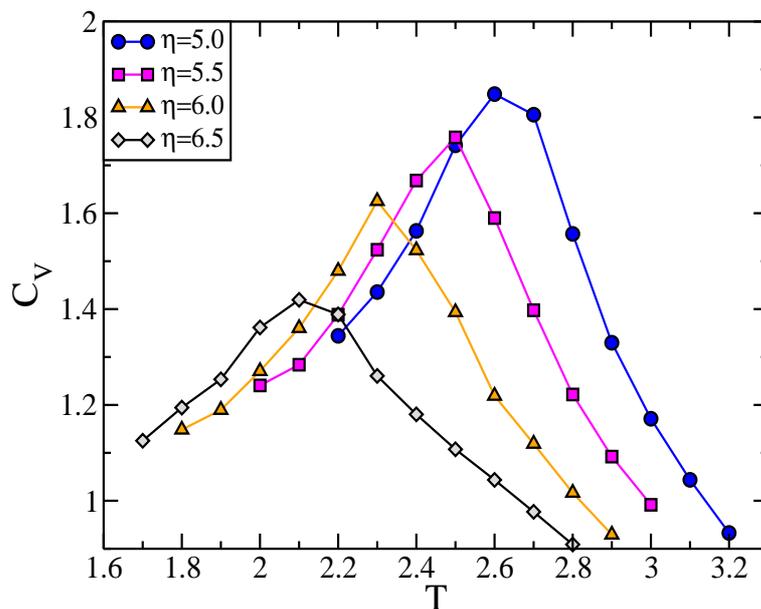


Figura 8.11: Calor específico para $\delta = 3$ y diferentes valores de η .

8.4. Transición Ferromagnético planar - Paramagnético

Para la determinación de esta línea de transición calculamos calores específicos y el parámetro de orden M_{\parallel} tanto en función de la temperatura (a η fijo) como en función de η a T fija. En la figura 8.11 se muestra el calor específico en función de la temperatura para diferentes valores de η .

Analizamos qué ocurre con la componente S_z de los espines en esta región del diagrama de fases, mediante el cálculo del valor promedio de la magnetización perpendicular al plano de la muestra P (ecuación 8.6) en función de η y para varios valores de temperatura. En la figura 8.12 se ve que para valores pequeños de η , bien dentro de la fase planar, los espines tienen siempre una componente perpendicular no nula, la cual crece continuamente con η a medida que el sistema sufre la transición de fase. En cierto punto cercano a $\eta_C = 6,8$, las curvas muestran un punto de inflexión a partir del cual la componente perpendicular tiende a saturar. Estos valores de η se desplazan lentamente hacia η menores a medida que aumenta la temperatura. No tenemos una interpretación muy clara de por qué todas estas curvas se cruzan en un mismo punto. Sería muy interesante analizar las paredes de dominios en la

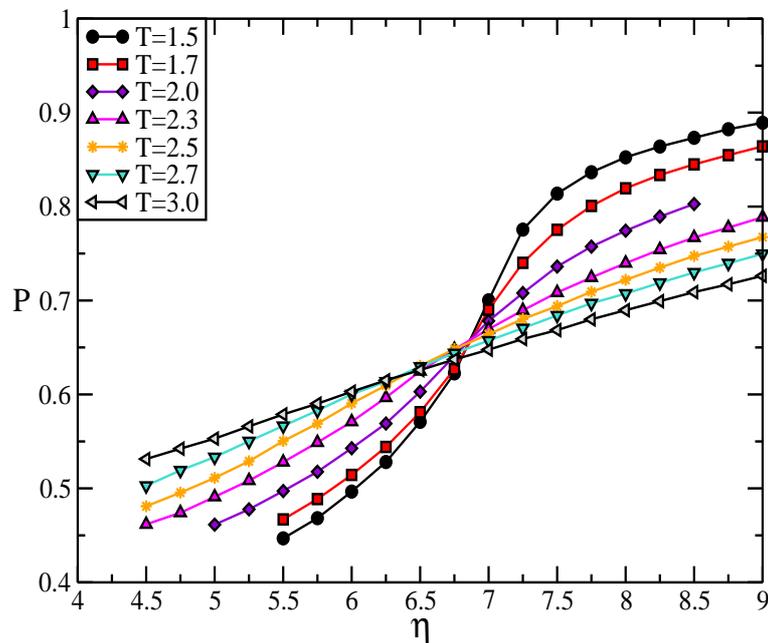


Figura 8.12: Valor medio de la magnetización absoluta P para diferentes temperaturas en función de η al atravesar la línea ferromagneto planar-paramagnético ($L = 24$).

fase paramagnética y cómo éstas influyen en la evolución de la magnetización perpendicular a medida que el sistema atraviesa la transición y entra en la fase ferromagnética planar. Uno hubiese esperado que la componente perpendicular de la magnetización local m_i^z se anule en esta región, pero no es lo que observa a la figura 8.12. A bajas temperaturas y para valores de $\eta < \eta_C$ (cuando la fase planar es estable) la componente perpendicular de la magnetización no es nula debido a que el modelo Heisenberg con anisotropía permite fluctuaciones perpendiculares al plano a temperatura finita. A medida que la temperatura aumenta hay más fluctuaciones y por lo tanto P aumenta (observar que en esta región del gráfico las curvas superiores corresponden a temperaturas mayores), hasta que el sistema entra en la fase paramagnética. Por otro lado, para $\eta > \eta_C$ a temperaturas bajas el sistema se encuentra en la fase tetragonal, y como los espines tienen dirección perpendicular a la muestra, P es prácticamente 1. A medida que aumentamos la temperatura el sistema evoluciona de la fase tetragonal a la fase paramagnética, disminuyendo la componente S_z de los espines, por lo tanto decreciendo P . En la figura 8.13 mostramos fotos instantáneas

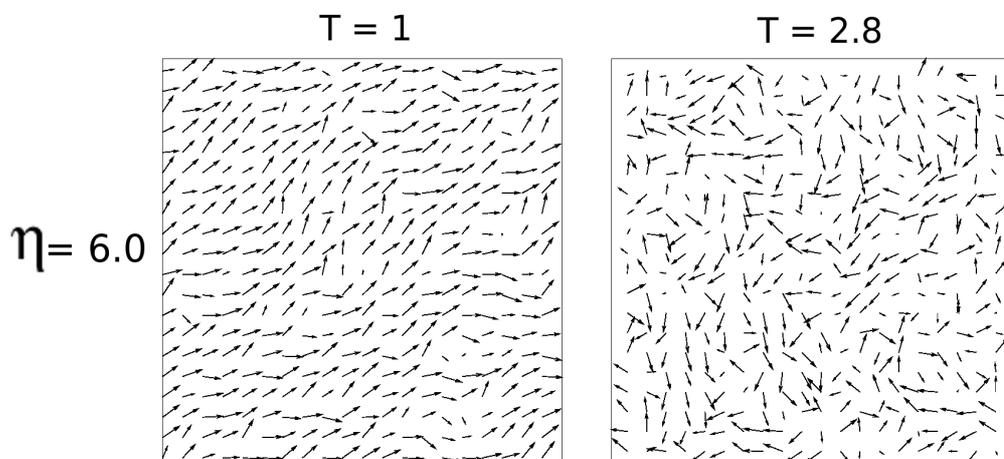


Figura 8.13: Fotos instantáneas de la componente planar de los espines para un sistema de tamaño $L = 20$ para $\eta = 6,0$ y dos temperaturas: $T = 1$ y $T = 2,8$, en las fases ferromagnética planar y paramagnética, respectivamente.

de la componente planar de los espines en un sistema de tamaño $L = 20$ para $\eta = 6,0$ y dos temperaturas. A $T = 1$ (en la fase de ferromagnética planar) vemos que los espines tienen una componente planar grande, y en general se encuentran paralelos entre sí. A $T = 2,8$ (en la fase paramagnética) no se observa orden ya que la dirección de los espines es aleatoria, y además los módulos de sus componentes planares varían sin un valor de preferencia. Hemos analizado también fotos de la componente planar de los espines del sistema para valores más altos de anisotropía, y se puede ver que si bien no se observa orden, ya que la dirección de los espines es aleatoria, la componente planar de la mayoría de los espines es en mucho mayor que en el caso de $\eta = 6,0$ mostrado en la figura 8.13. Por esto podemos decir que para valores altos de anisotropía ($\eta > 8$) y temperaturas, el sistema está en una fase paramagnética perpendicular. En el otro extremo, para valores pequeños de η el sistema está en una fase paramagnética planar. Para temperaturas suficientemente grandes debe recuperarse la simetría rotacional de la fase paramagnética.

Volviendo al diagrama de fases 8.1, vemos que la línea de transición de ferromagneto

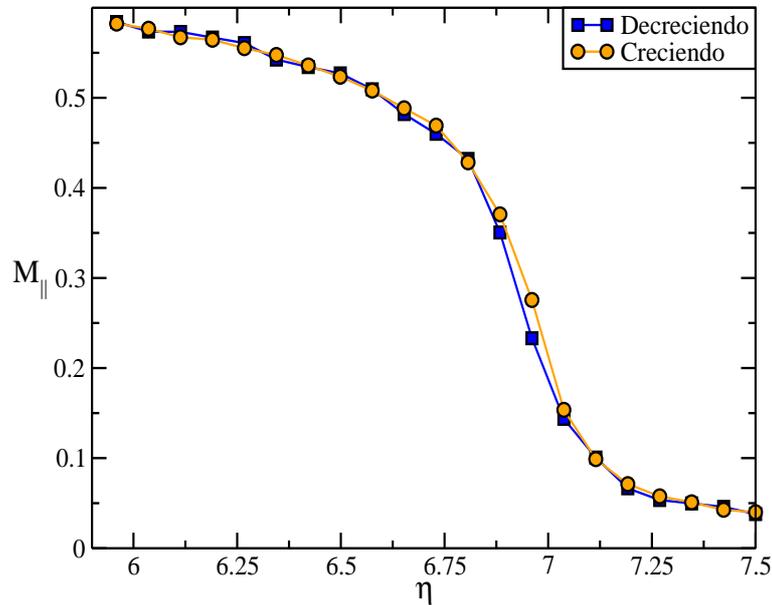


Figura 8.14: $M_{||}$ en función de η para una temperatura fija $T = 1,3$.

planar a paramagnético muestra un máximo alrededor de $\eta \sim 7$ y $T = 1,5$ en el plano (η, T) . Nos podemos preguntar si este máximo está asociado a un cambio cualitativo en la transición entre la región a su izquierda y la región a su derecha. Sabemos que para valores muy bajos de η (sistema casi isotrópico) el sistema pasa de la fase planar a la paramagnética continuamente, es decir mediante una transición de fase termodinámica de segundo orden. No hemos caracterizado exactamente toda esta línea, pues requiere un esfuerzo numérico muy grande, pero las pocas simulaciones realizadas en esta región indican que se trata de una transición de segundo orden a la derecha del máximo. En el gráfico de los calores específicos 8.11 podemos notar que la altura de los picos decrece a medida que nos acercamos al máximo (es decir para η crecientes) lo cual sugiere que se atenúa el carácter continuo de esta transición.

Para analizar lo que ocurre a la izquierda del máximo (es decir para $1,0 < T < 1,5$) calculamos la magnetización paralela al plano $M_{||}$ en función de η para valores fijos de T . En la figura 8.14 se muestra un ciclo de histéresis en η de la componente paralela de la magnetización para $T = 1,3$. Si bien es muy sutil, se observa un efecto de histéresis, que

podría indicar que a la izquierda del máximo la transición es débilmente de primer orden. Recordemos que por arriba de la línea de transición el sistema entra en la fase tetragonal; esta fase tiene una simetría muy diferente de la fase puramente paramagnética que se observa a temperaturas muy altas. El cambio de una fase con simetría continua, como es la planar, a una fase con simetría discreta, como es la tetragonal, es compatible con una transición de fase discontinua en esa parte del diagrama. Notemos que a lo largo de esta línea existe también una transición de reorientación pues la fase tetragonal está orientada preferentemente perpendicularmente al plano definido por la película. Dado que mostramos que la línea de transición entre las fajas perpendiculares y el ferromagneto planar es de primer orden, no es insensato pensar que la transición planar-tetragonal también lo sea. Un análisis de tipo campo medio de una versión multicapas del modelo [85] predijo precisamente que esta sería una transición de reorientación de primer orden en el límite de una sola lámina. Todos estos resultados y discusiones nos permiten sospechar que el carácter de la transición pasa de ser de primer orden a la izquierda del máximo a ser una transición de segundo orden a su derecha.

8.5. Equivalencia de $1/\eta$ con el espesor de la muestra

En el capítulo 7 vimos que en los trabajos experimentales la transición de reorientación puede observarse tanto variando la temperatura como variando el espesor de la película. En este último caso, a medida que el ancho aumenta, la anisotropía inducida por la interacción dipolar favorece una magnetización planar en tanto la anisotropía perpendicular es insensible a estos cambios de espesor pues es debida principalmente a efectos superficiales. Es decir que podemos pensar que aumentar el espesor de la película es equivalente a una disminución efectiva de la anisotropía perpendicular. De esta forma, existe un ancho crítico en el cual se observa la TRE, ya que la interacción dipolar domina sobre la anisotrópica. En base a esto, uno puede imaginar un modelo fenomenológico donde el espesor es inversamente proporcional al parámetro de anisotropía η , o sea, $d \propto 1/\eta$.

De hecho, Won y colaboradores [82] publicaron estudios experimentales detallados de los cambios de la magnetización en función de la temperatura o del ancho d en muestras de

Fe/Ni/Cu(001). Ellos utilizaron un modelo fenomenológico simple y resumieron sus resultados en un diagrama temperatura T vs. espesor d , que mostramos la figura 8.15. Suponiendo una aproximación equivalente entre el espesor d y la inversa de la anisotropía, como se acaba de explicar, en la figura 8.16 nosotros presentamos nuestros resultados numéricos del diagrama de fases mostrado en el gráfico 8.1, pero en el plano T vs. $1/\eta$.

Podemos ver que la región derecha del diagrama de Won (espesores grandes) tiene una fuerte similitud cualitativa con el diagrama obtenido por nosotros. En ambos casos el sistema pasa de la fase de fajas (a d intermedio o $1/\eta$ chico) a la fase ferromagnética planar al aumentar d ($1/\eta$). Si se aumenta la temperatura se produce la transición a la fase paramagnética. En ambos casos puede también verse la existencia del *gap* magnético entre las dos fases ordenadas.

Esta similitud entre ambos diagramas refuerza la equivalencia teórica entre d y $1/\eta$ analizada previamente.

Finalmente, deseamos destacar que nuestro diagrama de fases es muy distinto del que presentaron Maclsaac, De'Bell y Whitehead en 1998, analizando el mismo sistema [78] y que mostramos en el capítulo anterior (figura 7.5). Estos autores encontraron una línea de transición de reorientación en el sentido contrario, de una fase ferromagnética planar a bajas temperaturas a una fase perpendicular de fajas a altas temperaturas.

Como vimos en el capítulo 7, nuestros resultados se corresponden con las evidencias experimentales en diferentes tipos de películas ultra-delgadas como así también con el análisis teórico del efecto de las fluctuaciones térmicas en la transición de reorientación para espesores fijos [79, 80].

Vale destacar que una vez conocido nuestro trabajo, los autores se contactaron con nosotros admitiendo que nuestros resultados eran los correctos y asumiendo un error involuntario en el uso de condiciones de contorno periódicas de las simulaciones presentadas en la Ref. [78].

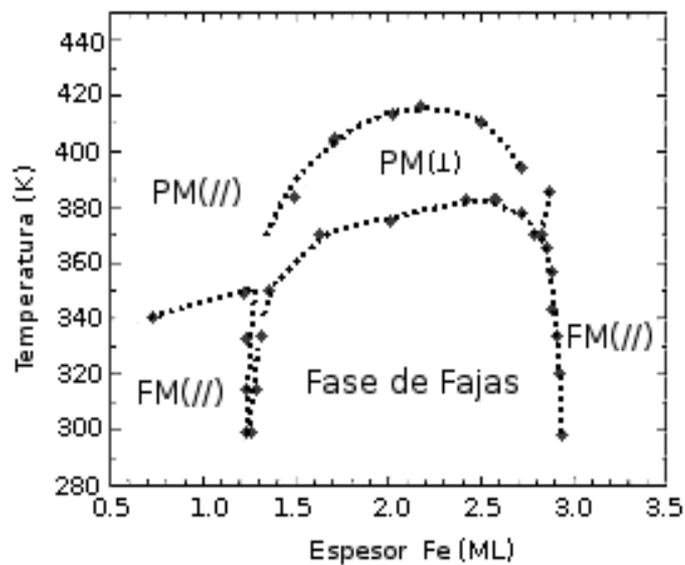


Figura 8.15: Diagrama de fases magnético de Fe/Ni(5,4 ML)/Cu(001) obtenido por Won y colaboradores [82].

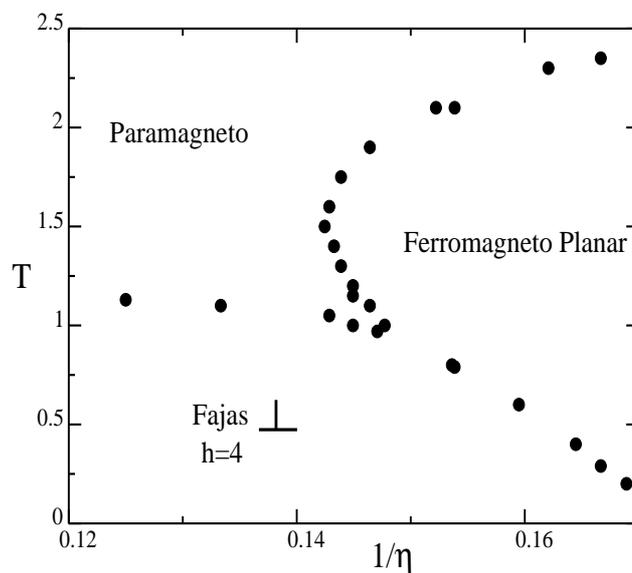


Figura 8.16: Diagrama de fases T vs. $1/\eta$.

8.6. Discusión

En este capítulo analizamos el diagrama de fases del modelo de Heisenberg para una película en el límite de una única capa, mediante simulaciones de Monte Carlo. En particular, pudimos estudiar tanto la estructura magnética de las diferentes fases que surgen como así también la transición de reorientación de espines, dos fenómenos muy novedosos y sobre los cuales existen aún muchas preguntas sin responder, tanto experimental como teóricamente. El modelo incluye los ingredientes claves para emular estos materiales: interacciones de intercambio de corto alcance, interacciones dipolares de largo alcance y anisotropía magneto-cristalina que tiende a orientar a los espines perpendicularmente al plano de la película. La competencia entre todos estos elementos da lugar a la aparición de una fenomenología macroscópica muy rica y compleja, cuestión que nosotros hemos analizado desde el punto de vista termodinámico. Es importante destacar que el modelo supone una forma muy simple de la anisotropía cristalina que tiende a orientar los espines perpendicularmente al plano definido por la película. Sin embargo, esta simplificación está más que justificada pues se sabe que en el caso de una única película el único efecto de anisotropía surge de la interfase película-substrato, y ésta orienta los espines perpendicularmente. En simulaciones de sistemas multicapas esta aproximación debería ser relajada para permitir una matriz de anisotropía más compleja. Finalmente, nuestros resultados fueron obtenidos para un valor de $\delta = 3$, que corresponde a un valor intermedio. Para valores mucho menores las estructuras de fajas se tornan antiferromagnéticas y para valores mucho mayores la dinámica se torna terriblemente lenta, al punto de dificultar las simulaciones. Sin embargo sabemos, porque hicimos estudios previos, que estos resultados sirven para describir la física en una región amplia e intermedia de valores de δ , donde las fajas pueden pasar a tener otros espesores.

Lo primero que deseamos destacar es que, a pesar de haber trabajado con tamaños relativamente pequeños, nuestras simulaciones han conseguido captar muy bien los resultados experimentales conocidos, tanto en lo que se refiere al diagrama de fases como a la transición de reorientación de espín. Es más, el diagrama de fases presentado y publicado en la Ref. [4] vino a corregir un diagrama previo, publicado por Maclsaac y colaboradores

en 1998 [78], acabando así con un gran número de cuestionamientos y malas interpretaciones. Deseamos destacar muy especialmente la buena correspondencia cualitativa entre nuestro diagrama de fases en el plano $(1/\eta, T)$ y el obtenido por Won y colaboradores en la Ref. [82] en el plano (d, T) para películas ultra-delgadas de Fe/Ni/Cu. Esto confirma la equivalencia ya mencionada entre el espesor y la inversa del parámetro de anisotropía perpendicular al plano. Nuestros resultados también reproducen muy bien el *gap* entre la región de fajas perpendicular y la región ferromagnética con magnetización planar. Más aún, nuestros resultados sugieren que el origen del *gap* podría deberse a paredes de dominio que se mueven muy rápidamente, tal como fuera observado en películas de Fe en Cu, en la referencia [86].

En lo concerniente a la naturaleza termodinámica de las diferentes transiciones involucradas en el diagrama de fases, obtuvimos una clara evidencia numérica de una línea de reorientación fajas-ferromagneto planar de primer orden a temperaturas bajas. Vale destacar también que nuestros resultados para la fase fajas-tetragonal se condicen muy bien con los resultados obtenidos en el límite de anisotropía infinita, o sea, en el caso en el que el modelo de Heisenberg se transforma en el modelo de Ising [72, 74].

La transición ferromagneto planar-paramagneto presenta un máximo en el plano (η, T) próximo al punto $(7;1,5)$. Nuestros resultados parecen indicar que a la derecha de dicho máximo la transición es de segundo orden, en tanto que a la izquierda es de primer orden. Esto, de ser verdad, estaría indicando la existencia de un punto tricrítico sobre o en las proximidades del máximo. Sin embargo, no podemos aseverar esto con total fundamento, dado los fuertes efectos de tamaño finito.

Parte III

Conclusiones

Conclusiones

9.1. Termodinámica y dinámica de sistemas magnéticos con interacciones competitivas de corto alcance

En la primera parte de esta tesis estudiamos dos versiones de un modelo de sistemas magnéticos tridimensionales con interacciones competitivas de corto alcance. En la primera versión los momentos magnéticos son representados por variables de espín tipo Ising, y en la segunda con variables tipo Heisenberg, y en ambos casos éstos interactúan ferromagnéticamente entre primeros vecinos y antiferromagnéticamente entre segundos vecinos. Nuestro objetivo principal fue estudiar los efectos que la frustración produce tanto en sus propiedades termodinámicas como en las dinámicas. En especial, nos interesó determinar si es posible obtener comportamiento vítreos en un sistema frustrado pero sin desorden, ya que estudios previos en el modelo reflejaban una dinámica de crecimiento de dominios extremadamente lenta, propia de los sistemas vítreos.

En lo referente a la primera versión, estudiamos la termodinámica y obtuvimos su diagrama de fases, el cual muestra que ha sido altamente enriquecido por la inclusión de las interacciones competitivas. Éste presenta dos fases ordenadas, ferromagnética a frustración débil y láminas ferromagnéticas de ancho uno que alternan los signos de sus espines

entre ellas, para frustración alta. El estudio de las transiciones de fase nos indica un rico comportamiento termodinámico, con transiciones tanto de primer como de segundo orden. Estudiamos también la existencia de meta-estabilidades en ambas fases ordenadas, encontrando que hay una proliferación de estados meta-estables.

Analizamos además su dinámica de relajación, mediante la dinámica de envejecimiento y la Relación de Fluctuación-Disipación, en sus dos fases ordenadas. La fase de láminas y la ferromagnética a altas temperaturas muestran una dinámica de envejecimiento simple, mientras que la fase ferromagnética a bajas temperaturas muestra súper-envejecimiento, lo cual simplemente refleja el hecho de que en esta zona el crecimiento de dominios es logarítmico en el tiempo. Es decir que, para todas las fases ordenadas, el modelo muestra un envejecimiento típico de sistemas con dinámica de crecimiento de dominios, sin ninguna característica vítrea. Esto fue confirmado con el estudio de la Relación de Fluctuación-Disipación, el cual nos indica que en todas las fases ordenadas la temperatura efectiva del sistema es infinita, es decir que el modelo pertenece a la clase de universalidad dinámica de los sistemas en los que su dinámica está gobernada por el crecimiento de sus dominios. Una conclusión importante que podemos sacar de todos estos resultados, es que un modelo puede pertenecer a la clase 3 de la clasificación según la ley de crecimientos de dominios (es decir, desarrollar crecimiento logarítmico de dominios en el tiempo) pero sin embargo no presentar comportamiento vítreos, como lo refleja el estudio de la dinámica de envejecimiento y la Relación Fluctuación Disipación en este modelo.

En la segunda versión del modelo, aquella con variables de espín tipo Heisenberg, también estudiamos sus propiedades de equilibrio y dinámicas. El diagrama de fases resultó cualitativamente similar al obtenido en la versión anterior. Las fases ordenadas son también en este caso ferromagnéticas a frustración débil, y de láminas de ancho uno a frustración alta. Sin embargo, la libertad que tienen los espines de orientarse en cualquier dirección en la esfera unidad, hacen que la magnetización total en el caso ferromagnético no tenga una dirección privilegiada. Igualmente, la dirección de los espines en las láminas pueden tomar cualquier dirección, aunque se sigue cumpliendo que entre láminas la dirección de los espines es tal que están antialineados.

El estudio de su dinámica de no equilibrio, en cambio, resultó mucho más interesante

ya que la dinámica de envejecimiento es de sub-envejecimiento en ambas fases ordenadas. Éste es un comportamiento típico de los sistemas vítreos (como vidrios de espín), y está reflejando que el modelo tiene una dinámica compleja. El análisis de la Relación de Fluctuación-Disipación confirma esta complejidad en la fase ferromagnética, ya que obtuvimos una temperatura efectiva constante, con lo cual podemos ubicar al modelo en la clase de universalidad dinámica de los sistemas con dos escalas de tiempos, y al cual pertenecen los vidrios estructurales, es decir, los sistemas vítreos que no tienen desorden impuesto microscópicamente. En la fase de láminas, en cambio, se obtuvo una temperatura efectiva infinita, es decir que en esta fase la dinámica no es tan compleja.

En resumen, hemos mostrado que la existencia de frustración en un modelo en red, pero sin desorden impuesto, puede complejizar su dinámica al punto que ésta tenga comportamientos típicos de vidrios. Es decir que no es indispensable la inclusión de desorden para observar dinámica vítrea en un sistema. Más aún, el modelo SS con espines de Heisenberg parece ser un buen modelo para vidrio estructural en la red cúbica.

Más allá del interés teórico por el estudio de posibles modelos de vidrios estructurales en la red, este modelo tiene un enorme potencial para el modelado de sistemas magnéticos reales, como por ejemplo vidrios de espín aislantes y espineles magnéticos, para citar algunos. Este punto es una de las próximas extensiones del presente trabajo.

9.2. Modelado de películas magnéticas ultra-delgadas

En la segunda parte de la tesis abordamos el estudio de un modelo de películas magnéticas ultra-delgadas, donde unas pocas capas atómicas de un material magnético son crecidas en un sustrato no magnético. Un ejemplo típico de estos sistemas es el de la películas de Hierro en Cobre (Fe/Cu(100)).

Para ello utilizamos un modelo donde se incluyeron in-/te-/rac-/cio/-nes de intercambio, in-/te-/rac-/cio/-nes dipolares de largo alcance, y anisotropía cristalina que favorece el alineamiento de los espines perpendicularmente al plano de la película. Nos concentramos en el estudio de su diagrama de fases, siendo uno de nuestros principales objetivos la determi-

nación de la Transición de Reorientación de Espines (TRE) observada experimentalmente, aquella donde los espines pasan de tener una dirección perpendicular a la muestra a bajas temperaturas a tener dirección paralela a la muestra a temperaturas mayores.

Vimos que la competencia que se origina entre las diferentes interacciones, y entre éstas y la anisotropía cristalina, da origen a la formación de diferentes patrones magnéticos. Para anisotropías altas y bajas temperaturas el sistema se ordena formando fajas perpendiculares de ancho cuatro, es decir que cada faja está formada por 4 espines alienados en la dirección perpendicular al plano de la película. Al aumentar la temperatura las fajas se desordenan pasando a formar una fase tetragonal, mediante una transición de primer orden. No descartamos la existencia de una fase nemática entre estas dos fases, ya que tenemos algunos indicios que nos sugieren esta posibilidad. Si se continúa aumentando la temperatura, el sistema pasa continuamente a una fase paramagnética perpendicular, es decir a una fase desordenada pero con una componente perpendicular de los espines preponderante.

A baja anisotropía y baja temperatura el sistema se ordena ferromagnéticamente, con los espines paralelos al plano de la película y al aumentar la temperatura el sistema pasa a un estado paramagnético.

En particular encontramos que hay un intervalo de intensidad de anisotropía para el cual ocurre la Transición de Reorientación de Espines. En ésta los espines pasan de tener una dirección perpendicular al plano de la película a bajas temperaturas, a tener dirección paralela al plano a temperaturas mayores, tal como muestran diferentes resultados experimentales, y contrario a lo que fue publicado (erróneamente) por Maclsaac y colaboradores [78].

Esta TRE puede ocurrir de dos formas diferentes. En un caso, se produce una transición directa de la fase de fajas perpendiculares a la fase ferromagnética paralela, transición que hemos demostrado es de primer orden. Sin embargo puede ocurrir (para un pequeño rango de anisotropía) que el sistema primero realice la transición de la fase de fajas a bajas temperaturas a la fase tetragonal (que recordemos sigue siendo con dirección de los espines perpendicular) y luego a la fase ferromagnética planar, al aumentar la temperatura. Mediante la obtención de fotos de configuraciones del sistema, pudimos ver que la fase tetragonal se comporta como un líquido tetragonal ya que las paredes de dominios están en continuo movimiento, por lo tanto, en una adquisición de fotos donde se hace un promedio

temporal, puede perderse rápidamente el contraste entre los diferentes dominios. Es por esto que pensamos que la observación experimental de un *gap* magnético realizada por algunos autores, simplemente esté indicando que la medición se está realizando en esta fase de líquido tetragonal. Por último, la correspondencia cualitativa entre el diagrama de fases (d, T) obtenido por Won [82] con el nuestro graficado en el plano $(1/\eta, T)$ confirma la equivalencia del espesor de la película magnética d con la inversa de la anisotropía, $1/\eta$.

9.3. Conclusiones generales

En esta tesis estudiamos diferentes aspectos termodinámicos y dinámicos en sistemas con interacciones competitivas, y sin la inclusión de desorden, en materia condensada.

En particular, esta tesis se centró en el estudio de un modelo de sistema magnético (en la red tridimensional) con interacciones competitivas de corto alcance, y en un modelo bidimensional con interacciones de corto y de largo alcance. Los estudios se realizaron mediante simulaciones numéricas de Monte Carlo, utilizando diferentes protocolos y técnicas. Los resultados obtenidos en la primera parte de la tesis poseen relevancia en el contexto de la dinámica de relajación de sistemas vítreos, ya que hemos mostrado la existencia de este tipo de comportamiento en un modelo con frustración pero sin desorden. En lo referente a la segunda parte de la tesis, nuestros resultados son relevantes en el estudio de películas magnéticas ultra-delgadas, ya que es la primera vez que obtiene teóricamente la Transición de Reorientación de Espines en concordancia con las observaciones experimentales. Además damos una posible explicación al *gap* de magnetización observado en algunos experimentos.

Parte IV

Apéndices

El método de Monte Carlo

Se puede pensar que una simulación numérica consiste en la resolución de un sistema de ecuaciones que determinan la evolución temporal de cada uno de los elementos constitutivos del sistema. Así, en lugar de encontrar ecuaciones que describan la evolución de cantidades macroscópicas, ésta se obtiene a partir de promediar a diferentes tiempos sobre los estados microscópicos del sistema. A fin de poder elaborar algoritmos que sean capaces de tratar numéricamente estas ecuaciones teniendo en cuenta un número suficientemente grande de partículas, en general es necesario introducir modificaciones que simplifiquen la descripción de la dinámica de cada constituyente. Estas ecuaciones modificadas, pueden entonces interpretarse como las ecuaciones exactas de un nuevo modelo simplificado, el cual *simula* el comportamiento del modelo original, y del que podemos extraer información a través de la computadora.

Para estudiar el comportamiento del modelo simplificado, se pueden considerar a las simulaciones numéricas como verdaderos *experimentos numéricos*. Éstos tienen la ventaja, frente a un experimento de laboratorio, de permitir un completo control sobre las condiciones microscópicas del problema. Sin embargo, cuando se implementan estas técnicas a un modelo, se debe prestar atención a las limitaciones del método. Es posible, por ejemplo, que las simplificaciones impuestas al modelo original presenten nuevos comportamientos que antes no estaban presentes. Pueden surgir efectos de tamaño finito de la muestra

simulada, de condiciones de contorno o de tiempos de observación finitos. No obstante, ciertas limitaciones pueden superarse y ser utilizadas como herramientas de análisis.

A.1. Métodos de Monte Carlo

A menudo la física estadística trata el problema de computar promedios de observables de un sistema cuyo Hamiltoniano conocemos y que se supone en contacto con un reservorio a temperatura constante T . El valor medio de un observable A se calcula entonces como

$$\langle A \rangle = \frac{1}{Z} \sum_S A(S) e^{-H(s)/k_B T} \quad (\text{A.1})$$

donde Z es la función partición del sistema

$$Z = \sum_{\{S\}} e^{-H(s)/k_B T} \quad (\text{A.2})$$

donde k_B es la constante de Boltzmann y la suma se realiza sobre todas las posibles configuraciones del sistema. Si bien estas dos ecuaciones dan la descripción formal exacta para el promedio de un observable A , en general resulta imposible el cálculo directo de la función partición Z , ya que su evaluación implica una enumeración exhaustiva de *todas* las configuraciones posibles que pueda adoptar el sistema. Es por lo tanto necesario encontrar algún método que evite el cálculo directo de Z que incluye al conjunto total de configuraciones, pero que a su vez seleccione el subconjunto de configuraciones apropiadas. Los métodos de Monte Carlo se basan en tomar un muestreo de estados en forma aleatoria, para la selección de las configuraciones más representativas.

Se pueden seleccionar configuraciones en forma aleatoria (lo que se denomina *muestreo simple*), o elegir preferentemente regiones del espacio de fases que contribuyen más a la función partición a una temperatura dada (denominado *muestreo pesado*). En este muestreo pesado, en lugar de elegir las configuraciones independientes entre sí, se las genera recursivamente a través de cierta probabilidad de transición $W(S, S')$. Tenemos entonces una dinámica estocástica para la evolución temporal de nuestro sistema, dada por un proceso Markoviano para el que podemos escribir la ecuación maestra:

$$\frac{d}{dt} P(S, t) = - \sum_{S'} W(S \rightarrow S') P(S, t) + \sum_{S'} W(S' \rightarrow S) P(S', t) \quad (\text{A.3})$$

donde $P(S, t)$ es la densidad de probabilidad de encontrar al sistema en la configuración $\{S\}$ al tiempo t . Si pedimos que en algún momento el sistema equilibre, es decir que sea descrito estadísticamente por la distribución de probabilidad estacionaria de Gibbs-Boltzmann P_{eq} ,

$$P_{eq}(S) = \frac{1}{Z} e^{-H(S)/k_B T} \quad (\text{A.4})$$

debemos exigir de (A.3) que:

$$0 = - \sum_{S'} W(S \rightarrow S') P(S, t) + \sum_{S'} W(S' \rightarrow S) P(S', t). \quad (\text{A.5})$$

A partir de esta última ecuación podemos encontrar condiciones para las probabilidades de transición W . Una forma de satisfacer (A.5) es que la suma se anule término a término, con lo que se obtiene la **ecuación de Balance Detallado**:

$$\frac{W(S \rightarrow S')}{W(S' \rightarrow S)} = \exp[-\beta(H(S') - H(S))]. \quad (\text{A.6})$$

Pero aún queda una gran libertad para elegir la forma exacta de las probabilidades de transición, y es en esta elección donde surgen las distintas dinámicas de Monte Carlo. En las próximas secciones describiremos las dos dinámicas que fueron utilizadas en esta tesis.

Pero antes de mostrar con detalles las dinámicas utilizadas, queremos aclarar que si bien todas las dinámicas Monte Carlo que satisfacen balance detallado son equivalentes a la hora de calcular medias de observables (ya que el método fue introducido como una forma de generar un proceso Markoviano que visite el espacio de configuraciones con la distribución de probabilidad de Gibbs-Boltzmann), resultados recientes han mostrado que las dinámicas Monte Carlo reproducen también los procesos de relajación y los estados de casi-equilibrio observados en sistemas reales.

A.1.1. Dinámica de Metrópolis

Esta dinámica [87] toma como probabilidad de transición:

$$W(S \rightarrow S') = \begin{cases} e^{\frac{-\Delta H}{k_B T}} & \Delta H > 0 \\ 1 & \Delta H \leq 0 \end{cases} \quad (\text{A.7})$$

Es fácil de verificar que ésta cumple con la ecuación de balance detallado. Este algoritmo es aplicable a todo modelo, y es ampliamente utilizado incluso fuera de la mecánica estadística.

El esquema general del algoritmo es el siguiente:

- Se elige una configuración inicial arbitraria S .
- Se elige una nueva configuración S' , por algún método (de forma secuencial o aleatoria, de acuerdo con las características del problema).
- Se calcula la variación de energía ΔE .
- Si $\Delta E < 0$ se acepta la nueva configuración.
- Si $\Delta E \geq 0$ se acepta la nueva configuración con una probabilidad $e^{\Delta E/k_B T}$.
- Se repite el proceso con la configuración elegida.

A.1.2. Dinámica de Baño Térmico

Este es un algoritmo aplicable sólo a modelos de variables de estado binarias. La probabilidad de transición en este caso se ha elegido como

$$W(S \rightarrow S') = \frac{1}{1 + e^{\Delta H/k_B T}}. \quad (\text{A.8})$$

Tomemos como variable binaria al espín s_i correspondiente al sitio i -ésimo en una red de N sitios, sin perder generalidad. El algoritmo es el siguiente:

- Se elige aleatoriamente un sitio i con igual probabilidad entre los N de la red.
- Se acepta la configuración con el espín $s_i = 1$ con probabilidad

$$P_{s_i}(s_i = 1) = \frac{1}{1 + e^{\Delta H/k_B T}}.$$

Para ello se elige un número aleatorio z entre 0 y 1 con distribución de probabilidad uniforme, y se actualiza el sistema usando la siguiente regla:

$$s_i(t + \Delta t) = \text{signo}(z - P_{s_i})$$

- Se itera el proceso con la configuración elegida.

Si bien este algoritmo puede utilizarse sólo para variables binarias, tiene la ventaja de poseer una interpretación física como un proceso dinámico. La ecuación maestra A.3 puede ser interpretada como un proceso difusivo, es decir que el algoritmo simula una dinámica estocástica de los espines, que puede entenderse en términos de acoplamientos muy débiles de los mismos a un baño térmico. Éste introduce transiciones aleatorias entre los espines, que dependen de la temperatura y del *campo local* instantáneo observado por cada espín. Ésta es la razón de la denominación de *Baño Térmico* a estos algoritmos.

Sumas de Ewald para interacciones magnéticas dipolares

En este apéndice presentaremos los cálculos detallados que realizamos para la implementación de la técnica de las Sumas de Ewald para los siguientes casos:

- Red bidimensional con condiciones de contornos periódicas.
- Varias capas bidimensionales con condiciones de contorno periódicas en el plano que forman estas capas, y condiciones libres en su dirección perpendicular.
- Red tridimensional con condiciones de contorno periódicas en sus tres direcciones.

Sabemos del electromagnetismo clásico que la energía de interacción dipolar de un par de espines magnéticos clásicos \vec{S}_i, \vec{S}_j ($|\vec{S}_i| = 1$) viene dada por:

$$E_{ij} = \frac{\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j}{r_{ij}^3} - 3 \frac{(\vec{S}_i \cdot \vec{r}_{ij})(\vec{S}_j \cdot \vec{r}_{ij})}{r_{ij}^5}$$

donde \vec{r}_{ij} es un vector cuyo módulo es la distancia entre espines ($r_{ij} = |\vec{r}_{ij}|$). Es fácilmente comprobable que:

$$E_{ij} = -S_i^\alpha S_j^\beta \lim_{\vec{x} \rightarrow \vec{r}_{ij}} \frac{\partial}{\partial x_\alpha} \frac{\partial}{\partial x_\beta} \frac{1}{|\vec{x}|}$$

donde usamos la convención de Einstein para la contracción de índices. Entonces, la energía del sistema dipolar en una red hipercúbica de $N = L^d$ sitios con condiciones de contorno periódicas viene dada por

$$E = - \sum_{\vec{n}} \sum_{(i,j)} S_i^\alpha S_j^\beta \frac{\partial}{\partial x_\alpha} \frac{\partial}{\partial x_\beta} \frac{1}{|\vec{x} + \vec{n}|} \Big|_{\vec{x}=\vec{r}_{ij}} \quad (\text{B.1})$$

donde $\sum_{(i,j)}$ corre sobre todos los pares *diferentes* de sitios en la red (i, j) y \vec{n} es un vector de componentes enteras que enumera las infinitas **réplicas** del sistema ($\vec{n} = 0$ corresponde al sistema original). Debemos notar que estas sumas no son independientes, ya que deben omitirse los términos $i = j$ cuando $\vec{n} = 0$. El problema numérico con esta expresión es que la suma en \vec{n} es débilmente convergente, debido al decaimiento lento de las interacciones dipolares, de manera que truncarla a un orden arbitrario introduce errores considerables. La idea básica de las sumas de Ewald consiste en descomponer esta suma en un conjunto de series rápidamente convergentes, de manera que puedan ser truncadas con seguridad.

Vamos separar ahora a la energía en dos partes, una que incluye a las contribuciones de corto alcance, y la otra a las de largo alcance:

$$\frac{1}{|\vec{x} + \vec{n}|} = \frac{\text{erfc}(\kappa|\vec{x} + \vec{n}|)}{|\vec{x} + \vec{n}|} + \frac{\text{erf}(\kappa|\vec{x} + \vec{n}|)}{|\vec{x} + \vec{n}|}$$

donde κ es un parámetro de convergencia a ajustar y

$$\text{erf}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x e^{-u^2} du \quad \text{erfc}(x) = 1 - \text{erf}(x)$$

Podemos entonces expresar $E = E_1 + E_2$, donde:

$$E_1 = - \sum_{\vec{n}} \sum_{(i,j)} S_i^\alpha S_j^\beta \frac{\partial}{\partial x_\alpha} \frac{\partial}{\partial x_\beta} \frac{\text{erfc}(\kappa|\vec{x}|)}{|\vec{x}|} \Big|_{\vec{x}=\vec{r}_{ij}+\vec{n}} \quad \text{y} \quad (\text{B.2})$$

$$E_2 = - \sum_{\vec{n}} \sum_{(i,j)} S_i^\alpha S_j^\beta \frac{\partial}{\partial x_\alpha} \frac{\partial}{\partial x_\beta} \frac{\text{erf}(\kappa|\vec{x}|)}{|\vec{x}|} \Big|_{\vec{x}=\vec{r}_{ij}+\vec{n}} \quad (\text{B.3})$$

Si analizamos la forma de las funciones de error y error complementario, es claro que E_1 representa la contribución de corto alcance de la interacción (erfc decae exponencialmente para valores grandes del argumento) mientras que E_2 representa la parte de largo alcance. A continuación, analizaremos ahora a estos términos por separado.

B.1. Contribución de corto alcance

Tenemos que

$$\frac{\partial}{\partial x_\beta} \left(\frac{\operatorname{erfc}(\kappa|\vec{x}|)}{|\vec{x}|} \right) = -\frac{x_\beta}{|\vec{x}|^2} \left(\frac{2\kappa}{\sqrt{\pi}} e^{-\kappa^2|\vec{x}|^2} + \frac{\operatorname{erfc}(\kappa|\vec{x}|)}{|\vec{x}|} \right)$$

luego

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial x_\alpha} \frac{\partial}{\partial x_\beta} \left(\frac{\operatorname{erfc}(\kappa|\vec{x}|)}{|\vec{x}|} \right) &= -\frac{\delta_{\alpha,\beta}}{|\vec{x}|^2} \left(\frac{2\kappa}{\sqrt{\pi}} e^{-\kappa^2|\vec{x}|^2} + \frac{\operatorname{erfc}(\kappa|\vec{x}|)}{|\vec{x}|} \right) \\ &+ \frac{x_\alpha x_\beta}{|\vec{x}|^2} \left[3 \frac{\operatorname{erfc}(\kappa|\vec{x}|)}{|\vec{x}|^3} + \frac{2\kappa}{\sqrt{\pi}} \left(2\kappa^2 + \frac{3}{|\vec{x}|^2} \right) e^{-\kappa^2|\vec{x}|^2} \right]. \end{aligned} \quad (\text{B.4})$$

Podemos por lo tanto expresar

$$E_1 = \sum_{(i,j)} S_i^\alpha S_j^\beta \Gamma_{\alpha\beta}^{(1)}(\vec{r}_{ij}) \quad (\text{B.5})$$

donde

$$\begin{aligned} \Gamma_{\alpha\beta}^{(1)}(\vec{x}) &= \delta_{\alpha,\beta} \sum_{\vec{n}} \frac{1}{|\vec{x} + \vec{n}|^2} \left(\frac{2\kappa}{\sqrt{\pi}} e^{-\kappa^2|\vec{x} + \vec{n}|^2} + \frac{\operatorname{erfc}(\kappa|\vec{x} + \vec{n}|)}{|\vec{x} + \vec{n}|} \right) - \\ &- \sum_{\vec{n}} \frac{(x_\alpha + n_\alpha)(x_\beta + n_\beta)}{|\vec{x} + \vec{n}|^2} \left[3 \frac{\operatorname{erfc}(\kappa|\vec{x} + \vec{n}|)}{|\vec{x} + \vec{n}|^3} + \frac{2\kappa}{\sqrt{\pi}} \left(2\kappa^2 + \frac{3}{|\vec{x} + \vec{n}|^2} \right) e^{-\kappa^2|\vec{x} + \vec{n}|^2} \right]. \end{aligned} \quad (\text{B.6})$$

Notemos que al multiplicar la expresión anterior por $S_i^\alpha S_j^\beta$ y contraer los índices, el segundo término de $\Gamma_{\alpha\beta}^{(1)}(\vec{r}_{ij})$ resulta proporcional a $(\vec{S}_i \cdot (\vec{r}_{ij} + \vec{n}))(\vec{S}_j \cdot (\vec{r}_{ij} + \vec{n}))$. De esta manera, para el caso de un modelo bidimensional con espines orientados normales al plano de la red el término correspondiente resulta idénticamente nulo. Notemos también que todos los términos de esta serie decaen muy rápido con \vec{n} . Esto permite truncar la serie en unos pocos

términos. De hecho basta con incluir los términos con $n_\alpha = 0$ y 1, que incluye la interacción de los espines dentro de $\vec{n} = 0$ y con sus imágenes en los cuadrados primeros y segundos vecinos al área $\vec{n} = 0$. Es importante incluir estos últimos para el caso de sitios localizados en bordes diametralmente opuestos ($r_{ij} \sim L$), ya que para éstos los espines mas cercanos son, de hecho, las primeras imágenes. Debido a esto no hay problema en permutar las sumas sobre (i, j) y sobre \vec{n} , ya que el término que estamos excluyendo de interacción de un espín con sus propias imágenes corresponde a la máxima distancia y esta interacción es despreciable.

B.2. Contribución de largo alcance

La contribución de largo alcance E_2 no converge rápidamente. Para realizar la suma en \vec{n} conviene entonces pasar al espacio recíproco, donde la convergencia es mucho mas rápida. Para poder realizar esto debemos permutar las dos sumatorias, para lo cual vamos a sumar y restar el término con $i = j$ y $\vec{n} = 0$. Este término, como veremos es finito. Para ver esto tenemos que calcular:

$$\lim_{r \rightarrow 0} \frac{\partial^2}{\partial r_\alpha^2} \frac{\text{erf}(\kappa r)}{r}.$$

Tenemos que

$$\frac{\partial^2}{\partial r_\alpha^2} \frac{\text{erf}(\kappa r)}{r} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \frac{\text{erf}(\kappa r)}{r} - \frac{r_\alpha^2}{r^3} \frac{\partial}{\partial r} \frac{\text{erf}(\kappa r)}{r} + \frac{r_\alpha^2}{r^2} \frac{\partial^2}{\partial r^2} \frac{\text{erf}(\kappa r)}{r}.$$

Asumiendo que este límite existe y es independiente del camino por el cual $\vec{r} \rightarrow 0$, podemos tomar primero $r_\beta \rightarrow 0$ con $\beta \neq \alpha$, y luego $r_\alpha = r \rightarrow 0$. Así,

$$\lim_{r \rightarrow 0} \frac{\partial^2}{\partial r_\alpha^2} \frac{\text{erf}(\kappa r)}{r} = \lim_{r \rightarrow 0} \frac{\partial^2}{\partial r^2} \frac{\text{erf}(\kappa r)}{r} \quad \text{y}$$

$$\lim_{r \rightarrow 0} \sum_{i=1}^N (S_i^\alpha)^2 \frac{\partial^2}{\partial r_\alpha^2} \frac{\text{erf}(\kappa r)}{r} = N \lim_{r \rightarrow 0} \frac{\partial^2}{\partial r^2} \frac{\text{erf}(\kappa r)}{r}.$$

Tenemos que

$$\frac{\partial^2}{\partial r^2} \frac{\text{erf}(\kappa r)}{r} = \frac{2}{r^3} \text{erf}(\kappa r) - \frac{4\kappa}{\sqrt{\pi} r^2} e^{-\kappa^2 r^2} - \frac{4\kappa^3}{\sqrt{\pi}} e^{-\kappa^2 r^2}$$

y usando el comportamiento asintótico para $x \ll 1$

$$\text{erf}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \left(x - \frac{x^3}{3!} + \dots \right)$$

obtenemos que

$$- \lim_{r \rightarrow 0} \sum_{i=1}^N (S_i^\alpha)^2 \frac{\partial^2}{\partial r_\alpha^2} \frac{\text{erf}(\kappa r)}{r} = N \frac{2\kappa^3}{3\sqrt{\pi}} = E^*.$$

Podemos entonces escribir

$$E_2 = - \sum_{i,j} S_i^\alpha S_j^\beta \frac{\partial}{\partial x_\alpha} \frac{\partial}{\partial x_\beta} \left(\sum_{\vec{n}} \frac{\text{erf}(\kappa |\vec{x} + \vec{n}|)}{|\vec{x} + \vec{n}|} \right) \Big|_{\vec{x}=\vec{r}_{ij}} - E^* \quad (\text{B.7})$$

donde ahora lo que debemos hacer es calcular la transformada de Fourier $f(x)$

$$f(x) = \sum_{\vec{n}} \frac{\text{erf}(\kappa |\vec{x} + \vec{n}|)}{|\vec{x} + \vec{n}|}$$

para cada uno de los casos que señalamos al inicio del apéndice.

B.2.1. Caso bidimensional

Calculemos la transformada de Fourier de $f(x)$ para una red bidimensional ($d = 2$) con condiciones de contorno periódicas en sus dos direcciones. Si elegimos el eje z de orientación de los espines normal al plano cristalino, todos los \vec{n} se encuentran sobre ese plano. Dado que sólo tenemos periodicidad en las direcciones x e y , tendremos que:

$$f(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}L} \sum_{k_1, k_2} \int_{-\infty}^{\infty} \bar{f}(\vec{k}) e^{i\vec{k} \cdot \vec{x}} dk_3 \quad (\text{B.8})$$

donde $k_i = 2\pi l_i / L$ para $i = 1, 2$, con $l_i = 0, \pm 1, \pm 2, \dots, \pm(L-1)/2, L/2$. Sea Ω la celda elemental de área $L \times L$ ($\vec{n} = 0$). Tenemos que:

$$\int_{\Omega} e^{i(\vec{k}-\vec{k}')\cdot\vec{x}} d^3x = 2\pi L^2 \delta_{k_1,k'_1} \delta_{k_2,k'_2} \delta(k_3 - k'_3)$$

de donde podemos invertir la ecuación B.8 y obtener

$$\begin{aligned} \bar{f}(\vec{k}) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi L}} \int_{\Omega} f(x) e^{-i\vec{k}\cdot\vec{x}} d^3x \\ &= \frac{1}{\sqrt{2\pi L}} \sum_{\vec{n}} \int_{\Omega} \frac{\text{erf}(\kappa|\vec{x} + \vec{n}|)}{|\vec{x} + \vec{n}|} e^{-i\vec{k}\cdot\vec{x}} d^3x. \end{aligned} \quad (\text{B.9})$$

Notemos que la integral sobre Ω de

$$\frac{\text{erf}(\kappa|\vec{x} + \vec{n}|)}{|\vec{x} + \vec{n}|}$$

es igual a la integral de

$$\frac{\text{erf}(\kappa|\vec{x}|)}{|\vec{x}|}$$

sobre una celda centrada en $-\vec{n}$. De esta manera

$$\bar{f}(\vec{k}) = \frac{1}{\sqrt{2\pi L}} \int \frac{\text{erf}(\kappa|\vec{x}|)}{|\vec{x}|} e^{-i\vec{k}\cdot\vec{x}} d^3x \quad (\text{B.10})$$

donde la integral ahora es sobre todo \mathbb{R}^3 . Integrando en coordenadas esféricas

$$\bar{f}(\vec{k}) = \frac{1}{\sqrt{2\pi L}} \frac{4\pi}{k\kappa} \int_0^{\infty} \text{erf}(y) \sin(ay) dy$$

con $a = k/\kappa$. De tablas

$$\int_0^{\infty} \text{erf}(y) \sin(ay) dy = \frac{e^{-a^2/4}}{a}$$

de donde

$$\bar{f}(\vec{k}) = \frac{1}{\sqrt{2\pi L}} \frac{4\pi}{k^2} e^{-\frac{k^2}{4\kappa^2}} \quad (\text{B.11})$$

que sustituido en la ecuación B.8 da

$$f(x) = \frac{2}{L^2} \sum_{k_1, k_2} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-\frac{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2}{4\kappa^2}}}{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2} e^{i\vec{k} \cdot \vec{x}} dk_3. \quad (\text{B.12})$$

Este resultado se sustituye en (B.7) para realizar las derivadas allí indicadas. Notemos que $\bar{f}(\vec{k})$ es singular en $\vec{k} = 0$, como resultado del decaimiento lento de $\text{erf}(\kappa|\vec{x}|)/|\vec{x}|$. No obstante, esta singularidad es *integrable* (en el sentido que la transformada inversa está bien definida). Cada derivada $\partial/\partial x_\alpha$ en (B.7) baja un factor ik_α (excepto para $k_1 = k_2 = 0$, en cuyo caso las derivadas con respecto a los respectivos x_α se anulan idénticamente). Tenemos entonces

$$\begin{aligned} E_2 &= \frac{2}{L^2} \sum_{i,j} S_i^\alpha S_j^\beta \sum_{k_1, k_2} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-\frac{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2}{4\kappa^2}}}{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2} k_\alpha k_\beta e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}_{ij}} dk_3 - E^* \\ &= \frac{2}{L^2} \sum_{i,j} S_i^\alpha S_j^\beta \sum_{k_1, k_2} \cos(\vec{k} \cdot \vec{r}_{ij}) e^{-\frac{k_1^2 + k_2^2}{4\kappa^2}} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-\frac{k_3^2}{4\kappa^2}}}{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2} k_\alpha k_\beta dk_3 - E^* \end{aligned} \quad (\text{B.13})$$

donde hemos usado el hecho de que los \vec{r}_{ij} se encuentran en el plano x-y. Podemos entonces expresar

$$E_2 = \sum_{(i,j)} S_i^\alpha S_j^\beta \Gamma_{\alpha\beta}^{(2)}(\vec{r}_{ij}) \quad (\text{B.14})$$

donde

$$\Gamma_{\alpha\beta}^{(2)}(\vec{r}_{ij}) = \frac{2}{L^2} \sum_{k_1, k_2} \cos(\vec{k} \cdot \vec{r}_{ij}) I_{\alpha\beta}(k_1, k_2) \quad (\text{B.15})$$

con

$$I_{\alpha\beta}(k_1, k_2) = e^{-\frac{k_1^2 + k_2^2}{4\kappa^2}} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-\frac{k_3^2}{4\kappa^2}}}{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2} k_\alpha k_\beta dk_3.$$

En la ecuación B.14 hemos vuelto a descontar la contribución E^* de los términos $i = j$. Tenemos que

$$I_{13}(k_1, k_2) = I_{31}(k_1, k_2) = I_{23}(k_1, k_2) = I_{32}(k_1, k_2) = 0$$

por paridad. Tenemos además términos proporcionales a dos integrales no nulas, las cuales pueden ser ambas calculadas analíticamente:

$$\int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-\frac{k_3^2}{4\kappa^2}}}{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2} dk_3 = e^{\frac{k_1^2 + k_2^2}{4\kappa^2}} \frac{\pi}{\sqrt{k_1^2 + k_2^2}} \operatorname{erfc} \left(\frac{\sqrt{k_1^2 + k_2^2}}{2\kappa} \right)$$

$$\int_{-\infty}^{\infty} \frac{k_3^2 e^{-\frac{k_3^2}{4\kappa^2}}}{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2} dk_3 = 2\kappa\sqrt{\pi} \left[1 - \sqrt{\pi} e^{\frac{k_1^2 + k_2^2}{4\kappa^2}} \frac{\sqrt{k_1^2 + k_2^2}}{2\kappa} \operatorname{erfc} \left(\frac{\sqrt{k_1^2 + k_2^2}}{2\kappa} \right) \right].$$

Tenemos entonces que

$$I_{33}(k_1, k_2) = F_1(k_1, k_2) = 2\kappa\sqrt{\pi} \left[e^{-\frac{k_1^2 + k_2^2}{4\kappa^2}} - \sqrt{\pi} \frac{\sqrt{k_1^2 + k_2^2}}{2\kappa} \operatorname{erfc} \left(\frac{\sqrt{k_1^2 + k_2^2}}{2\kappa} \right) \right]$$

$$I_{11}(k_1, k_2) = k_1^2 F_2(k_1, k_2) \quad \text{para } (k_1, k_2) \neq (0, 0)$$

$$I_{22}(k_1, k_2) = k_2^2 F_2(k_1, k_2) \quad \text{para } (k_1, k_2) \neq (0, 0)$$

$$I_{12}(k_1, k_2) = I_{21}(k_1, k_2) = k_1 k_2 F_2(k_1, k_2) \quad \text{para } (k_1, k_2) \neq (0, 0)$$

$$I_{11}(0, 0) = I_{22}(0, 0) = I_{12}(0, 0) = I_{21}(0, 0) = 0$$

donde

$$F_2(k_1, k_2) = \frac{\pi}{\sqrt{k_1^2 + k_2^2}} \operatorname{erfc} \left(\frac{\sqrt{k_1^2 + k_2^2}}{2\kappa} \right).$$

Todos estos términos decaen exponencialmente con k y por lo tanto la serie (B.15) es rápidamente convergente y puede ser truncada en un orden finito relativamente pequeño.

B.2.2. Multicapas

Las mismas cuentas se pueden hacer si pensamos en un modelo de varias capas puestas una sobre otra con condiciones libres en z y periódicas en x-y. En este caso hay que tener en cuenta el segundo término de (B.7) y recalculamos la integral (B.14) para \vec{r}_{ij} con componente en z no nula.

$$E_2 = \frac{2}{L^2} \sum_{i,j} S_i^\alpha S_j^\beta \sum_{k_1, k_2} \cos(k_1 x_1 + k_2 x_2) e^{-\frac{k_1^2 + k_2^2}{4\kappa^2}} \times \quad (B.16)$$

$$\times \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-\frac{k_3^2}{4\kappa^2}}}{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2} e^{ik_3 x_3} k_\alpha k_\beta dk_3 \Big|_{\vec{x}=\vec{r}_{ij}} - E^*$$

que llevada a la forma (B.14) nos deja:

$$\Gamma_{\alpha\beta}^{(2)}(\vec{r}_{ij}) = \frac{2}{L^2} \sum_{k_1, k_2} e^{i(k_1 x_1 + k_2 x_2)} I_{\alpha\beta}(k_1, k_2, x_3) \quad (B.17)$$

con

$$I_{\alpha\beta}(k_1, k_2, x_3) = e^{-\frac{k_1^2 + k_2^2}{4\kappa^2}} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-\frac{k_3^2}{4\kappa^2}}}{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2} e^{ik_3 x_3} k_\alpha k_\beta dk_3.$$

Las soluciones de las integrales son:

$$\int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-\frac{k_3^2}{4\kappa^2}}}{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2} e^{ik_3 x_3} dk_3 = e^{\frac{k_1^2 + k_2^2}{4\kappa^2}} \frac{\pi}{2\sqrt{k_1^2 + k_2^2}} \left[e^{x_3 \sqrt{k_1^2 + k_2^2}} \operatorname{erfc} \left(\frac{\sqrt{k_1^2 + k_2^2}}{2\kappa} + \kappa x_3 \right) + e^{-x_3 \sqrt{k_1^2 + k_2^2}} \operatorname{erfc} \left(\frac{\sqrt{k_1^2 + k_2^2}}{2\kappa} - \kappa x_3 \right) \right]$$

$$\int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-\frac{k_3^2}{4\kappa^2}}}{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2} e^{ik_3 x_3} k_3 dk_3 = \int_{-\infty}^{\infty} i \frac{e^{-\frac{k_3^2}{4\kappa^2}}}{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2} \sin(k_3 x_3) k_3 dk_3 =$$

$$= -i \frac{\pi}{2} e^{-\frac{k_1^2 + k_2^2}{4\kappa^2}} \left[e^{x_3 \sqrt{k_1^2 + k_2^2}} \operatorname{erfc} \left(\frac{\sqrt{k_1^2 + k_2^2}}{2\kappa} + \kappa x_3 \right) - e^{-x_3 \sqrt{k_1^2 + k_2^2}} \operatorname{erfc} \left(\frac{\sqrt{k_1^2 + k_2^2}}{2\kappa} - \kappa x_3 \right) \right]$$

$$\int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-\frac{k_3^2}{4\kappa^2}}}{k_1^2+k_2^2+k_3^2} e^{ik_3x_3} k_3^2 dk_3 = 2\kappa\sqrt{\pi}e^{-x_3^2\kappa^2} - \frac{\pi}{2}\sqrt{k_1^2+k_2^2}e^{\frac{k_1^2+k_2^2}{4\kappa^2}} \times$$

$$\times \left[e^{x_3\sqrt{k_1^2+k_2^2}} \operatorname{erfc}\left(\frac{\sqrt{k_1^2+k_2^2}}{2\kappa} + \kappa x_3\right) + e^{-x_3\sqrt{k_1^2+k_2^2}} \operatorname{erfc}\left(\frac{\sqrt{k_1^2+k_2^2}}{2\kappa} - \kappa x_3\right) \right]$$

Tomando

$$F_1(k_1, k_2, x_3) = \frac{\pi}{\sqrt{k_1^2+k_2^2}} \left[e^{x_3\sqrt{k_1^2+k_2^2}} \operatorname{erfc}\left(\frac{\sqrt{k_1^2+k_2^2}}{2\kappa} + \kappa x_3\right) + e^{-x_3\sqrt{k_1^2+k_2^2}} \operatorname{erfc}\left(\frac{\sqrt{k_1^2+k_2^2}}{2\kappa} - \kappa x_3\right) \right]$$

$$F_2(k_1, k_2, x_3) = \frac{\pi}{\sqrt{k_1^2+k_2^2}} \left[e^{x_3\sqrt{k_1^2+k_2^2}} \operatorname{erfc}\left(\frac{\sqrt{k_1^2+k_2^2}}{2\kappa} + \kappa x_3\right) - e^{-x_3\sqrt{k_1^2+k_2^2}} \operatorname{erfc}\left(\frac{\sqrt{k_1^2+k_2^2}}{2\kappa} - \kappa x_3\right) \right]$$

Tenemos entonces que

$$\Gamma_{12}^{(2)}(\vec{r}_{ij}) = \Gamma_{21}^{(2)}(\vec{r}_{ij}) = \frac{1}{L^2} \sum_{k_1, k_2} k_1 k_2 \cos(k_1 x_1 + k_2 x_2) F_1(k_1, k_2, x_3) \quad (\text{B.18})$$

$$\Gamma_{11}^{(2)}(\vec{r}_{ij}) = \frac{1}{L^2} \sum_{k_1, k_2} k_1^2 \cos(k_1 x_1 + k_2 x_2) F_1(k_1, k_2, x_3)$$

$$\Gamma_{22}^{(2)}(\vec{r}_{ij}) = \frac{1}{L^2} \sum_{k_1, k_2} k_2^2 \cos(k_1 x_1 + k_2 x_2) F_1(k_1, k_2, x_3)$$

$$\Gamma_{13}^{(2)}(\vec{r}_{ij}) = \Gamma_{31}^{(2)}(\vec{r}_{ij}) = \frac{1}{L^2} \sum_{k_1, k_2} k_1 e^{-\frac{k_1^2+k_2^2}{2\kappa^2}} \sin(k_1 x_1 + k_2 x_2) \sqrt{k_1^2+k_2^2} F_2(k_1, k_2, x_3)$$

$$\Gamma_{23}^{(2)}(\vec{r}_{ij}) = \Gamma_{32}^{(2)}(\vec{r}_{ij}) = \frac{1}{L^2} \sum_{k_1, k_2} k_2 e^{-\frac{k_1^2+k_2^2}{2\kappa^2}} \sin(k_1 x_1 + k_2 x_2) \sqrt{k_1^2+k_2^2} F_2(k_1, k_2, x_3)$$

$$\Gamma_{33}^{(2)}(\vec{r}_{ij}) = \frac{1}{L^2} \sum_{k_1, k_2} \cos(k_1 x_1 + k_2 x_2) \left[4\kappa\sqrt{\pi} e^{-\frac{k_1^2+k_2^2}{4\kappa^2}} e^{-\kappa^2 x_3^2} - (k_1^2+k_2^2) F_1(k_1, k_2, x_3) \right]$$

En caso de que se tome una sola capa ($x_3 = 0$), los $\Gamma_{\alpha, \beta}^{(2)}$ se reducen a los calculados en el caso bidimensional.

B.2.3. Red tridimensional

Consideremos ahora el caso en que tenemos condiciones periódicas en las 3 direcciones de la red tridimensional. En este caso tanto $r_{i,j}$ como \vec{n} podrán tener sus tres compo-

nentes no nulas. Desarrollando entonces a $f(x)$ en serie de Fourier tenemos

$$f(x) = \frac{1}{L} \sum_{k_1, k_2, k_3} \bar{f}(\vec{k}) e^{i\vec{k} \cdot \vec{x}} \quad (\text{B.19})$$

donde $k_i = 2\pi l_i/L$ para $i = 1, 2$, con $l_i = 0, \pm 1, \pm 2, \dots, \pm(L-1)/2, L/2$. Sea Ω la celda elemental de área $L \times L \times L$ ($\vec{n} = 0$). Ahora tenemos que

$$\int_{\Omega} e^{i(\vec{k}-\vec{k}') \cdot \vec{x}} d^3x = L^3 \delta_{k_1, k'_1} \delta_{k_2, k'_2} \delta_{k_3, k'_3}$$

de donde podemos invertir la ecuación B.19 y obtener

$$\bar{f}(\vec{k}) = \frac{1}{L^2} \int_{\Omega} f(x) e^{-i\vec{k} \cdot \vec{x}} d^3x \quad (\text{B.20})$$

$$= \frac{1}{L^2} \sum_{\vec{n}} \int_{\Omega} \frac{\text{erf}(\kappa|\vec{x} + \vec{n}|)}{|\vec{x} + \vec{n}|} e^{-i\vec{k} \cdot \vec{x}} d^3x. \quad (\text{B.21})$$

Esta integral en Ω se resuelve de la misma manera que se hizo para el caso bidimensional, obteniéndose

$$\bar{f}(\vec{k}) = \frac{1}{L^2} \frac{4\pi}{k^2} e^{-\frac{k^2}{4\kappa^2}}, \quad (\text{B.22})$$

que sustituido en la ecuación B.19 da

$$f(x) = \frac{4\pi}{L^3} \sum_{k_1, k_2, k_3} \frac{e^{-\frac{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2}{4\kappa^2}}}{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2} e^{i\vec{k} \cdot \vec{x}}. \quad (\text{B.23})$$

Nuevamente cada derivada $\partial/\partial x_\alpha$ en (B.7) baja un factor ik_α . Tenemos entonces

$$\begin{aligned} E_2 &= \frac{4\pi}{L^3} \sum_{i,j} S_i^\alpha S_j^\beta \sum_{k_1, k_2, k_3} \frac{e^{-\frac{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2}{4\kappa^2}}}{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2} k_\alpha k_\beta e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}_{ij}} - E^* \\ &= \frac{4\pi}{L^3} \sum_{i,j} S_i^\alpha S_j^\beta \sum_{k_1, k_2, k_3} \cos(\vec{k} \cdot \vec{r}_{ij}) \frac{e^{-\frac{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2}{4\kappa^2}}}{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2} k_\alpha k_\beta - E^*. \end{aligned} \quad (\text{B.24})$$

De esta forma, si escribimos E_2 como (B.14), tenemos la siguiente expresión para $\Gamma_{\alpha\beta}$

$$\Gamma_{\alpha\beta}^{(2)}(\vec{r}_{ij}) = \frac{4\pi}{L^3} \sum_{k_1, k_2, k_3} \cos(\vec{k} \cdot \vec{r}_{ij}) \frac{k_\alpha k_\beta}{(k_1^2 + k_2^2 + k_3^2)} e^{-\frac{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2}{4\kappa^2}}. \quad (\text{B.25})$$

A diferencia del caso de dos dimensiones, ahora la matriz $\Gamma^{(2)}$ tiene todos sus elementos no nulos.

B.3. Detalles de implementación

Truncado

Las sumas en k_1, k_2 pueden truncarse a un orden finito $k_i = 2\pi l_i/L$ con $l_i = 0, \pm 1, \dots, \pm l_{max}$ para $i = 1, 2$. La experiencia en simulaciones en diversos tipos de interacciones y diferentes dimensionalidades indica que un valor razonable es $l_{max} = 10$, conjuntamente con un valor de $\kappa = 5/L$.

Actualización de Monte Carlo

Para el caso particular de la red bidimensional la energía del sistema puede entonces escribirse como:

$$\begin{aligned} E &= \sum_{(i,j)} S_i^\alpha S_j^\beta \Gamma_{\alpha\beta}(\vec{r}_{ij}) \\ &= \sum_{(i,j)} \left[S_i^3 S_j^3 \Gamma_{33}(\vec{r}_{ij}) + \sum_{\alpha,\beta=1}^2 S_i^\alpha S_j^\beta \Gamma_{\alpha\beta}(\vec{r}_{ij}) \right] \end{aligned} \quad (\text{B.26})$$

donde

$$\Gamma_{\alpha\beta}(\vec{r}_{ij}) = \Gamma_{\alpha\beta}^{(1)}(\vec{r}_{ij}) + \Gamma_{\alpha\beta}^{(2)}(\vec{r}_{ij})$$

donde las matrices $\Gamma_{\alpha\beta}(\vec{r}_{ij})$ se calculan una sola vez al principio de la simulación. Para el algoritmo de Metropolis la diferencia de energía dipolar debida a un movimiento

$$\vec{S}_i \rightarrow \vec{S}_i + \Delta\vec{S}_i$$

viene dada por

$$\Delta E = \Delta S_i^3 \sum_{j \neq i} \Gamma_{33}(\vec{r}_{ij}) S_j^3 + \sum_{\alpha=1}^2 \Delta S_i^\alpha \sum_{j \neq i} \sum_{\beta=1}^2 S_j^\beta \Gamma_{\alpha\beta}(\vec{r}_{ij}).$$

Notemos que podemos expresar el cambio en la energía como

$$\Delta E = \Delta\vec{S}_i \cdot \vec{h}_i,$$

donde los *campos locales* \vec{h}_i vienen dados por

$$\vec{h}_i = \sum_{j \neq i} \Gamma(\vec{r}_{ij}) \vec{S}_j,$$

donde $\Gamma(\vec{r}_{ij})$ es una matriz 3×3 cuyos elementos son $\Gamma_{\alpha\beta}(0) = 0$ y $\Gamma_{\alpha\beta}(\vec{r}_{ij}) = \Gamma_{\alpha\beta}^{(1)}(\vec{r}_{ij}) + \Gamma_{\alpha\beta}^{(2)}(\vec{r}_{ij})$ para $\vec{r}_{ij} \neq \vec{0}$. Resulta conveniente calcular todos los campos locales al principio de la simulación y luego actualizarlos sólo cuando se acepta una actualización del espín

$$\vec{S}_i \rightarrow \vec{S}_i + \Delta\vec{S}_i.$$

En este caso tenemos que

$$\vec{h}_j \rightarrow \vec{h}_j + \Delta\vec{h}_j$$

con

$$\Delta\vec{h}_j = \Gamma(\vec{r}_{ji}) \Delta\vec{S}_i.$$

B.4. Resumen de fórmulas

Podemos expresar de manera mas compacta las interacciones efectivas $\Gamma_{\alpha\beta}(\vec{r}_{ij})$ introduciendo las siguientes definiciones:

$$G_1(\vec{r}_{ij}) = \sum_{\vec{n}} \frac{1}{|\vec{r}_{ij} + \vec{n}|^2} \left(\frac{2\kappa}{\sqrt{\pi}} e^{-\kappa^2|\vec{r}_{ij} + \vec{n}|^2} + \frac{\operatorname{erfc}(\kappa|\vec{r}_{ij} + \vec{n}|)}{|\vec{r}_{ij} + \vec{n}|} \right)$$

$$G_2(\vec{r}_{ij}, \vec{n}) = \frac{1}{|\vec{r}_{ij} + \vec{n}|^2} \left[3 \frac{\operatorname{erfc}(\kappa|\vec{r}_{ij} + \vec{n}|)}{|\vec{r}_{ij} + \vec{n}|^3} + \frac{2\kappa}{\sqrt{\pi}} \left(2\kappa^2 + \frac{3}{|\vec{r}_{ij} + \vec{n}|^2} \right) e^{-\kappa^2|\vec{r}_{ij} + \vec{n}|^2} \right]$$

y además tenemos

$$F_1(k_1, k_2) = 2\kappa\sqrt{\pi} \left[e^{-\frac{k_1^2 + k_2^2}{4\kappa^2}} - \sqrt{\pi} \frac{\sqrt{k_1^2 + k_2^2}}{2\kappa} \operatorname{erfc} \left(\frac{\sqrt{k_1^2 + k_2^2}}{2\kappa} \right) \right]$$

$$F_2(k_1, k_2) = \frac{\pi}{\sqrt{k_1^2 + k_2^2}} \operatorname{erfc} \left(\frac{\sqrt{k_1^2 + k_2^2}}{2\kappa} \right)$$

Por lo tanto

$$\Gamma_{33}(\vec{r}_{ij}) = G_1(\vec{r}_{ij}) + \frac{2}{L^2} \sum_{k_1, k_2} \cos(\vec{k} \cdot \vec{r}_{ij}) F_1(k_1, k_2) \quad (\text{B.27})$$

$$\Gamma_{11}(\vec{r}_{ij}) = G_1(\vec{r}_{ij}) - \sum_{\vec{n}} (r_{ij1} + n_1)^2 G_2(\vec{r}_{ij}, \vec{n}) + \frac{2}{L^2} \sum'_{k_1, k_2} \cos(\vec{k} \cdot \vec{r}_{ij}) k_1^2 F_2(k_1, k_2)$$

$$\Gamma_{22}(\vec{r}_{ij}) = G_1(\vec{r}_{ij}) - \sum_{\vec{n}} (r_{ij2} + n_2)^2 G_2(\vec{r}_{ij}, \vec{n}) + \frac{2}{L^2} \sum'_{k_1, k_2} \cos(\vec{k} \cdot \vec{r}_{ij}) k_2^2 F_2(k_1, k_2)$$

$$\Gamma_{12}(\vec{r}_{ij}) = \Gamma_{21}(\vec{r}_{ij}) = - \sum_{\vec{n}} (r_{ij1} + n_1)(r_{ij2} + n_2) G_2(\vec{r}_{ij}, \vec{n}) + \frac{2}{L^2} \sum'_{k_1, k_2} \cos(\vec{k} \cdot \vec{r}_{ij}) k_1 k_2 F_2(k_1, k_2)$$

para $\vec{r}_{ij} \neq \vec{0}$ y donde se asume el truncamiento en todas las sumas y \sum' excluye el término $k_1 = k_2 = 0$. Además $\Gamma_{13} = \Gamma_{31} = \Gamma_{23} = \Gamma_{32} = 0 \forall \vec{r}_{ij}$.

Referencias

Referencias

- [1] J. Choi, J. Won, Y.Z. Wu, A. Scholl, A. Doran, T. Owens and Z.Q. Qiu, Phys. Rev. Lett. **98**, 207205 (2007).
- [2] M. Carubelli and F. Tamarit, PHYSICA A **371**, 144 (2006).
- [3] M. Carubelli, G. García and F. Tamarit, *Ising dynamics of an Ising model with competing interactions*, enviado para publicación (2009).
- [4] M. Carubelli, O.V. Billoni, S.A. Pighin, S.A. Cannas, D.A. Stariolo and F.A. Tamarit, Phys. Rev. B **77**, 134417 (2006).
- [5] I.M. Lifshitz, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **42**, 1354 (1962).
- [6] S.M. Allen and J.W. Cahn, *Acta Metall.* **27**, 1085 (1979).
- [7] I.M. Lifshitz and V.V. Slyozov, J.Phys. Chem. Solids **19**, 35 (1961); E.M. Lifshitz and L.P. Pitaevskii, Physical Kinetics, Landau and Lifshitz: Course of Theoretical Physics Vlo. 10 (Pergamon, Oxford, 1981).
- [8] W. Lai, G. F. Mazenko and J. Valls, Phys. Rev. B **37**, 9481 (1988).
- [9] S. F. Edwards and P. W. Anderson, J. Phys. F: Metal Phys. **5**, 965 (1975).
- [10] D. Shore and J.P. Sethna, Phys. Rev. B **43**, 3782 (1991).
- [11] J. Shore, M. Holzer and J. Sethna, *Physical Review B* **46**, 11376 (1992).

- [12] Lennard-Jones, J. E. Cohesion. *Proceedings of the Physical Society* **43**, 461 (1931).
- [13] L.F. Cugliandolo, J. Kurchan and L. Peliti, *Phys. Rev. E* **55**, 3898 (1997).
- [14] L. Cugliandolo. In *Slow relaxations and non-equilibrium dynamics in condensed matter*, editores: J.L. Barrat, M. Feigel', J. Kurchan and J. Dalibard, Berlín- (2002).
- [15] A.J. Bray, *Advances in Physics* **43**, 357 (1994).
- [16] E. Vincent, J. Hammann, M. Ocio, J.P. Bouchaud and L. Cugliandolo, *Out of equilibrium dynamics in spin glasses and other glassy systems*, publicado en *Spin glasses and random fields*, Ed. por A.P. Young (World Scientific)(1999).
- [17] M. Henkel, M. Pleimling and R. Sanctuary, *Ageing and the glass transition*, "Lecture Notes in Physics 716" (Springer Berlin Heidelberg) (2007).
- [18] K. Binder and P.Young, *Rev. Mod. Phys.* **58**, 801 (1986).
- [19] M. Mezard, G. Parisi and M.A. Virasoro. *Spin glass theory and beyond* World Scientific, Singapore (1987).
- [20] A.P. Young, editor. *Spin glasses and random fields*, World Scientific, Singapore (1997).
- [21] J. Kurchan, *Phys. Rev. E* **66**, 1701 (2002).
- [22] H. Kawamura, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 5421 (1998).
- [23] L. Berthier and A.P. Young, *Phys. Rev. B* **69**, 184423 (2004).
- [24] R. Paul, G. Schehr and H. Rieger, *Phys. Rev. E* **75**, 030104(R) (2007).
- [25] J.J. Arenzon, F. Ricci-Terceghi and D. Stariolo, *Phys. Rev. E* **62**, 5978 (2000).
- [26] A. Crisanti y F. Ritort, *J. Phys. A: Math. Gen.* **36**, R181 (2003).
- [27] M. Nauenberg, B. Nienhuis, *Phys. Rev. Lett.* **33**, 944 (1974).
- [28] J. Oitmaa, *Jurn. Phys. A: Math Gen* **14**, 1159 (1981).
- [29] P. Murilo Oliveira, C. Tsallis and G. Schwaachheim, *Phys. Rev. B* **29**, 2755 (1984).

- [30] P. Murilo Oliveira, C. Tsallis and G. Schwaachheim, *J. Phys* **47**, 1107 (1986).
- [31] D.P. Landau, K. Binder, *Phys. Rev. B* **31**, 5946 (1985).
- [32] C. Rottman and M. Wortis, *Phys. Rev. B* **29**, 328 (1984).
- [33] M. Rao, and A. Chakrabarti, *Phys. Rev. E* **52**, R13 (1995).
- [34] M. J. P. Gingras, C. V. Stager, N. P. Raju, B. D. Gaulin, and J. E. Greedan, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 947 (1997).
- [35] F. Ladieu, F. Bert, V. Dupuis, E. Vincent, J. Hammann, *J. Phys. C* **16**, 5735 (2004).
- [36] S. Niidera, S. Abiko and F. Matsubara. *Phys. Rev. B* **72**, 214402 (2005).
- [37] R. Nath, A.A. Tsirlin, E.E. Kaul, M. Baenitz, N. Büttgen, C. Geibel, and H. Rosner, *Phys. Rev. B* **78**, 024418 (2008).
- [38] P.K. Baltzer, P.J. Wojtowicz, M. Robbins and E. Lopatin, *Phys. Rev.* **151**, 367 (1966).
- [39] H. Martinho, N. O. Moreno, J. A. Sanjurjo, C. Rettori, A. J. García-Adeva, D. L. Huber, S. B. Oseroff, W. Ratcliff II, S.-W. Cheong, P. G. Pagliuso, J. L. Sarrao and G. B. Martins, *J. Appl. Phys.* **89**, 7050 (2001).
- [40] J. Hemberger, P. Lunkenheimer, R. Fichtl, A.A. Krug von Nidda, V. Tsurkan and A. Loidl, *Nature (londo)* **434**, 364 (2005). A. Loidl, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 157202 (2006).
- [41] S. Weber, P. Lunkenheimer, R. Fichtl, J. Hemberger, V. Tsurkan and A. Loidl, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 157202 (2006).
- [42] V. Tsurkan, J. Hemberger, A. Krimmel, H.A. Krug von Nidda, P. Lunkenheimer, S. Weber, V. Zestrea and A. Loidl, *Phys. Rev. B* **73**, 224442 (2006).
- [43] J. Hemberger, H.A. Krug von Nidda, V. Tsurkan and A. Loidl, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 147203 (2007).
- [44] A.N. Yaresko, *Phys. Rev. B* **77**, 115106 (2008).
- [45] H. Ueda and U. Ueda, *Phys. Rev. B* **77**, 224411 (2008).

- [46] I.N. Booth, A. B. Maclsaac, K. De'Bell, and J. P. Whitehead, and K. De'Bell, Phys. Rev. Lett. **75**, 950 (1995).
- [47] K. Binder, Phys. Rev. Lett. **47**, 693 (1981).
- [48] K. Binder, D.P. Landau, Phys. Rev. B **30**, 1477 (1984).
- [49] S. Murty, S. Challa, D.P. Landau, K. Binder, Phys. Rev. B **34**, 1841 (1986).
- [50] F. Krzakala, Phys. Rev. Lett. **94**, 077204 (2005).
- [51] K. Kawasaki, Phys. Rev. **145**, 224 (1966).
- [52] P. Cahndra and B. Doucot, Phys. Rev. B **38**, 9335 (1998).
- [53] O.P. Sushkov, J. Oitmaa and Zhengweihog, Phys. Rev. B **63**, 104420 (2001).
- [54] L. Siurakshina, D. Ihle and R. Hayn, Phys. Rev. B **64**, 104406 (2001).
- [55] N. Shannon, B. Schmidt, K. Penc and P. Thalmeier, Eur. Phys. Journ. B **38**, 599 (2004).
- [56] N. Shannon, T. Momoi and P. Sindzingre, Phys. Rev. Lett. **96**, 027213 (2006).
- [57] D.P. Pappas, K. P. Kamper, and H. Hopster, Phys. Rev. Lett. **64**, 3179 (1990).
- [58] R. Allenspach, M. Stampanoni, and A. Bischof, Phys. Rev. Lett. **65**, 3344 (1990).
- [59] A. Berger and H. Hopster, J. Appl. Phys. **79**, 5619 (1996).
- [60] A. Berger and H. Hopster, Phys. Rev. Lett. **76**, 519 (1996).
- [61] R. Allenspach and A. Bischof, Phys. Rev. Lett. **69**, 3385 (1992).
- [62] J.M. Kosterlitz, and D.J. Thouless, J. Phys. C **6**, 1181 (1973).
- [63] J.D. Jackson, *Classical Electrodynamics* Publicado por John Wiley and Sons Inc; 2^o edition (1975).
- [64] S.V. Male'ev Sov. Phys. JETP **43**, 1240 (1976).
- [65] R. Lorenz and J. Hafner, Phys.: Condens. Matter. **7**, L253 (1995).

- [66] J. H. Toloza, F. A. Tamarit and S. A. Cannas, *Phys. Rev. B* **58**, R8885 (1998).
- [67] D. A. Stariolo and S. A. Cannas, *Phys. Rev. B* **60**, 3013-3016 (1999).
- [68] S.A. Cannas, D.A. Stariolo and F.A. Tamarit, *Physica A* **294**, 362–374 (2001).
- [69] P.M. Gleiser and F.A. Tamarit, *Journal of Physics A* **33**, 6073 (2000).
- [70] P.M. Gleiser, F.A. Tamarit and S.A. Cannas, *Physica D* **168**, 73 (2002).
- [71] P.M. Gleiser, F.A. Tamarit, S.A. Cannas and M.A. Montemurro, *Phys. Rev. B* **63**, 134401 (2003).
- [72] S.A. Cannas, P.M. Gleiser and F.A. Tamarit, 'Recent Research Developments in Physics', Ed. por Transworld Research Network, en prensa, (2004).
- [73] S.A. Cannas, D.A. Stariolo and F.A. Tamarit, *Physical Review B* **69**, 092409 (2004).
- [74] S. A. Cannas, F.A. Tamarit, M. Michelson and D.A. Stariolo, *Phys. Rev. B* **73**, 184425 (2006).
- [75] S. A. Pighín and S. A. Cannas. *Physical Review B* **75**, 224433 (2007).
- [76] A.B. Maclsaac, J.P. Whitehead, M.C. Robinson and K. De'Bell, *Phys. Rev. B* **51**, 16033 (1995); A.B. Maclsaac, J.P. Whitehead, K. De'Bell and P.H. Poole, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 739 (1996).
- [77] A. Abanov, V. Kalatsky, V. L. Pokrovsky, and W. M. Saslow, *Phys. Rev. B* **51**, 1023 (1995).
- [78] A.B. Maclsaac, K. De'Bell, and J.P. Whitehead, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 616 (1998).
- [79] D. Pescia and V. L. Pokrovsky, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 2599 (1990).
- [80] P. Politi, A. Rettori, and M.G. Pini, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 1183 (1993).
- [81] A. Vaterlaus, C. Stamm, U. Maier, M.G. Pini, P. Politi, and D. Pescia, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 2247 (2000).

- [82] C. Won, Y.Z. Wu, J. Choi, W. Kim, A. Scholl, A. Doran, T. Owen, J. Wu, X.F. Hin, H.W. Zhao and Z.Q. Qiu, *Phys. Rev. B* **71**, 224429 (2005).
- [83] L. Nicolao and D.A. Stariolo, *Phys. Rev. B* **76**, 054453 (2007).
- [84] D.G. Barci and D.A. Stariolo, *Physical Review Letters* **98**, 200604 (2007).
- [85] A. Moschel and K.D. Usadel, *Phys. Rev. B* **51**, 16111 (1995).
- [86] O. Portmann, A. Vaterlaus, and D. Pescia, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 047212 (2006).
- [87] N. Metropolis, A. Rosenbluth, M. Rosenbluth, A. Teller and E. Teller, *J. Chem. Phys.* **21**, 1087 (1953).