

## Tesis de Posgrado

# Transiciones de fase en sistemas pequeños

Strachan, Alejandro Hernán

1998

Tesis presentada para obtener el grado de Doctor en Ciencias Físicas de la Universidad de Buenos Aires

Este documento forma parte de la colección de tesis doctorales y de maestría de la Biblioteca Central Dr. Luis Federico Leloir, disponible en [digital.bl.fcen.uba.ar](http://digital.bl.fcen.uba.ar). Su utilización debe ser acompañada por la cita bibliográfica con reconocimiento de la fuente.

This document is part of the doctoral theses collection of the Central Library Dr. Luis Federico Leloir, available in [digital.bl.fcen.uba.ar](http://digital.bl.fcen.uba.ar). It should be used accompanied by the corresponding citation acknowledging the source.

**Cita tipo APA:**

Strachan, Alejandro Hernán. (1998). Transiciones de fase en sistemas pequeños. Facultad de Ciencias Exactas y Naturales. Universidad de Buenos Aires.  
[http://digital.bl.fcen.uba.ar/Download/Tesis/Tesis\\_3095\\_Strachan.pdf](http://digital.bl.fcen.uba.ar/Download/Tesis/Tesis_3095_Strachan.pdf)

**Cita tipo Chicago:**

Strachan, Alejandro Hernán. "Transiciones de fase en sistemas pequeños". Tesis de Doctor. Facultad de Ciencias Exactas y Naturales. Universidad de Buenos Aires. 1998.  
[http://digital.bl.fcen.uba.ar/Download/Tesis/Tesis\\_3095\\_Strachan.pdf](http://digital.bl.fcen.uba.ar/Download/Tesis/Tesis_3095_Strachan.pdf)

**EXACTAS** UBA

Facultad de Ciencias Exactas y Naturales



**UBA**

Universidad de Buenos Aires

Universidad de Buenos Aires  
Facultad de Ciencias Exactas y Naturales  
Departamento de Física

Tesis Doctoral

**Transiciones de fase en  
sistemas pequeños**

Autor: Alejandro Hernán Strachan  
Director: Dr. Claudio Oscar Dorso

Trabajo de Tesis para optar por el título de Doctor en Ciencias Físicas  
Octubre de 1998

#3093



Universidad de Buenos Aires  
Facultad de Ciencias Exactas y Naturales  
Departamento de Física

# Phase transitions in small systems

By: Alejandro Hernán Strachan  
Advisor: Dr. Claudio Oscar Dorso

October, 1998



*A mis Abuelos.*



# Resumen

En esta tesis estudiamos procesos de fragmentación en gotas clásicas desde un punto de vista microscópico. Utilizamos la técnica de dinámica molecular para simular el proceso de expansión y fragmentación de gotas excitadas térmicamente. Estudiamos gotas tridimensionales formadas por  $N = 147$  partículas y bidimensionales de masa  $N = 100$ ; en ambos casos las partículas interactúan mediante el potencial de Lennard Jones.

Estudiamos el proceso de formación y emisión de fragmentos, utilizando avanzados algoritmos de reconocimiento de estructuras. Demostramos que los fragmentos se forman en el espacio de fases mucho antes de ser emitidos, i.e. antes de formarse en el espacio de las configuraciones.

Proponemos y calculamos tres definiciones de temperatura para los sistemas en expansión, relacionadas a distintos grados de libertad: la temperatura local, la temperatura interna de los fragmentos y la temperatura local de fragmentos. Encontramos que las distintas definiciones dan valores similares, lo que indica que el sistema alcanza cierto grado de equilibrio local.

Poder definir una temperatura en simulaciones de fragmentación nos permite extender el concepto de la curva calórica (temperatura vs. energía), para abarcar el proceso de fragmentación. La temperatura del sistema en el momento de formación de fragmentos es independiente de la energía en todo el rango estudiado, por lo que el fenómeno de fragmentación aparece como un "plateau" en la curva calórica.

Por otro lado investigamos diversas señales que pueden indicar la presencia de un fenómeno crítico en fragmentación. Hicimos esto mediante el análisis del máximo exponente de Lyapunov local en el tiempo, de los espectros de masa y las fluctuaciones normalizadas de la masa del máximo fragmento y de energía potencial en función de la energía total del sistema. Encontramos que existen señales que indican la posibilidad de una transición de fase de segundo orden para una dada excitación. Para demostrar este punto es necesario realizar más estudios.

## *Palabras claves:*

Fragmentación - Clusters - Transiciones de Fase en sistemas finitos - Fenómenos críticos - Física Computacional - Dinámica Molecular.



# Abstract

In this thesis we study the process of fragmentation of small, classical drops, from a microscopic point of view. We performed molecular dynamics computer experiments in order to study the expansion and disassembly of thermally excited drops. We considered three dimensional drops formed by  $N = 147$  particles and two dimensional drops with  $N = 100$ ; in both cases the particles interact via the Lennard Jones pair potential.

We studied the process of fragment formation and emission, using advanced cluster recognition algorithms. We showed that the fragments form in phase space, long before they are emitted.

We define and calculate three different temperatures related to different degrees of freedom: the local temperature, the cluster internal temperature and the cluster local temperature. We showed that the different definitions of temperature yield very similar values, which means that the expanding system attains local equilibrium.

Being able to define temperature in our simulations enables us to extend the concept of caloric curve (temperature vs. energy), to the high energy region of fragmentation. We find that the temperature at break-up time is almost independent of the total energy of the system, and consequently to the way it disassembles. In this way the process of fragmentation appears as a plateau in the caloric curve.

We also studied several signals that might indicate the presence of a critical phenomena in fragmentation. In order to achieve this goal we analyzed the local maximum Lyapunov exponent, the mass spectra and normalized fluctuations of the size of the maximum cluster per event and fluctuations of potential energy. We found that several signals indicate the possible the presence of a second order phase transition. In order to prove this statement more studies are needed.

## *Key words:*

Fragmentation - Clusters - Phase transitions in small systems - Critical phenomena - Computational Physics - Molecular Dynamics.



# Índice General

<b>1</b>	<b>Introducción</b>	<b>1</b>
1.1	Motivación . . . . .	2
1.2	Organización de la tesis	4
<b>2</b>	<b>Introducción a las transiciones de fase</b>	<b>6</b>
2.1	Transiciones de fase y fenómenos críticos . . . . .	6
2.2	Fenómenos críticos . . . . .	8
2.2.1	Concepto de universalidad . . . . .	10
2.2.2	Modelo de condensación de Fisher	10
2.3	Transiciones de fase en sistemas pequeños . . . . .	11
2.3.1	Transición de fase cuasi-sólido a cuasi-líquido . . . . .	12
2.4	Discusión	14
<b>3</b>	<b>Procesos de fragmentación</b>	<b>15</b>
3.1	Fragmentación Nuclear . . . . .	16
3.1.1	Núcleos en ebullición . . . . .	17
3.1.2	Calorimetría nuclear . . . . .	18
3.2	Discusión	20
<b>4</b>	<b>Experimentos computacionales</b>	<b>22</b>
4.1	El potencial de Lennard-Jones . . . . .	23
4.2	Dinámica molecular . . . . .	23
4.3	Fragmentación de gotas tridimensionales . . . . .	24
<b>5</b>	<b>Formación y emisión de fragmentos</b>	<b>28</b>
5.1	Reconocimiento de fragmentos en simulaciones computacionales	29
5.1.1	Método configuracional o MST	29
5.1.2	Método MSTE	30
5.1.3	Método ECRA . . . . .	30
5.2	Escalas de tiempo de formación y emisión de fragmentos . . .	32

---

5.3	Discusión	36
<b>6</b>	<b>Propiedades de los fragmentos</b>	<b>38</b>
6.1	Estado interno de los fragmentos . . . . .	38
6.2	Discusión	41
<b>7</b>	<b>Partición de la energía: temperatura local</b>	<b>43</b>
7.1	Partición de la energía en modos colectivos e internos	43
7.2	Temperatura local . . . . .	45
7.3	Temperatura local de clusters . . . . .	53
7.4	Discusión	56
<b>8</b>	<b>Curva calórica extendida</b>	<b>57</b>
8.1	Gotas auto-confinadas: estados cuasi-sólido y cuasi-líquido . .	58
8.2	La curva calórica extendida . . . . .	61
8.3	Discusión	63
<b>9</b>	<b>Señales de criticalidad en fragmentación</b>	<b>65</b>
9.1	Exponentes de Lyapunov locales en el tiempo . . . . .	66
9.2	Propiedades del espectro de masa . . . . .	71
9.3	Discusión	76
<b>10</b>	<b>El caso bidimensional</b>	<b>78</b>
10.1	Experimentos computacionales . . . . .	78
10.2	Formación y emisión de fragmentos . . . . .	81
10.3	Propiedades internas de los fragmentos . . . . .	85
10.4	Movimiento colectivo y temperatura local	86
10.5	La curva calórica extendida . . . . .	88
10.6	Discusión	93
<b>11</b>	<b>Discusión, conclusiones y perspectivas</b>	<b>94</b>
11.1	Diferentes etapas del proceso de fragmentación	94
11.2	La curva calórica extendida	95
11.3	Criticalidad en fragmentación . . . . .	97
11.4	Perspectivas . . . . .	98
<b>A</b>	<b>Termómetros para núcleos en expansión</b>	<b>104</b>
A.1	Temperatura de isótopos . . . . .	104

# Capítulo 1

## Introducción

La dinámica microscópica y la termodinámica estadística de sistemas finitos y pequeños han atraído mucha atención de la comunidad científica en la última década. Dos fenómenos han acaparado gran parte del interés por razones diferentes; ellos son los procesos de fragmentación y las transiciones de fase sólido-líquido.

Fragmentación es el proceso en el cual un sistema finito muy excitado se expande y rompe en muchos fragmentos o clusters de diversos tamaños. Para causar la fragmentación una cantidad grande de energía deber ser entregada súbitamente al sistema. Este tipo de proceso aparece en muchas ramas de la física, por ejemplo, multifragmentación en colisiones nucleares a energías intermedias: cuando dos iones se hacen chocar a energías entre  $10MeV$  y  $1000MeV$  por nucleón, dependiendo del parámetro de impacto, el sistema se comprime y calienta y luego se expande y fragmenta en varios clusters que son detectables experimentalmente [1]. Procesos similares de expansión y fragmentación suceden en los siguientes ejemplos: fragmentación de fluidos comprimidos al atravesar toberas, formación y expulsión de fragmentos de superficies en experimentos de sputtering [2] y de depósito de clusters para la síntesis de nano-superficies [3], colisiones de agregados con superficies [4] y muchos otros casos mas [5].

Por otro lado experimentos computacionales han demostrado que sistemas atómicos muy pequeños, formados por solo algunas decenas de partículas, presentan una transición de fase un estado cuasi-sólido a otro cuasi-líquido [6, 7, 8]. En el estado cuasi-sólido las partículas se mueven en torno a posiciones fijas, bien definidas, en forma análoga a lo que ocurre en un solido macroscópico. En el estado cuasi-líquido la movilidad de las partículas aumenta apreciablemente, y la función de distribución radial es similar a la de

los líquidos macroscópicos [9]. Recientemente experimentos calorimétricos en sistemas nanométricos han confirmado este comportamiento [10, 11]. El interés en este tipo de transiciones radica en su conexión con la transición sólido-líquido de los sistemas macroscópicos y en el creciente interés, en los últimos años, en la física de pequeños clusters.

Consideremos una pequeña gota atomística libre, en un volumen infinito. De acuerdo con su energía podemos dividir el comportamiento del sistema en dos grupos bien diferenciados. Si la energía del sistema es pequeña las gotas son auto-confinadas; este es el primer tipo de comportamiento, que llamaremos régimen de bajas energías. Las gotas cuasi-sólidas y cuasi-líquidas pertenecen a este primer grupo. Por otro lado si la energía del sistema es muy grande la gota es inestable y se produce el fenómeno de no-equilibrio de fragmentación. Llamaremos a este segundo grupo régimen de altas energías. La división entre los dos tipos de comportamiento no es abrupta y su ubicación precisa no tiene importancia.

Debido al continuo (y exponencial) crecimiento del poder de las computadoras y a la aparición de algoritmos cada vez más eficientes, (baste como ejemplo los nuevos métodos de Monte Carlo [6, 12]), la física computacional ha jugado un papel preponderante en el estudio de los problemas ante dichos.

En la presente tesis estudiamos, mediante técnicas de física computacional, procesos de fragmentación en sistemas atomísticos formados por  $N = 147$  partículas en tres dimensiones y por  $N = 100$  partículas en dos dimensiones. En ambos casos las partículas interactúan mediante el potencial de Lennard Jones. También estudiaremos el régimen de bajas energías para nuestros sistemas y veremos como se relacionan los procesos de altas y bajas energías.

## 1.1 Motivación

Si se hacen colisionar dos núcleos a energías intermedias (entre  $10MeV$  y  $1000MeV$  por nucleón), el sistema sobrelleva un proceso llamado fragmentación nuclear. Los fragmentos o clusters resultantes de la colisión pueden ser detectados experimentalmente. Es bien sabido que un núcleo en su estado fundamental o los resultantes de los experimentos de colisiones se comportan como un líquido cuántico, por otro lado los fragmentos pequeños y nucleones libres resultantes pueden ser considerados como vapor nuclear.

Debido a la forma de la interacción nuclear, que presenta repulsión a cortas distancias y atracción a distancias un poco mayores, se espera que la

materia nuclear tenga un comportamiento similar al de un gas de Van der Waals, que presenta una región de inestabilidad en el diagrama densidad y temperatura que lleva a una transición de fase líquido-gas. Por lo tanto es de mucho interés estudiar el comportamiento de la materia nuclear a alta temperatura y densidad y sus posibles inestabilidades. Ésto puede hacerse estudiando estrellas de neutrones, con las dificultades y limitaciones obvias. Otra posibilidad son las colisiones nucleares, ya que en las etapas tempranas del proceso se obtiene generalmente una región de muy alta temperatura y densidad. En este caso la presencia de fragmentos de distintos tamaños y las partículas libres pueden ser indicadores de las regiones de inestabilidad del sistema. Es importante remarcar que las colisiones nucleares a energías intermedias son el único modo que tenemos en la Tierra para estudiar sistemas nucleares calientes y/o comprimidos. Como se explicará con mas detalle en el capítulo 2, entender este tipo de procesos puede dar información acerca de la ecuación de estado de la materia nuclear.

Por otra parte podemos olvidarnos del caso nuclear y preguntarnos, en forma mas general, qué sucede cuando una gota finita es excitada con una energía del mismo orden de magnitud que su energía de unión. En este caso el sistema no estará auto-confinado y dependiendo de la energía depositada evaporará partículas o sobrellevará un proceso de fragmentación.

A pesar de los esfuerzos hechos para entender el proceso de fragmentación muchas preguntas quedan sin respuesta; no se conoce como y cuando se forman las fluctuaciones de densidad que luego originarán los clusters asintóticos. Tampoco se conoce que inestabilidades del sistema en expansión generan estas fluctuaciones. En particular la posible relación de este tipo de proceso con la transición de fase líquido-gas no ha sido debidamente confirmada.

Se han propuesto diferentes mecanismos de fragmentación. Algunos autores han seguido la evolución temporal de sistemas que sobrellevaran fragmentación en el espacio de temperatura y densidad  $T, \rho$  y han relacionado la fragmentación a la entrada del sistema en alguna región de inestabilidad del diagrama de fase [13], y propuesto como mecanismo de fragmentación la descomposición espinodal. Este es el tipo de mecanismo que aparece cuando un sistema en equilibrio se encuentra en la región de inestabilidad mecánica de su diagrama de fases [14], i.e. dentro de la curva espinodal, como por ejemplo en el punto crítico. Utilizar el diagrama de fases y procesos válidos para un sistema termodinámico en equilibrio, para explicar un fenómeno fuera del equilibrio y en sistemas tan pequeños como la en multifragmentación nuclear es bastante cuestionable. Por otro lado se ha mostrado mediante simulaciones numéricas que aún cuando lo anterior sea válido las escalas de tiempo son usualmente muy cortas como para que el mecanismo que lleva a

la fragmentación sea descomposición espinodal [15].

Entender los procesos de fragmentación, estudiar las inestabilidades que lo generan y su posible caracterización como transición de fase, investigar las posibles señales de criticalidad y que información se puede obtener de la ecuación de estado de un sistema a partir de los resultados de experimentos de fragmentación (en particular para la materia nuclear) son algunos de los motivos desde el punto de vista de física básica por los cuales estudiar los procesos de fragmentación y en general las transiciones de fase en sistemas pequeños. En este trabajo trataremos de contestar algunas de las preguntas anteriores, replantear otras y formular nuevas dudas.

## 1.2 Organización de la tesis

En esta tesis estudiamos fragmentación de gotas excitadas térmicamente en 2 y 3 dimensiones. Consideramos gotas clásicas, cuyas partículas interactúan mediante el potencial de Lennard-Jones 6-12. La elección de este potencial quedará mas clara en el capítulo 4. Baste mencionar ahora que presenta una repulsión de rango corto y una parte atractiva de rango con poco mas largo. Debido a este comportamiento los sistemas de Lennard-Jones presentan un diagrama de fase tipo van der Waals, similar al de la materia nuclear [16].

Estudiamos el proceso de fragmentación desde un punto de vista microscópico, mediante la técnica de dinámica molecular, que consiste en resolver las ecuaciones clásicas de movimiento de las partículas que forman al sistema. De esta manera uno tiene información de las posiciones y momentos de todas las partículas del sistema en estudio ~~en~~ todo tiempo.

La tesis está organizada de la siguiente manera. El capítulo 2 contiene una breve introducción a las transiciones de fase y fenómenos críticos, mencionando particularmente recientes resultados sobre transiciones de fase en sistemas pequeños y los resultados importantes para entender el proceso de fragmentación. El capítulo 3 está dedicado a explicar con mas detalle los procesos de fragmentación, en particular mostramos resultados recientes de fragmentación nuclear y los esfuerzos hechos para caracterizar el ecuación de estado (EOS) de la materia nuclear.

Los capítulos 4 a 9 están dedicados a las simulaciones de sistemas tridimensionales. En el capítulo 4 describimos nuestros experimentos computacionales, con una somera descripción de la técnica de dinámica molecular.

Como veremos, uno de los problemas mas importantes en fragmentación es la determinación de tiempos característicos de emisión de fragmentos y, probablemente mas importante, formación de fragmentos. El capítulo 5

está dedicado a este tema y el 6 a estudiar distintas propiedades internas de los fragmentos en función del tiempo. Uno de las características mas importantes, común a todos los procesos de fragmentación, es la presencia de un grado colectivo de expansión. De esta manera la energía total del sistema se puede dividir en una parte colectiva y otra interna. La forma en que la energía se parte da mucha información acerca del comportamiento de los sistemas que sobrellevan fragmentación, capítulo 7. Por otro lado, también en el capítulo 7, mostraremos que es posible definir una temperatura local para nuestros sistemas en expansión. En el capítulo 8 mostramos el cálculo de la curva calórica (temperatura vs. energía) para el régimen de bajas energías, lo que permite identificar la transición de fase cuasi-sólido cuasi-líquido. En este capítulo, mostramos uno de los resultados mas importantes de esta tesis: la curva calórica puede ser extendida a la región de altas energías para abarcar los procesos de evaporación y fragmentación. En el capítulo 10 estudiamos diversas cantidades que pueden indicar que los sistemas en estudio, pueden sobrellevar una transición de fase de 2<sup>do</sup> orden, para una dada energía.

El capítulo 11 está dedicado a presentar, en forma resumida, los resultados de fragmentación de gotas bidimensionales.

Por último, en el capítulo 10, sintetizamos las conclusiones mas importantes de este trabajo y las perspectivas para futuros trabajos en este área.

## Capítulo 2

# Introducción a las transiciones de fase

El presente capítulo comienza con una breve introducción a las transiciones de fase y fenómenos críticos, haciendo hincapié en los resultados relevantes para entender los procesos de fragmentación. Dado que la fragmentación siempre ocurre en sistemas finitos y usualmente pequeños, es importante mencionar algunos resultados sobre transiciones de fase sólido-líquido y procesos de evaporación en sistemas pequeños, no solo por su relación con la fragmentación, como será explicado más adelante, sino también para entender que tipo de información acerca del sistema macroscópico se puede obtener estudiando un cluster.

### 2.1 Transiciones de fase y fenómenos críticos

Las características macroscópicas de los sistemas físicos vienen determinadas por la compleja dinámica de sus componentes microscópicos. En los casos simples las fluctuaciones microscópicas se promedian cuando uno observa escalas grandes, y los observables promediados obedecen ecuaciones continuas. Este es el caso de la hidrodinámica, donde las fluctuaciones atómicas se promedian y aparecen las ecuaciones de la hidrodinámica clásica. Por otro lado, hay una clase de problemas más complicados donde las fluctuaciones persisten hasta escalas macroscópicas, siendo importantes a toda escala. A esta última clase de problemas pertenecen, entre otros, los flujos turbulentos y las transiciones de fase. Tomemos como ejemplo la transición de fase líquido-vapor. Supongamos que tenemos un líquido a presión constante y menor que la presión crítica, y vamos aumentando su temperatura lenta-

mente. El significado de la presión crítica quedará claro mas adelante. A medida que esto ocurre la densidad de nuestro sistema decrece continuamente. A una temperatura dada,  $T_t(P)$  se produce una transición de fase, para  $T > T_t(P)$  el sistema estará en la fase gaseosa. Pensemos que sucede con el sistema en la transición. A una temperatura  $T^- = T_t(P) - \epsilon$ , donde  $\epsilon$  es un infinitesimal positivo, el sistema es líquido y su energía es

$$U^- = \frac{3}{2}NkT^- + V_{liq}(P). \quad (2.1)$$

Donde el primer término es la energía cinética y el segundo, que depende de la estructura del líquido, es la energía potencial. Por otro lado a temperatura  $T^+ = T_t(P) + \epsilon$ , el sistema es vapor y su energía es

$$U^+ = \frac{3}{2}NkT^+ + V_{vap}(P). \quad (2.2)$$

Donde el primer término es, nuevamente, la energía cinética y el segundo la energía potencial del vapor. Por lo tanto al aumentar infinitesimalmente la temperatura para pasar de  $T^-$  a  $T^+$  la variación de la energía de nuestro sistema es:

$$\Delta U(P) = 3Nk\epsilon + V_{vap}(P) - V_{liq}(P) \quad (2.3)$$

que es una cantidad finita, ya que el líquido y el vapor tienen estructuras totalmente distintas por lo tanto  $U_{vap}(P)$  y  $U_{liq}(P)$  difieren en una cantidad finita. Es necesario entregarle al sistema esa cantidad de energía, que lleva el nombre de calor latente, para que la transición se produzca. Una forma usual de caracterizar este tipo de transición de fase es mediante la curva calórica, esto es la temperatura en función de la energía ( $T(E)$ ). Ésta es una función creciente para todo rango de temperaturas, salvo en las regiones donde hay transiciones de fase. Las transiciones de fase que presentan calor latente son las llamadas de 1<sup>er</sup> orden o discontinuas, ya que el calor latente aparece debido al cambio discontinuo en las propiedades del sistema en la transición. Volviendo a la curva calórica, de lo dicho anteriormente, la transiciones de fase discontinuas son denotadas por un "plateau", i.e. una región de temperatura constante.

Ahora pensemos que tenemos nuestro sistema a una densidad fija  $\rho$  en la región de coexistencia, por lo que esta formada por gotas líquidas (regiones de alta densidad) rodeadas por vapor en equilibrio (regiones de baja densidad). Al aumentar la temperatura las gotas líquidas se dilatan y evaporan partículas, esto hace que la densidad del líquido disminuya y la del vapor aumente. Esto es, a medida que la temperatura aumenta al líquido y el

vapor se parecen cada vez mas. Existe una densidad particular, llamada densidad crítica  $\rho_c$ , para la cual este proceso sigue hasta que, a una temperatura crítica  $T_c$ , a la que corresponde una presión llamada crítica  $P_c$ , la densidad del líquido y el vapor se igualan. En este punto, el punto crítico, el calor latente desaparece, ya que el líquido y el vapor tienen la misma densidad, el sistema está formado por burbujas de vapor y gotas líquidas están mezclados a toda escala, desde las macroscópicas y visibles hasta las escalas atómicas. Para presiones mayores a  $P_c$  no hay transición de fase líquido-vapor. Si el proceso de calentamiento a presión constante, descrito en el párrafo anterior, se realiza a  $P = P_c$  cuando la temperatura alcance  $T_c$  se producirá una transición de fase que no tiene calor latente. Este tipo de transición recibe el nombre de 2<sup>do</sup> orden o continuas ya que las propiedades del sistema (derivadas primeras del potencial termodinámico) varían en forma continua durante la transición. Para el caso de agua el punto crítico está localizado en  $T = 647K$  y  $\rho_c = 0.323gcm^{-3}$ .

## 2.2 Fenómenos críticos

El paradigma de las transiciones de 2<sup>do</sup> orden es la transición del hierro de su fase paramagnética a la ferromagnética a la temperatura de Curie  $T_c = 1043K$ . Para  $T > T_c$ , y en ausencia de campo magnético aplicado, el hierro no estará magnetizado, pero para  $T < T_c$ , aun en ausencia de campo externo, el hierro presenta magnetización espontánea. La magnetización varía continuamente con la temperatura, aunque sus derivadas no lo hacen, por lo que la transición de fase es continua.

Como veremos abajo, el comportamiento termodinámico de los sistemas cerca del punto crítico puede ser descrito por un conjunto de "exponentes críticos" y es conocido con el nombre de "comportamiento crítico".

El primer paso para entender, y cuantificar, una transición de fase continua, es identificar una cantidad, llamada "parámetro de orden", que vale cero en un lado de la transición, usualmente el de altas temperaturas, y crece desde cero del otro lado de la transición. En sistemas magnéticos el parámetro de orden es, claramente, la magnetización. Ésta crece desde cero, para  $T \leq T_c$  como:

$$m \propto (T_c - T)^\beta. \quad (2.4)$$

$\beta$  es otro exponente crítico, que para el hierro vale  $\beta \sim 0.35$ . Para el caso de la transición líquido-gas el parámetro de orden es  $\rho_l - \rho_g$ , donde  $\rho_l$  y  $\rho_g$  son las densidades del líquido y el gas en coexistencia. Para  $T \leq T_c$  tenemos:

$$\rho_l - \rho_g \propto (T_c - T)^\beta. \quad (2.5)$$

Para el agua,  $\beta \sim 0.35$ . El parámetro de orden distinto de cero indica usualmente una ruptura de simetría. En el caso magnético el sistema deja de ser isótropo para pasar a tener una dirección privilegiada, para el caso del agua se rompe la simetría traslación, debido a la presencia de gotas líquidas y vapor.

La ausencia de calor latente en las transiciones de 2<sup>do</sup> orden no asegura que el calor específico del sistema que sobrelleva la transición sea una función suave de la temperatura; por el contrario usualmente diverge, y cerca del punto crítico toma la forma:

$$c \propto |T - T_c|^{-\alpha}, \quad (2.6)$$

con  $\alpha$  usualmente mayor a cero. El número  $\alpha$  es un "exponente crítico", y forma parte de un conjunto de exponentes, relacionados a distintas cantidades, que determina el comportamiento del sistema cerca del punto crítico.

Hay otras cantidades que divergen en el punto crítico, por ejemplo la compresibilidad isotérmica, que está relacionada a otro exponente crítico, llamado  $\gamma$ , toma la forma, para  $T \sim T_c$ :

$$\kappa_T = \frac{1}{V} \left( \frac{\partial V}{\partial P} \right)_T \propto (T - T_c)^{-\gamma}. \quad (2.7)$$

Para el agua  $\gamma \sim 1.2$ . El análogo en sistemas magnéticos a la compresibilidad es la susceptibilidad magnética:

$$\chi_T = \left( \frac{\partial m}{\partial B} \right)_T \propto (T - t_c)^\gamma, \quad (2.8)$$

Donde  $m$  es la magnetización y  $B$  es el campo magnético aplicado. Para el hierro  $\gamma \sim 1.3$ .

Para terminar, a  $T = T_c$  y para presiones cercanas a la crítica, la densidad varía como una potencia de  $P - P_c$ :

$$\rho \propto (P - P_c)^{1/\delta} \quad (T = T_c) \quad (2.9)$$

$\delta \sim 4$  para el agua. Para el caso magnético tenemos:

$$m \propto B^{1/\delta} \quad (T = T_c) \quad (2.10)$$

con  $\delta \sim 4.3$  para el hierro.

Aparte de los exponentes  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  y  $\delta$  ya definidos, existen otros dos:  $\eta$  y  $\nu$  relacionados a la función de correlación y distancia de correlación respectivamente [17].

Es importante mencionar que la compresibilidad isotérmica está relacionada a las fluctuaciones de densidad. Para el ensamble gran canónico, donde el sistema de volumen constante puede intercambiar partículas con el medio, las fluctuaciones del número de partículas viene dado por [18]:

$$\langle N^2 \rangle - \langle N \rangle^2 = \langle N \rangle kT\kappa_T/v \quad (2.11)$$

donde  $v$  es el volumen específico. De manera similar en el caso magnético la susceptibilidad está relacionada a las fluctuaciones de magnetización. Por lo tanto, la divergencia de  $\kappa_T$  en el punto crítico está íntimamente relacionada a la divergencia de las fluctuaciones de densidad. Éstas fluctuaciones son las encargadas de “hacer notar” al sistema la existencia de otra fase termodinámicamente mas conveniente.

### 2.2.1 Concepto de universalidad

Como vimos, los exponentes críticos determinan el comportamiento de los sistemas cerca de la transición de segundo orden. Por otro lado, es importante notar que los exponentes para el agua y el hierro son muy similares (salvo  $\alpha$ ), aunque los dos sistemas no tienen nada en común.

Si analizamos los exponentes críticos de diversos sistemas y diversas transiciones de fases [17] se ve que es posible clasificar a los sistemas en pocas “clases de universalidad”, con sistemas descritos con exponentes críticos muy similares. De esta manera, para los sistemas pertenecientes a una dada clase de universalidad, las propiedades cerca del punto crítico, i.e. los exponentes, no dependen de detalles microscópicos. Esto es, sistemas muy diferentes entre sí presentan, cerca del punto crítico, fluctuaciones a toda escalas, que hacen que los detalles microscópicos dejen de ser importantes y consecuentemente el comportamiento puede ser descrito por un mismo conjunto de exponentes críticos.

Una demostración impresionante de la existencia de clases de universalidad la da el famoso gráfico de Guggenheim [19]. En el se muestra la curva de coexistencia en el plano de temperatura y densidad reducida para distintos sistemas. A pesar que los sistemas son muy diferentes, con interacciones totalmente diferentes, la similitud de las curvas de coexistencia es notable. Es claro, teniendo en cuenta la ec. 2.8, que el exponente  $\beta$  para todos los casos mostrados en la figura es muy similar.

### 2.2.2 Modelo de condensación de Fisher

Es importante hacer mención en este punto, dada su relación con los procesos de fragmentación, a la distribución de fragmentos en la transición de

fase. Dejaremos la discusión de la definición detallada de fragmento para el Capítulo 4, por ahora pensaremos que fragmento es un grupo de partículas que están cerca entre sí en el espacio de coordenadas y alejadas del resto. Las gotas líquidas son fragmentos mas o menos grandes y el vapor estará formado por partículas libres (fragmentos de un solo constituyente) y fragmentos pequeños. Nuevamente pensemos en un sistema  $T, V, N$  en la región de coexistencia. Si nos encontramos cerca de la región del vapor, i.e. baja densidad, solo habrá fragmentos pequeños. El espectro de masa, o sea el número de fragmentos en función de su masa, mostrará un rápido decaimiento hacia las masas grandes. Si, por el contrario, nos encontramos cerca de la región del líquido, el sistema estará formado por una gran gota líquida y un gas de fragmentos pequeños en el espacio restante. En este caso el espectro presenta forma de "U". Hay un caso particular que, sin embargo, tiene mucha importancia; en el punto crítico, donde el gas y el líquido se interpenetran y aparecen fluctuaciones a toda escala, el espectro de masa es una ley de potencia. M. E. Fisher con su teoría semiempírica de condensación [21] encuentra un espectro de masa de la forma:

$$Y(n) = Y_0 \exp \left[ \frac{\mu_g - \mu_l}{T} n - \frac{4\pi\sigma\tau_0^2}{kT} n^{2/3} \right] n^{-\tau}, \quad (2.12)$$

donde  $n$  es el tamaño del fragmento,  $Y_0$  es una constante que se ajusta con la masa total del sistema,  $\mu_l$  y  $\mu_g$  denotan los potenciales químicos del líquido y gas y  $\sigma$  es la tensión superficial [21]. En el punto crítico se cumple que  $\mu_l = \mu_g$  ya que las dos fases están en equilibrio y la tensión superficial desaparece  $\sigma = 0$ , por lo tanto el espectro de masa es una simple ley de potencia:

$$Y(n) = Y_0 n^{-\tau}. \quad (2.13)$$

El valor del exponente  $\tau$  para las transiciones líquido-gas es  $\tau = 2.23$  [17]. Este tipo de comportamiento, fluctuaciones a todas las escalas y leyes de potencia, aparece en todos los fenómenos críticos como por ejemplo percolación [22], modelo de Ising. Es importante notar que la aparición de leyes de potencia denota invariancia de escala.

## 2.3 Transiciones de fase en sistemas pequeños

En la sección anterior mencionamos los resultados mas importantes acerca de transiciones de fase y fenómenos críticos. Esos resultados son válidos para sistemas en el límite termodinámico. En los últimos años hubo un interés creciente en la extensión de estas ideas a los sistemas finitos.

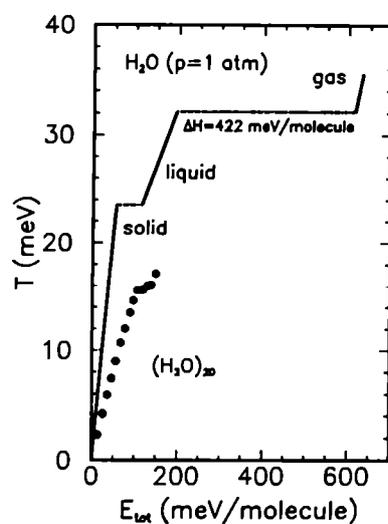
No vamos a entrar en los detalles de los resultados de la teoría de escaleo de tamaño finito [20]. En general digamos que las divergencias son reemplazados por máximos mas o menos anchos, desplazados del punto correspondiente al sistema infinito por una cantidad que decrece al aumentar el tamaño del sistema en estudio.

En lo que sigue describiremos los resultados sobre la transición de fase cuasi-sólido a cuasi-líquido en gotas pequeñas aisladas. Éste es solo uno de los muchos ejemplos de transiciones de fase en sistemas pequeños, pero es relevante en esta tesis dada su relación con los procesos de fragmentación de gotas. Dicha relación quedará clara mas adelante.

### 2.3.1 Transición de fase cuasi-sólido a cuasi-líquido

A mediados de la década del 80, experimentos computacionales demostraron que sistemas aislados muy pequeños, i.e. gotas, pueden presentar transiciones de fase. Diversos estudios mostraron que gotas formadas por solo unas decenas de partículas interactuantes vía el potencial de Lennard-Jones presentan una transición de fase entre un estado cuasi-sólido y otro cuasi-líquido [6, 7, 8]. Esta transición de fase es uno de los fenómenos mas estudiados en el área de la termodinámica de clusters. Esto se debe a que es la contraparte para sistemas finitos de la transición de fase en el límite termodinámico. La transición de fase en clusters difiere en varios puntos de la correspondiente a sistemas macroscópicos. En primer lugar el tamaño finito hace que la transición sea menos abrupta: el derretimiento ocurre en un rango de temperaturas, no a una temperatura bien definida, y el calor específico no presenta una delta de Dirac sino un máximo mas o menos pronunciado durante la transición. Otra diferencia importante consiste en la ausencia de separación de fases, debido a que la la energía de interfases es muy grande. En el rango de temperaturas en los que la transición ocurre el sistema presenta coexistencia temporal; se puede ver que el sistema alterna entre el estado cuasi-sólido y cuasi-líquido. Esto hace que la distribución de energías cinética y potencial muestre una distribución bimodal. A medida que la energía total aumenta el pico de menor energía potencial y, consecuentemente el de mayor energía cinética, que representa al estado cuasi-sólido, disminuye. Otra propiedad, poco común, de la transición, resultante de la ausencia de separación de fases, es la posibilidad de loops tipo Van der Waals en la curva calórica microcanónica. Los loops vienen de una transición desde un estado de alta temperatura, cuasi-sólido, a otro de baja temperatura, cuasi-líquido sin la posibilidad de coexistencia.

A pesar de estas diferencias cierta información acerca de la transición



**Figura 2.1:** Curva calórica del agua a presión atmosférica (línea llena) y la de un cluster de agua consistente en 20 moléculas obtenido mediante dinámica molecular.

termodinámica se mantiene aun en sistemas muy pequeños. En la Fig 2.1 mostramos la curva calórica de agua a  $P = 1 atm$  y la obtenida mediante dinámica molecular para un cluster de solo 20 moléculas [23]. Es claro que si bien la temperatura de la transición disminuye apreciablemente, así como el calor latente, algunas características generales se mantienen. Uno de los objetivos primordiales del estudio de los procesos de fragmentación está muy relacionado con la Fig. 2.1; como fue mencionado anteriormente uno espera obtener información acerca de EOS de la materia nuclear a partir de los resultados de fragmentación. Es claro de la Fig. 2.1. que, en el mejor de los casos, la información solo puede ser cualitativa.

Por último, es importante mencionar que en un excelente trabajo Pierre Labastie y Robert L. Whetten [6] demostraron que esta transición escala con el tamaño hacia la transición de fase en sistemas infinitos, en el sentido que el ancho del pico en el calor específico se angosta como  $N^{-1}$ . Nuevamente, la mayor diferencia con la transición del sistema infinito es la ausencia de coexistencia espacial de fases.

## 2.4 Discusión

Como se vio en este capítulo los fenómenos críticos están ligados a fluctuaciones presentes a toda escala espacial. Esta invariancia de escala hace que las fluctuaciones no tengan un tamaño característico; en el caso de la transición líquido-gas las gotas de líquido y burbujas de gas se interpenetran mutuamente a toda escala, y el espectro de masa que se obtiene es del tipo ley de potencia.

A principios de década del 80, se obtuvieron leyes de potencia en la distribución de tamaños de fragmentos en colisiones entre protones y Kr y Xe [24, 25]. Estos resultados fueron interpretadas como indicadores de la presencia de fenómeno crítico en multifragmentación nuclear. Estos trabajos iniciaron una exhaustiva búsqueda de signatures de criticalidad en procesos de fragmentación nuclear y en general se abrió el interrogante acerca de si se puede obtener información acerca de la ecuación de estado de un sistema dado conociendo solo resultados de experimentos de fragmentación. En el caso nuclear esta es la única fuente de información.

El caso de fragmentación presenta dos problemas importantes uno relacionado al espacio y otro al tiempo: el tamaño de los sistemas es pequeño, el proceso es irreversible y los fragmentos resultantes son sistemas metaestables. Sobre el primer problema, como vimos en la sección anterior, si bien el tamaño del sistema influye en la localización de la transición de fase no la inhibe y se han detectado transiciones de fase en sistemas formado por algunas decenas de partículas. Por otro lado, si bien los fragmentos resultantes son metaestables, como cualquier gota líquida en un volumen infinito, los tiempos característicos son lo suficientemente largos, comparados con los tiempos de fragmentación, como para poder calcular diferentes propiedades de los fragmentos.

En conclusión los experimentos de fragmentación son una buena prueba para medir nuestra habilidad para detectar y estudiar transiciones de fase en sistemas pequeños.

## Capítulo 3

# Procesos de fragmentación

Como se dijo anteriormente se conoce como fragmentación al proceso por el cual un sistema muy excitado se expande y rompe en muchos fragmentos de diversos tamaños. Podemos encontrar ejemplos de fragmentación en diversas áreas de la ciencia y en la vida cotidiana, desde la multifragmentación en colisiones nucleares hasta el caso más doméstico de una copa que, al caerse al piso, se hace añicos. Otros ejemplos son la fragmentación de superficies en experimentos de “sputtering” [2], la fragmentación de líquidos que atraviesan toberas, gotas de gases nobles [13], etc. Espectros de masa tipo ley de potencia han sido encontrados también en explosiones químicas y nucleares [26], en fragmentación de gotas de mercurio [27], en colisiones de rocas de basalto [28] y en muchos otros casos, ver [26, 27] y referencias allí mencionadas. Si bien la física involucrada en la fragmentación nuclear es muy distinta a la relacionada a la ruptura de basalto, los espectros de masa muestran similitudes asombrosas [28].

En este capítulo presentamos una breve introducción a los fenómenos de fragmentación, haciendo especial énfasis en el caso nuclear, ya que es una de las áreas donde entender los procesos de fragmentación puede dar mayor información.

Los enfoques teóricos desde los que se ha atacado este problema se pueden dividir en tres grupos. Al primer grupo pertenecen los métodos que se basan en la solución numérica de alguna ecuación cinética (BUU [29], VUU [30], Landau-Vlassov [31]) de esta manera se obtiene la evolución temporal de la densidad de probabilidad de un cuerpo, es claro que con este tipo de ataque no se tiene información acerca de las correlaciones a ningún orden. El segundo grupo está formado por diversos modelos estadísticos de fragmentación. Estos modelos se basan en suponer equilibrio termodinámico

durante el proceso de fragmentación, hipótesis no debidamente justificada en todos los casos. A este grupo pertenecen el "Statistical Multifragmentation Model" (SMFM) desarrollado en Copenhagen [32], el enfoque microcanónico de D. H. E. Gross [33], y el "expanding emitting source model" de W. A. Friedman que considera elementos estadísticos así como dinámicos [34], entre otros. Por último, el tercer grupo, contiene diversos intentos de simular la dinámica microscópica del proceso de fragmentación. Se han estudiado sistemas clásicos o semiclásicos formado por partículas con algún tipo de interacción que resulte en una ecuación de estado tipo Van der Waals. Se han utilizado diversos potenciales de interacción como el Lennard-Jones [13] (utilizado para simular gases nobles) y diversos potenciales creados especialmente para el caso nuclear [35, 36]. Este último grupo permite conocer las correlaciones a todo orden y aunque no tenga en cuenta los efectos cuánticos puede dar información válida acerca del proceso de fragmentación nuclear.

### 3.1 Fragmentación Nuclear

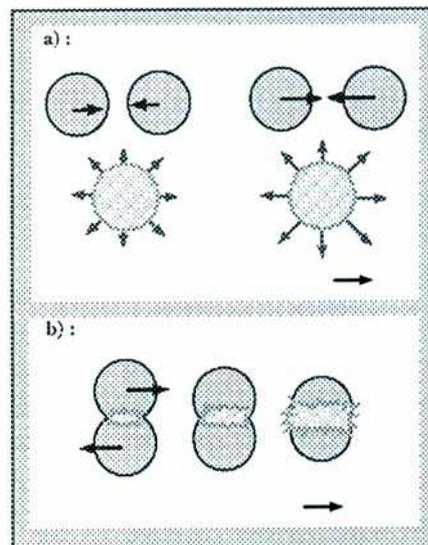
Hace más de una década, el comportamiento tipo Van der Waals de la fuerza nucleón-nucleón condujo a la idea de una transición de fase líquido-gas en la materia nuclear [16, 37, 38]. Los experimentos de fragmentación presentan la posibilidad de estudiar dicha conjetura. Es importante tener en cuenta que los únicos observables accesibles en los experimentos de fragmentación nuclear son las masas y momentos de los fragmentos asintóticos. La obtención de espectros de masa tipo ley de potencia en experimentos de fragmentación nuclear [24, 25] fue naturalmente asociada a un proceso crítico relacionado con la transición líquido-gas. Estos trabajos generaron un gran interés en el estudio de los procesos de fragmentación dado que de ellos se podría obtener información acerca de la EOS de la materia nuclear. Como fue explicado anteriormente, este tipo de experimento son la única forma de estudiar sistemas nucleares calientes y comprimidos en la Tierra. La interpretación de estos primeros resultados, espectros de masa inclusivos [24, 25], fueron muy criticados; de todas formas espectros de masa tipo ley de potencia fueron encontrados discriminando los eventos de acuerdo a la excitación del núcleo fragmentante. Como se explicó en capítulos anteriores el exponente asociado al espectro de masa en los procesos críticos debe estar entre 2 y 3. Algunos resultados de experimentos de fragmentación nuclear y experimentos computacionales muestran exponentes menores a 2, este hecho podría deberse al tamaño finito del sistema.

Los más recientes estudios de fragmentación nuclear pueden clasificarse

en dos grandes grupos. Dentro del primer grupo mencionamos los esfuerzos del grupo llamado EOS cuyos objetivos son el calculo de los exponentes críticos, [39, 40, 41, 42]. Estos cálculos están fuertemente basados en resultados obtenidos para el caso percolación, sin embargo en este trabajo no nos adentraremos en este tipo de ataque. El segundo grupo se concentra en la obtención de la curva calórica nuclear, aunque por supuesto determinar la temperatura en experimentos de fragmentación nuclear es muy complicado. Mas adelante en el capítulo retomaremos este tema para explicar distintos resultados de curvas calóricas nucleares.

### 3.1.1 Núcleos en ebullición

Para estudiar fragmentación de núcleos es necesario depositar energías de excitación de una magnitud de algunas veces la energía de unión. Colisiones a energías de bombardeo relativistas permiten obtener un amplio rango de energías de excitación. Describiremos brevemente dos casos paradigmáticos: colisiones centrales, que forman materia nuclear muy excitada llamada "fireball" nuclear Fig. 3.1 (a), y colisiones periféricas donde se producen núcleos "espectadores" altamente excitados, regiones oscuras de la Fig. 3.1 (b) mas una región de "fireball", región clara del esquema en Fig. 3.1 (b).



**Figura 3.1:** Esquema de colisión central, la flecha indica energía creciente (a) y colisión periférica (b) la flecha indica centralidad creciente.

La ventaja del caso central es que la excitación depende solamente de la energía del proyectil, mientras que el caso periférico la energía de excitación de los nucleones espectadores está relacionada también con el parámetro de impacto. La desventaja de las colisiones centrales radica en que, el modo colectivo de expansión es mucho mas importante [1].

### 3.1.2 Calorimetría nuclear

Calcular la temperatura de sistemas pequeños es una tarea muy complicada, solo recientemente se ha logrado medir la temperatura para clusters de Na [10, 11] en el régimen de bajas energías; si el sistema es un núcleo fuera de equilibrio la complicación aumenta terriblemente. En los experimentos de fragmentación los núcleos son sistemas aislados, para el ensamble microcanónico la temperatura está relacionada a la densidad de estados microscópicos accesibles por el sistema; determinar experimentalmente esta cantidad es imposible. Por lo tanto la determinación de la temperatura del sistema nuclear hace uso de observables simples que se puedan relacionar con la temperatura.

Mencionaremos dos formas de calcular temperatura en colisiones nucleares que son utilizadas frecuentemente: la llamada “temperatura de isótopos” y “temperatura de emisión”.

Si consideramos un sistema nuclear a densidad baja y en equilibrio térmico y químico,  $T$  puede ser calculada a partir de cocientes dobles de poblaciones,  $Y_1/Y_2$  y  $Y_3/Y_4$ , de isótopos que difieren en el mismo número de protones o neutrones, [43]:

$$R = \frac{Y_1/Y_2}{Y_3/Y_4} = ae^{[(B_1-B_2)-(B_3-B_4)]/T} = ae^{\Delta B/T} \quad (3.1)$$

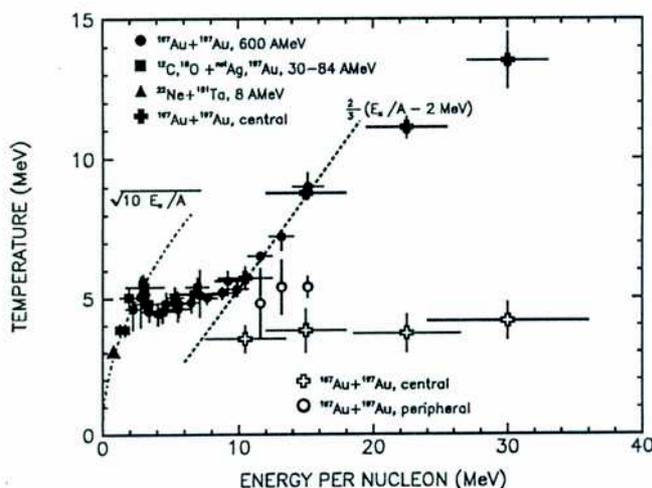
donde  $B_i$  denota la energía de unión de la especie  $i$  y la constante  $a$  depende de la masa y spin de los fragmentos. Por supuesto, una buena escala de temperatura solo se obtiene si  $R$  es muy sensible a la temperatura del sistema y las poblaciones de los fragmentos considerados son medibles para un gran rango de energías. En el apéndice A mostramos una derivación de esta temperatura, para una explicación mas detallada del método y algunas correcciones, ver [1, 43, 44, 45] y referencias ahí mencionadas. Es importante recalcar que esta temperatura, llamada “temperatura de isótopos”, se obtiene a partir de las poblaciones de distintos fragmentos, i.e. parte del espectro de masa, pensando que los distintos clusters están en equilibrio en el momento en que se produce la fragmentación y sin tener en cuenta la expansión colectiva, un factor importante en estos procesos. Por lo tanto para

verificar la validez de este termómetro es necesario comparar los resultados con otras maneras de inferir la temperatura.

La llamada "temperatura de emisión" se define analizando la poblaciones relativas de los distintos estados internos de los fragmentos [1]. Los modelos que describen el decaimiento estadístico de núcleos termalizados predicen que el cociente  $R_{ij}$  de las poblaciones de dos estados de un dado fragmento está dado por (ver [46] y referencias allí mencionadas):

$$R_{ij} = \frac{Y_i}{Y_j} = \frac{2J_i + 1}{2J_j + 1} \exp(-(E_i - E_j)/T_{em}), \quad (3.2)$$

donde  $Y_i$  es la población medida experimentalmente del estado  $i$  del fragmento en cuestión;  $E_i$  es la energía y  $J_i$  es el spin del estado  $i$ ;  $T_{em}$  es la temperatura de emisión.



**Figura 3.2:** Curva calórica nuclear. Temperatura de isótopos (símbolos cerrados) (J. Pochodzalla et al. Phys. Rev. Lett **75**, 1040, (1995)) y temperatura de emisión deducida de las poblaciones relativas de estados de  $^5\text{Li}$  (Serfling et. al. (enviado a Phys. Rev. Lett.)).

En la Fig. 3.2 mostramos la curva calórica obtenida en varios experimentos de fragmentación nuclear. Los símbolos llenos representan temperaturas calculadas con el método de los isótopos y los símbolos vacíos denotan temperatura de emisión. Analizando los símbolos llenos, vemos una región de

temperatura constante, para energías entre  $3\text{MeV}$  y  $10\text{MeV}$ . El valor de este plateau es  $\sim 5\text{MeV}$  que es la temperatura asociada a los procesos de fisión-evaporación en núcleos. La presencia del plateau fue asociada a la región de coexistencia entre el líquido y el gas. Para energías mayores a  $10\text{MeV}$  la temperatura de isótopos aumenta nuevamente. Esta región fue asociada con la presencia de la fase gaseosa de la materia nuclear. Llamaremos a este comportamiento para altas energías "rama gaseosa". La curva calórica que forman los símbolos llenos de la Fig. 3.2 tiene la forma esperada para una transición líquido gas en equilibrio. Sin embargo esta comparación no debe ser sobre-enfatizada. Los símbolos vacíos de la Fig. 3.2 muestran los resultados del cálculo de temperatura de emisión para reacciones de Au+Au centrales y periféricas. Estos datos, así como los trabajos [46, 40], confirman el plateau encontrado mediante la temperatura de isótopos pero no muestran el incremento de la temperatura para excitaciones grandes, i.e. no se observa la porción asociada a la fase gaseosa.

## 3.2 Discusión

En este capítulo hemos presentado una breve introducción a los fenómenos de fragmentación. Es importante resaltar que sistemas que difieren mucho en tamaño, potencial de interacción, etc, que sobrellevan fragmentación (fragmentación nuclear [1] o de gotas líquidas [13, 27], explosiones nucleares o químicas [26], colisiones de rocas de basalto [28], etc) muestran características muy similares, incluyendo espectros de masa tipo ley de potencia. El hecho que sistemas muy diferentes se comporten en forma similar no es nuevo en física ni en esta tesis; como vimos en el capítulo 2 esto es exactamente lo que pasa, para muchos sistemas, en la vecindad de su punto crítico y que llevó a la idea de clases de universalidad. La posible existencia de una clase de universalidad que abarque muchos fenómenos de fragmentación es una idea atractiva pero todavía no debidamente probada.

Una cantidad particularmente importante para entender los procesos de fragmentación es la curva calórica. En la Fig. 2.1 se muestra la forma usual de la curva calórica para la transición de 1<sup>er</sup> orden líquido-gas. Para el rango de energías donde la temperatura es constante las fases líquido y gas coexisten. Si se le entrega energía al sistema, éste evaporará partículas (aumentando la masa de la fase gaseosa) pero no se calentará. Si seguimos aumentando la energía cada vez tendremos menos líquido. Cuando todo el sistema este en su fase gaseosa, un incremento de energía resulta, nuevamente, en un aumento de la temperatura. Si analizamos la temperatura de

---

isótopos en la curva calórica nuclear (puntos llenos de la Fig. 3.2), veremos un comportamiento muy similar al de la transición líquido-gas antedicho. El plateau, para energías en el rango  $3MeV-10MeV$  fue asociado a la coexistencia entre gotas líquidas y nucleones libres (vapor). El incremento de la temperatura para energías mayores a  $10MeV$  fue asociado a la presencia de la fase gaseosa. Como dijimos anteriormente esta analogía no debe sobreestimarse. Los procesos de fragmentación son procesos irreversibles, donde uno solo controla la energía del estado inicial.

Por otro lado, si analizamos la temperatura de emisión, símbolo vacíos de la Fig. 3.2, notamos que el plateau es confirmado pero no se observa el incremento de temperatura para altas energías.

Uno de los objetivos principales del presenta trabajo es la determinación de la curva calórica de nuestro sistema clásico y entender su significado.

## Capítulo 4

# Experimentos computacionales

La física computacional ha jugado un rol preponderante en el estudio de procesos de fragmentación y mecánica estadística de sistemas pequeños. En este capítulo describimos los modelos que utilizamos para estudiar procesos de fragmentación en gotas excitadas.

En esta tesis presentamos resultados de experimentos computacionales sobre fragmentación de gotas excitadas térmicamente cuyas partículas interactúan mediante el conocido potencial de Lennard-Jones (6-12) (L-J). Este potencial presenta una repulsión de corto alcance y una parte atractiva de rango un poco mayor. Este tipo de interacción es la resultante de fuerzas tipo Van der Waals y es adecuado para describir sistemas de gases nobles [47]. Como veremos con más detalle adelante en el capítulo los sistemas de L-J tienen, en lo que se refiere a la transición gas-líquido, un comportamiento tipo Van der Waals. Decidimos estudiar fragmentación en clusters de L-J dada su simpleza y que representa un sistema muy estudiado, su ecuación de estado es muy conocida.

Para estudiar los procesos de fragmentación usamos la técnica de dinámica molecular, que consiste en integrar las ecuaciones de movimiento clásicas del sistema de partículas interactuantes, de esta manera se tiene información de las posiciones y velocidades de todas las partículas para todo tiempo.

Entender la fragmentación en gotas de Lennard-Jones no implica necesariamente entenderla en sistemas más complicados, núcleos o metales, pero si no entendemos la fragmentación en el simple caso de L-J tampoco la entenderemos en los casos más específicos o de interés tecnológico. A pesar de su simpleza los sistemas de L-J se comportan de forma muy similar, en

cuanto los patrones cualitativos de fragmentación, a los núcleos. Los ingredientes básicos son la repulsión a corto rango, que hace que una gota caliente y comprimida se expanda, y su parte atractiva que permite que se produzcan fragmentos unidos. Recordemos que sistemas muy diferentes entre sí presentan patrones de fragmentación muy similares, por lo que muchas de las características no dependen cualitativamente del modelo utilizado para el estudio de fragmentación.

## 4.1 El potencial de Lennard-Jones

Las partículas que forman nuestro sistema interactúan mediante un potencial de dos cuerpos de Lennard Jones truncado a una distancia  $r_c$ :

$$V(r) = \begin{cases} 4\epsilon \left[ \left(\frac{\sigma}{r}\right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r}\right)^6 - \left(\frac{\sigma}{r_c}\right)^{12} + \left(\frac{\sigma}{r_c}\right)^6 \right] & r < r_c \\ 0 & r \geq r_c \end{cases} \quad (4.1)$$

Tomamos  $r_c = 3\sigma$ , siendo  $\sigma$  la distancia para la cual el potencial cambia de signo. Los parámetros  $\sigma$ , que determina la escala espacial, y  $\epsilon$ , que determina la escala de energías, pueden ser ajustados para describir distintas el comportamiento de los gases nobles; para el argón son:  $\sigma = 3\text{\AA}$  y  $\epsilon = 120K$ .

Este potencial presenta un diagrama de fases, que es similar al predicho para la materia nuclear, salvo que la materia nuclear no presenta la transición líquido sólido.

## 4.2 Dinámica molecular

La técnica de dinámica molecular (MD debido a su nombre en inglés) consiste básicamente en integrar numéricamente las ecuaciones de Newton en el tiempo. En el caso del potencial de Lennard-Jones:

$$m \frac{\partial^2 \mathbf{r}}{\partial t^2} = 48 \frac{\epsilon}{\sigma} \left[ \left(\frac{\sigma}{r}\right)^{14} - 0.5 \left(\frac{\sigma}{r}\right)^8 \right] \frac{\mathbf{r}}{\sigma}. \quad (4.2)$$

Que se puede escribir, si definimos las siguientes variables adimensionales,  $\mathbf{r}' = \mathbf{r}/\sigma$  y  $t' = t/t_0$ , de la siguiente manera:

$$\frac{m\sigma}{t_0^2} \frac{\partial^2 \mathbf{r}'}{\partial t'^2} = 48 \frac{\epsilon}{\sigma} \left[ r'^{14} - 0.5 r'^8 \right] \mathbf{r}' \quad (4.3)$$

tomamos a la unidad de tiempo:  $t_0 = \sqrt{m\sigma^2/48\epsilon}$ . Las unidades de energía y distancia naturales son,  $\epsilon$  y  $\sigma$  respectivamente. Todos los resultados presentados en la presente tesis utilizarán las unidades anteriores y la cualquier cantidad extensiva será presentada por partícula.

Hay muchos métodos numéricos para integrar ecuaciones del tipo de la ec. 4.3; para una descripción detallada ver [48, 49, 50] y referencias allí mencionadas. Nosotros hemos utilizado el algoritmo conocido como Verlet de segundo orden. Este algoritmo tiene la ventaja de, a pesar de ser muy simple, tener muy buena conservación de energía, particularmente a tiempos largos, muy chica deriva, y el algoritmo es reversible temporal, [49]. Por estas razones el algoritmo de Verlet es muy popular en simulaciones de dinámica molecular. Si bien el método de integración de las ecuaciones de movimiento es muy importante para que un código de MD resulte eficiente, la mayor parte del tiempo de cómputo es usado para el cálculo de las fuerzas entre partículas. Si el potencial de interacción es de corto rango, como en nuestro caso, al calcular la fuerza que siente una dada partícula solo una cuantas "vecinas" tendrán contribuciones distintas de cero. Se han desarrollado distintos algoritmos que mantienen información, de alguna manera, de las interacciones y evita calcular la fuerza entre dos partículas que se encuentran a una distancia mucho mayor que radio de corte del potencial. De esta manera, la evaluación de las fuerzas se reduce de un problema proporcional a  $N^2$ , donde  $N$  es el número de partículas en nuestro sistema, a otro que solo va como  $N$  [49, 51]. Lamentablemente algunos de estos métodos, como el de celdas de Rapaport [51], no son muy eficientes para el caso de gotas que fragmentan.

Como ya explicamos la unidad de tiempo natural es:  $t_0 = \sqrt{m\sigma^2/48\epsilon}$ , para el caso del argón tenemos:  $t_0 \sim 3.1 \times 10^{-13} s$ . Para integrar las ecuaciones de movimiento usamos un paso temporal  $t_{int} = 0.001t_0$  lo que asegura una conservación de energía en una parte por millón.

### 4.3 Fragmentación de gotas tridimensionales

Como ya se explicó, estudiamos el proceso de fragmentación de gotas bi y tridimensionales de Lennard-Jones. La energía de excitación inicial es suministrada usualmente al sistema mediante colisiones. Dado que hay muchas preguntas sin respuestas en fragmentación decidimos mantener el problema lo mas simple posible, manteniendo todas las características importantes del proceso de fragmentación. Por lo tanto estudiamos fragmentación en gotas de L-J excitadas térmicamente. Las configuraciones iniciales para nue-

stros experimentos computacionales fueron obtenidas al “cortar” gotas de sistemas periódicos calientes y comprimidos en equilibrio. Para el caso 3D, mediante la técnica de MD, termalizamos sistemas de  $N = 512$  partículas de Lennard-Jones a una densidad y temperatura que corresponde a un líquido caliente y comprimido. Una vez que el sistema periódico está termalizado se “corta” una gota lo mas esférica posible de  $N = 147$  partículas, y se la deja explotar en el vacío, i.e. a presión  $P = 0$ , utilizando la técnica de MD. La energía total de la gota se controla de esta manera mediante la temperatura y densidad del sistema periódico. Para cada energía de excitación de la gota se realizaron no menos de 200 explosiones. Para obtener una nueva configuración inicial, se deja evolucionar el sistema periódico termalizado durante un corto tiempo, para romper las correlaciones, y otra gota es cortada. Las distintas gotas generadas mediante este procedimiento no tienen exactamente la misma energía, por lo que sus velocidades son re-escaladas para obtener exactamente la energía deseada, que tomamos como el valor medio de la energía resultante de cortar varias gotas. Es importante notar que de esta manera el estado inicial de las gotas presentan las correlaciones en momentos y coordenadas típicas del líquido en cuestión.

El estado inicial de las gotas está caracterizado, macroscópicamente, por su energía y densidad (tomada como la del sistema periódico). La densidad determina como se reparte la energía total entre cinética y potencial. Estudiamos para  $\rho = 0.85\sigma^{-3}$  las siguientes energías:  $E = -2.4\epsilon$ ,  $E = -1.5\epsilon$ ,  $E = -1\epsilon$ ,  $E = -0.5\epsilon$ ,  $E = 0\epsilon$ ,  $E = 0.5\epsilon$ ,  $E = 0.9\epsilon$ ,  $E = 1.2\epsilon$  y  $E = 1.8\epsilon$ . También estudiamos los casos  $\rho = 1\sigma^{-3}$   $E = -2\epsilon$  y  $\rho = 1.09\sigma^{-3}$   $E = -2\epsilon$ . Para cada caso realizamos no menos de 200 simulaciones de fragmentación. Dichas condiciones iniciales, como veremos a continuación, representan un rango muy amplio en lo que se refiere a su forma de fragmentación. La temperatura del sistema periódico del que se cortan las gotas está en el rango  $\sim 1.4\epsilon$  a  $\sim 4.3\epsilon$ ; de la ecuación de estado del sistema de Lennard Jones [52] podemos ver que el estado inicial de nuestros experimentos de fragmentación son gotas líquidas muy calientes y densas.

En la Fig. 4.1 mostramos los espectros de masa asintóticos, i.e. el número medio de fragmentos en función de su masa, para energías (a)  $E = 2.2\epsilon$ , (b)  $E = 1.8\epsilon$ , (c)  $E = 0.9\epsilon$ , (d)  $E = 0.5\epsilon$ , (e)  $E = -0.5\epsilon$ , (f)  $E = -2\epsilon$ . En el próximo capítulo haremos una descripción detallada de las distintas definiciones de fragmento y explicaremos que entendemos por tiempos asintóticos. Por ahora nos conformaremos con saber que el espectro de masa asintótico nos da información de la forma en que el sistema se partió, para tiempos en los que los fragmentos están bien separados entre sí y en equilibrio interno. Se puede ver como para  $E = -2\epsilon$ , Fig. 4.1 (f) el espectro

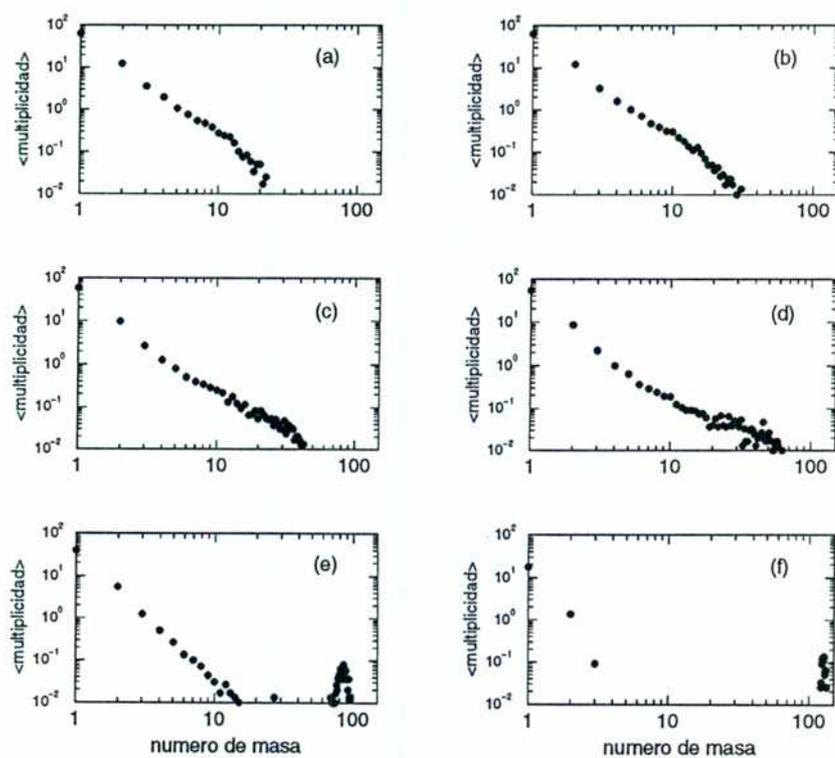


Figura 4.1: Espectros de masa asintóticos. (a)  $E = 2.2\epsilon$ , (b)  $E = 1.8\epsilon$ , (c)  $E = 0.9\epsilon$ , (d)  $E = 0.5\epsilon$ , (e)  $E = -0.5\epsilon$ , (f)  $E = -2\epsilon$ .

asintótico tiene forma de U, para excitaciones bajas el sistema está formado asintóticamente por un gran cluster, que comprende gran parte de la masa total, y unos pocos fragmentos pequeños. Para energías grandes el sistema se rompe en muchos clusters pequeños, y el espectro de masa muestra un decaimiento rápido para masas grandes; en la Fig. 4.1 (a) se puede ver que no hay clusters de masa mayor a  $\sim 25$  átomos.

Para que el proceso que estamos estudiando quede mas claro, en la Fig 4.2 mostramos imágenes típicas del proceso de fragmentación para  $E = -0.5\epsilon$  a distintos tiempos. En la Fig.4.2 mostramos la configuración del sistema a tiempo  $t = 5t_0$  (izquierda), la configuración del sistema para  $t = 25t_0$  (centro) y para tiempo  $t = 150t_0$  (derecha). Recordemos que para  $E = -0.5\epsilon$  el espectro de masa presenta forma de U. En la figura 4.2 se ve claramente que, para esta energía relativamente baja, gran parte de la masa inicial se mantiene unida.



**Figura 4.2:** Imágenes del proceso de fragmentación de una gota de energía  $E = -0.5\epsilon$ , para tiempos  $t = 5t_0$ ,  $t = 25t_0$  y  $t = 150t_0$ .

En la Fig. 4.3 mostramos imágenes correspondientes a una energía mucho mayor  $E = 0.9\epsilon$ , para tiempos  $t = 5t_0$  (izquierda),  $t = 25t_0$  (centro) y  $t = 150t_0$  (derecha). Para esta energía alta el espectro de masa muestra un rápido decaimiento para masas grandes; nótese en la Fig. 4.3 que no quedan fragmentos grandes.



**Figura 4.3:** Imágenes del proceso de fragmentación de una gota de energía  $E = 0.9\epsilon$ , para tiempos  $t = 5t_0$ ,  $t = 25t_0$  y  $t = 150t_0$ .

## Capítulo 5

# Formación y emisión de fragmentos

El observable mas importante en los procesos de fragmentación es el espectro de masa. Éste indica la forma en que el sistema se rompe de acuerdo con la energía de excitación. También tiene mucha importancia ya que es de los pocos observables que se pueden medir en experimentos.

Es claro que si pretendemos entender el proceso de formación de fragmentos y saber que inestabilidades en el sistema lo causan es condición indispensable para poder calcular con precisión el tiempo en el cual aparecen las fluctuaciones que originarán los fragmentos asintóticos, i.e. el tiempo de formación de fragmentos. También es de mucha importancia conocer el tiempo en el cual los fragmentos son emitidos. Por lo tanto tenemos dos tiempos característicos que, en principio, dependen de la energía del sistema, un tiempo característico de formación de fragmentos  $\tau_{ff}(E)$  y otro de emisión de fragmentos  $\tau_{fe}(E)$ .

En este capítulo describiremos diferentes métodos de reconocimiento de fragmentos en experimentos computacionales, basados en distintas definiciones. Una vez explicadas las propiedades de los diferentes métodos, mostraremos los resultados de aplicarlos a nuestras simulaciones de fragmentación de gotas de L-J. Veremos que de esta manera podemos calcular los tiempos de formación y emisión de fragmentos  $\tau_{ff}(E)$  y  $\tau_{fe}(E)$ .

## 5.1 Reconocimiento de fragmentos en simulaciones computacionales

Ya en los primeros estudios de fragmentación mediante simulaciones numéricas estaba claro que el espectro de masa asintótico es uno de los observables mas importantes en este tipo de proceso, [13]. Como ya se dijo anteriormente el espectro de masa caracteriza el grado de excitación del sistema. También estuvo claro desde el principio la importancia de caracterizar los tiempos en los que los fragmentos son emitidos [13].

La utilización de la técnica de dinámica molecular permite conocer las posiciones y velocidades de todas las partículas a todo tiempo. A pesar de las ventajas evidentes de este tipo de método, manejar tanta información no es sencillo. En particular el reconocimiento de fragmentos ha recibido mucha atención en los últimos años.

El método de reconocimiento de fragmentos utilizado en los primeros estudios de fragmentación vía MD, está inspirado en problemas mas simples como percolación, recibe el nombre de método configuracional o MST (minimum spanning tree), y solo refleja información acerca de las posiciones en el espacio de coordenadas de las partículas. Otro método, muy utilizado recientemente, que llamamos MSTE (minimum spanning tree in energy space), está basado en el anterior pero utiliza información de la energía relativa entre pares de partículas. Por ultimo, recientemente se ha propuesto un método que busca la fluctuación de densidad mas unida en el espacio de fases [53]. Este último método, que analiza el sistema globalmente y no de a pares, ha sido particularmente útil para revelar la dinámica de formación de fragmentos.

### 5.1.1 Método configuracional o MST

El método MST (minimum spanning tree) de reconocimiento de fragmentos está basado en la siguiente definición de fragmento. Dado un conjunto de partículas  $i, j, k, \dots$ , pertenecen a un cluster  $C_i$  si:

$$\forall i \in C_i, \exists j \in C_i / |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j| \leq R_{cl} \quad (5.1)$$

donde  $\mathbf{r}_i$  y  $\mathbf{r}_j$  denotan las posiciones de las partículas  $i$  y  $j$  y  $R_{cl}$  es un parámetro llamado radio de clusterización. Este es un parámetro mas o menos arbitrario del mismo orden de magnitud que el rango de potencial. Es usual, en simulaciones numéricas, truncar el potencial de interacción a alguna distancia  $r_c$ . En este caso se tiene que cumplir  $R_{cl} \leq r_c$ .

Es claro de la definición de cluster MST que no se tienen en cuenta los momentos de las partículas. El algoritmo MST solo debe ser utilizado para tiempos largos, cuando el sistema esta formado por clusters en equilibrio y separados entre sí. Por estas razones, este método no da información útil en las etapas tempranas del proceso de fragmentación cuando el sistema es todavía denso, estas etapas tempranas son precisamente las mas importantes.

### 5.1.2 Método MSTE

Una variación sobre el método MST, aunque en el mismo espíritu es considerar estructuras simplemente conectadas en el espacio de energía de unión de dos partículas. La definición de fragmento basada en esta idea, que llamaremos MSTE (minimum spanning tree in energy space), es la siguiente. Como antes  $i, j, k...$  denotan partículas que forman el cluster  $C_i$ .

$$\forall i \in C_i, \exists j \in C_i / e_{ij} \leq 0 \quad (5.2)$$

con  $e_{ij} = V(r_{ij}) + (\mathbf{p}_i - \mathbf{p}_j)^2/4\mu$ , donde  $\mu$  es la masa reducida del par de partículas. De esta manera los clusters están formados por pares de partículas unidas. Con esta definición los momentos de las partículas son tenidos en cuenta.

### 5.1.3 Método ECRA

Para finalizar describiremos el método que llamamos ECFM (early cluster formation model) [53], en el cual los clusters están definidos como los que forman la partición mas unida del sistema. Esto es, la partición, definida por el conjunto de clusters  $\{C_i\}$ , que minimiza la suma de las energías de cada cluster:

$$E_{\{C_i\}} = \sum_i \left[ \sum_{j \in C_i} K_j^{cm} + \sum_{j < k \in C_i} V(r_{jk}) \right] \quad (5.3)$$

donde la primera suma recorre los diferente clusters y las otras dos sobre partículas;  $K_j^{cm}$  es la energía cinética de la partícula  $j$  medida desde el c.m. del cluster al que pertenece y  $V(r_{jk})$  es la energía potencial entre las partículas  $i$  y  $j$  que pertenecen al mismo cluster.

Encontrar la partición mas unida no es una tarea fácil. Un ataque de fuerza bruta, i.e. recorrer todas las distintas particiones para encontrar la mas unida, es inviable. En [53] se propuso un algoritmo de optimización basado en la técnica de recocido simulado [54] para resolver este problema, este algoritmo se conoce con el nombre de ECRA (early cluster recognition

algorithm). Este método fue utilizado para estudiar fragmentación en distintos sistemas finitos [53, 55], extendido para el caso de sistemas periódicos en expansión [15] y para ecuaciones cinéticas [56]. En lo que sigue explicaremos muy brevemente el método ECRA.

Tomamos como función costo a la energía de unión de la partición:  $E_{\{C_i\}}$ . La idea es utilizar el método de Metropolis Monte Carlo [57] para recorrer las particiones del sistema, con un parámetro de temperatura que se disminuye lentamente. Este tipo de método es conocido como recocido simulado, por razones obvias. Si llamamos  $\tau$  al parámetro de temperatura, el método de Metropolis recorrerá las particiones del sistema y, la distribución de probabilidad estacionaria de las particiones es:

$$P(\{C_i\}) \propto \exp(-E_{\{C_i\}}/\tau). \quad (5.4)$$

El procedimiento es el siguiente. Empezamos con una partición dada  $\{C_i\}$ ; a partir de ella se genera otra partición vecina,  $\{C'_i\}$ , al transferir una partícula, perteneciente a un cluster  $C_i$ , a otro  $C_j$ , considerando la posibilidad de dejarla libre. Este cambio de partición involucra un cambio en la función costo  $\Delta E(\{C_i\} \rightarrow \{C'_i\})$ . Según el algoritmo de Metropolis la nueva configuración se acepta con una probabilidad:

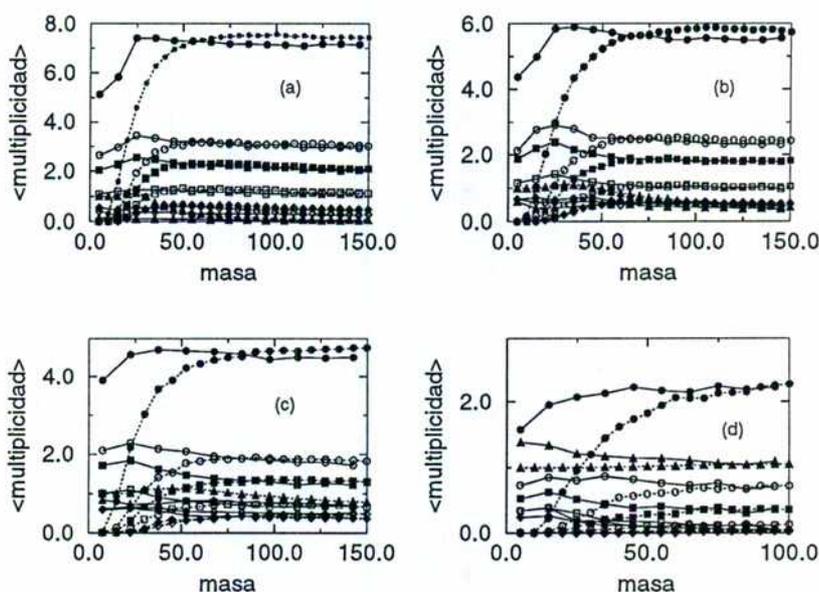
$$P = \min(1, \exp(-\Delta E(\{C_i\} \rightarrow \{C'_i\})/\tau)). \quad (5.5)$$

De esta manera se genera una cadena de Markov en el espacio de las particiones del sistema. A medida que se disminuye el parámetro de temperatura las particiones recorridas por la cadena de Markov se van concentrando alrededor de uno o mas mínimos de la energía. Hasta que el algoritmo finalmente converge a una partición dada. Con este tipo de método puede ocurrir que el mínimo hallado sea local y no el óptimo, pero si el parámetro de temperatura se disminuye lentamente se puede estar seguro de obtener una partición sub-óptima bastante buena.

La manera de "enfriar" el sistema que utilizamos es la siguiente. Intentamos  $N_a \times N$  cambios de configuración para la misma temperatura  $\tau$ . Siendo  $N = 147$  el número de partículas. Luego se cambia la temperatura a  $\alpha \times \tau$ . Y se realizan  $N_a \times N$  intentos de cambio de configuración. Este procedimiento se repite hasta que el algoritmo converge a una dada partición. Los números  $N_a$  y  $\alpha$  se elijen de manera de que el algoritmo encuentre sub-óptimos buenos y el tiempo de cálculo no se demasiado largo. En nuestro caso utilizamos  $N_a = 20$  y  $\alpha = 0.999$ .

## 5.2 Escalas de tiempo de formación y emisión de fragmentos

En este trabajo nos centraremos en los resultados MST y ECRA que, como veremos, dan información muy importante para entender el proceso de fragmentación y permiten identificar los tiempos de formación y emisión de fragmentos. Por otro lado, el método MSTE, muy utilizado en sistemas en equilibrio y en fragmentación, no es apropiado para este último caso. Para una comparación entre los diferentes métodos ver [59].



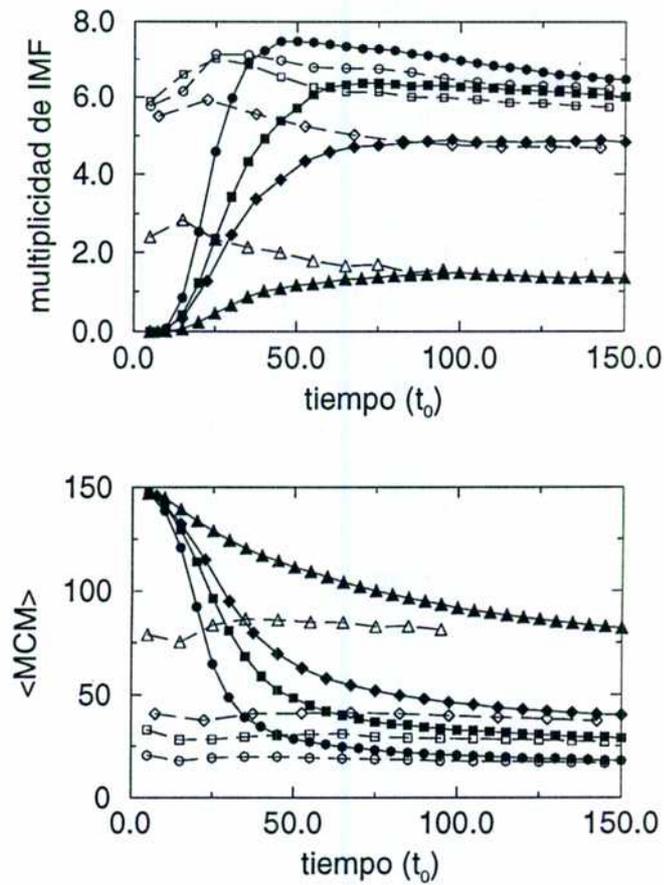
**Figura 5.1:** Multiplicidades medias en función del tiempo. (a)  $E = 1.8\epsilon$ , (b)  $E = 0.9\epsilon$ , (c)  $E = 0.5\epsilon$ , (d)  $E = -0.5\epsilon$ , calculada con el algoritmo ECRA (líneas llenas) y MST (líneas a puntos). Para los siguientes rangos de masa: círculos llenos  $3 \leq n \leq 7$ , círculos vacíos  $5 \leq n \leq 9$ , cuadrados llenos  $7 \leq n \leq 13$ , cuadrados vacíos  $10 \leq n \leq 15$ , rombos llenos  $15 \leq n \leq 20$ , rombos vacíos  $20 \leq n \leq 30$ , triángulos llenos  $30 \leq n$ .

Como se explicó anteriormente, para entender los procesos de fragmentación

es de vital importancia conocer cuando los fragmentos se forman y cuando son emitidos. En la Fig. 5.1 mostramos la multiplicidad de fragmentos para distintos rangos de masa en función del tiempo. Las líneas llenas representan resultados obtenidos mediante el formalismo ECRA, las rayadas refieren al método MST. En la figura se muestran resultados para distintas energías,  $E = 1.8\epsilon$  Fig. 5.1(a),  $E = 0.9\epsilon$  Fig. 5.1(b),  $E = 0.5\epsilon$  Fig. 5.1(c),  $E = -0.5\epsilon$  Fig. 5.1(d). Los rangos de masa son los siguientes: círculos llenos  $3 \leq n \leq 7$ , círculos vacíos  $5 \leq n \leq 9$ , cuadrados llenos  $7 \leq n \leq 13$ , cuadrados vacíos  $10 \leq n \leq 15$ , rombos llenos  $15 \leq n \leq 20$ , rombos vacíos  $20 \leq n \leq 30$ , triángulos llenos  $30 \leq n$ . Es claro que las multiplicidades calculadas con ECRA alcanzan sus valores asintóticos para tiempos más cortos que las calculadas con el método MST. Lo que indica que el algoritmo ECRA reconoce los fragmentos finales a tiempos menores que el MST.

Para sintetizar la información contenida en la Fig. 5.1, mostramos el número de masa medio del cluster más grande y la multiplicidad de fragmentos de masa intermedia en función del tiempo Fig. 5.2. Los fragmentos de masa intermedia, llamados IMF, son usualmente considerados los clusters de número de masa mayor a 3 y menor que, aproximadamente, un tercio de la masa total; en nuestro caso tomamos el límite superior como 50. Estos fragmentos son muy pequeños para ser residuos de procesos de evaporación o en caso nuclear residuos de fisión, y muy grandes para ser clusters evaporados y denotan la presencia de procesos diferentes a evaporación-fisión; son usualmente asociados con la presencia de transiciones de fase. Pero ahora nos importa la formación y emisión de fragmentos. De la Fig. 5.2 también se desprende que el ECRA revela la existencia de los fragmentos asintóticos antes que el método MST.

Hasta ahora hemos estudiado la población de distintos bins de masa en función del tiempo, sin prestar atención a la estabilidad microscópica de los clusters. En este sentido definimos el siguiente coeficiente de estabilidad microscópica. A un tiempo  $t$  nuestro sistema estará formado por un conjunto de fragmentos  $\{C_i(t)\}$ , que con el paso del tiempo se transformarán en los fragmentos asintóticos,  $\{C_i(t_\infty)\}$ . Consideremos un cluster  $C_i(t)$  que contiene  $n_i(t)$  partículas, por lo que el número de pares es:  $b_i(t) = n_i(t)(n_i(t) - 1)/2$ . Las partículas que forman el cluster  $C_i(t)$  pueden permanecer unidas a tiempos asintóticos o pertenecer a diferentes clusters. Definimos  $a_i(t)$  como el número de pares de partículas que pertenecen a  $C_i(t)$  y también están unidas en algún cluster asintótico. Ahora podemos

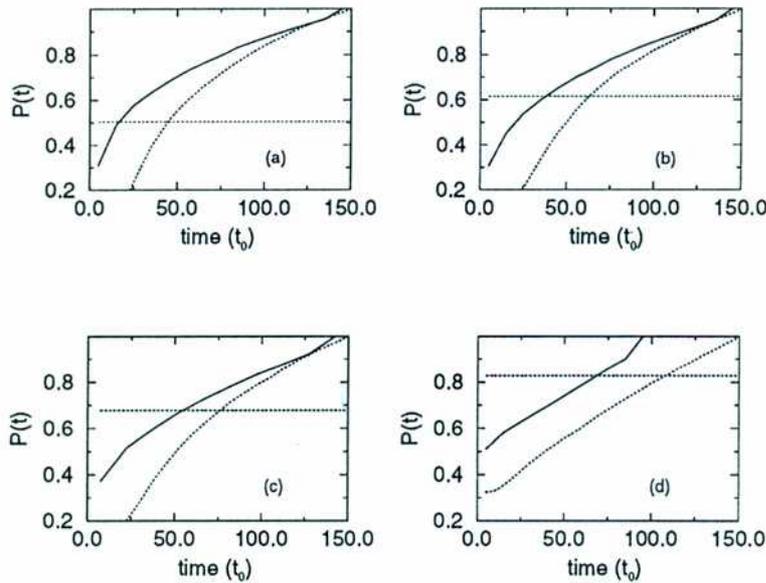


**Figura 5.2:** (a) Multiplicidad de fragmentos de masa intermedia en función del tiempo. (b) Masa media del fragmento mas grande vs. tiempo. Líneas rayadas denotan resultados ECRA mientras que llenas denotan MST. Círculos  $E = 1.8\epsilon$ , cuadrados  $E = 0.9\epsilon$ , rombos  $E = 0.5\epsilon$  y triángulos  $E = -0.5\epsilon$ .

definir el coeficiente de estabilidad microscópica:

$$P(t) = \frac{1}{N_{ev}} \sum_{ev} \frac{1}{\sum_{cl} m_i(t)} \sum_{cl} m_i(t) \frac{a_i(t)}{b_i(t)}, \quad (5.6)$$

donde la primer suma es sobre los diferentes eventos para una dada energía,  $N_{ev}$  es el número de eventos, y las otras dos sumatorias recorren los clusters a tiempo  $t$ . Es claro que el coeficiente de estabilidad toma el valor 1 si las particiones a tiempo  $t$  y las asintóticas son iguales, por otro lado éste coeficiente toma un valor cercano a 0 si las particiones son muy diferentes. Por supuesto se puede calcular el coeficiente de persistencia tanto para clusters MST o ECRA. En la Fig. 5.3 mostramos  $P(t)$  para distintas energías tanto para los métodos ECRA (lineas llenas) y MST (lineas de puntos). Las líneas horizontales representan un valor de referencia, calculado como el coeficiente de persistencia obtenido comparando la partición asintótica con otra obtenida “evaporando” una partícula de cada cluster asintótico [58].



**Figura 5.3:** Coeficiente de persistencia. Líneas llenas denotan resultados ECRA, rayadas MST. (a)  $E = 1.8\epsilon$ , (b)  $E = 0.9\epsilon$ , (c)  $E = 0.5\epsilon$  y (d)  $E = -0.5\epsilon$ .

Del análisis presentado en este capítulo se desprende que los fragmentos se forman en el espacio de fases, y son reconocidos por el método ECRA,

mucho antes de separarse en el espacio de configuraciones.

De la Fig. 5.3 podemos definir el tiempo de formación de fragmentos,  $\tau_{ff}(E)$  cuando la partición ECRA difiere de la asintótica en un proceso de evaporación, i.e. cuando el coeficiente de persistencia ECRA cruza el valor de referencia. De manera similar podemos definir el tiempo de emisión de fragmentos cuando la partición MST difiere de la asintótica en un proceso evaporativo.

Los tiempos de formación obtenidos son:  $\tau_{ff}(1.8\epsilon) \sim 20t_0$ ,  $\tau_{ff}(0.9\epsilon) \sim 35t_0$ ,  $\tau_{ff}(0.5\epsilon) \sim 52t_0$ ,  $\tau_{ff}(-0.5\epsilon) \sim 75t_0$ . Es importante aclarar que a los tiempos definidos el sistema está roto en el espacio de fases, método ECRA, pero no del todo fragmentado en el espacio de coordenadas, análisis MST, y lo que es más el máximo fragmento MST a  $\tau_{ff}(E)$  contiene más de la mitad de la masa total del sistema, Fig. 5.2. Éste hecho resultará de crucial importancia más adelante.

Por otro lado obtuvimos los siguientes tiempos de emisión de fragmentos:  $\tau_{fe}(1.8\epsilon) \sim 40t_0$ ,  $\tau_{fe}(0.9\epsilon) \sim 60t_0$ ,  $\tau_{fe}(0.5\epsilon) \sim 67t_0$ ,  $\tau_{fe}(-0.5\epsilon) \sim 100t_0$ .

### 5.3 Discusión

En este capítulo mostramos un resultado muy importante. Los fragmentos se forman, en el espacio de fase, muy temprano en la evolución del sistema, cuando éste es aun denso, y mucho antes de ser emitidos y consecuentemente reconocidos por el algoritmo MST. Llamaremos a la partición ECRA para tiempos menores que los de emisión “fluctuación más unida en el espacio de fases” y reservaremos el nombre fragmentos o clusters para tiempos mayores que  $\tau_{fe}$ , i.e. cuando la partición ECRA coincide con la MST y los fragmentos son entidades bien definidas en el espacio de coordenadas. Llamamos tiempos asintóticos a tiempos mayores a los de emisión, i.e. cuando los resultados MST alcanzan sus valores asintóticos y, por supuesto, coinciden con los del ECRA.

Mediante en análisis de nuestras evoluciones con diferentes métodos de reconocimiento de clusters pudimos identificar los tiempos de formación (cuando la partición ECRA es similar a la asintótica) y emisión de fragmentos (cuando el método MST reconoce los fragmentos asintóticos).

Para terminar este capítulo haremos una breve comparación de los distintos métodos de reconocimiento de fragmentos. Empecemos por el MST. Si bien, como vimos, no brinda información acerca de las primeras etapas del proceso de fragmentación, permite conocer los tiempos a los cuales los fragmentos, presentes como la fluctuación de densidad más unida en el es-

pacio de fases, dejan de interactuar entre sí, i.e. los tiempos de emisión. Por otro lado la aplicación del método ECRA lleva al importante resultado que los fragmentos asintóticos se forman en el espacio de las fases a tiempos muy tempranos, cuando gran parte de la masa del sistema interactúa entre sí, formando un gran cluster configuracional. La desventaja de este método radica en su mayor complejidad computacional y un incremento importante del tiempo de cálculo. Como dijimos, está basado en un algoritmo de optimización de recocido simulado (simulated annealing) por lo que la optimización de los códigos, en lo que se refiere a la tasa de enfriamiento y elección de la cadena de Markov subyacente, es un proceso complicado y largo. Por último, mencionemos que el método MSTE no es muy apropiado para estudiar fragmentación. Esto se debe a que los fragmentos obtenidos mediante la condición impuesta por la ecuación 5.2 no necesariamente forman estructuras unidas, particularmente cuando el sistema presenta una expansión colectiva como en nuestro caso. Las estructuras donde las partículas están unidas de a pares no necesariamente estarán unidas, contrariamente con lo que sucede con el algoritmo ECRA que busca precisamente la partición mas unida. Usualmente los resultados MSTE toman sus valores asintóticos para tiempos intermedios entre los relacionado a los métodos ECRA y MST, para una exhaustiva comparación entre ECRA y MST ver [59].

## Capítulo 6

# Propiedades de los fragmentos

En este capítulo estudiamos la evolución temporal de distintas propiedades internas de los fragmentos. En particular estudiamos la energía cinética y potencial en función de la masa de los fragmentos, para distintos tiempos. Como veremos en este capítulo y confirmaremos mas adelante en la tesis, esta simple cantidad da mucha información acerca del proceso de fragmentación.

### 6.1 Estado interno de los fragmentos

En esta sección estudiamos el estado interno de los fragmentos para distintos tiempos. Nos interesa conocer como varían las propiedades internas de los fragmentos con la energía total del sistema. Al estudiar cualquier cantidad interna de los fragmentos, hay que hacerlo en función de la masa. Esto se debe a que, por ejemplo, una dada energía cinética tiene significado muy distinto en un cluster de, digamos, tres partículas que en uno mucho mas grande. Cuanto mas grande es un cluster su energía de unión por partícula aumenta (al disminuir la proporción de partículas en la superficie) consecuentemente una dada energía cinética representa una excitación mayor cuanto mas chico es el cluster en consideración.

Definimos energía cinética interna media por partícula de los fragmentos de número de masa  $n$  como:

$$K_{clust}(n, t) = \frac{1}{N_n n} \sum_i \sum_{j \in i} \frac{1}{2} m (\mathbf{v}_j^{(cm)})^2 \quad (6.1)$$

donde  $N_n$  es el número total de fragmentos de masa  $n$ , en todos los eventos

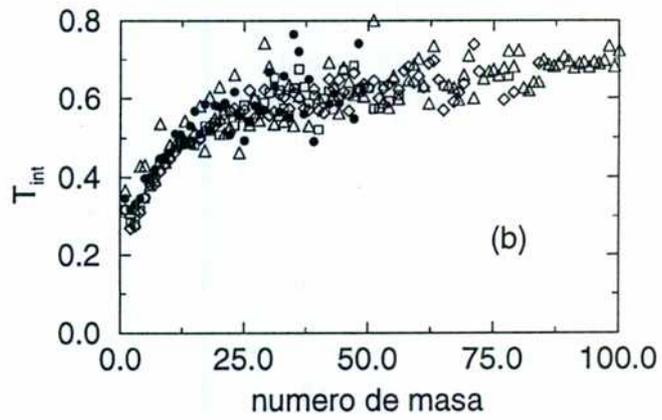
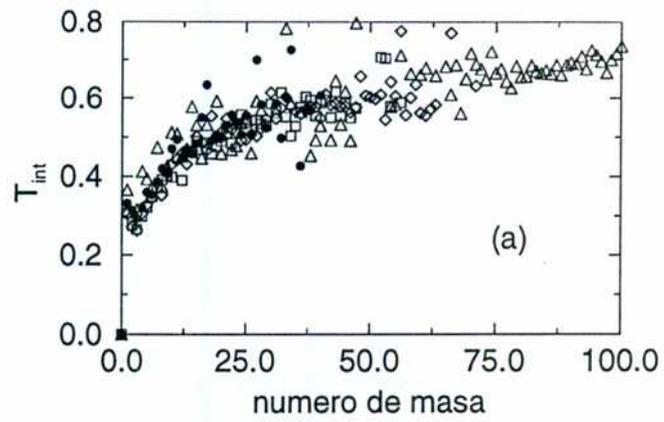
de una energía dada; la primera sumatoria corre sobre todos los fragmentos  $i$  de masa  $n$  en todos los eventos y la segunda suma recorre las partículas que forman el cluster  $i$ .  $\mathbf{v}_j^{(cm)}$  es la velocidad de la partícula  $j$  una vez restada la traslación y rotación colectiva del cluster  $j$ . El valor medio de la temperatura interna de los fragmentos en función su masa se define fácilmente [50]:

$$T_{int}(n, t) = \frac{1}{N_n} \sum_i \frac{2}{n_i} \sum_{j \in i} \frac{1}{2} m (\mathbf{v}_j^{(cm)})^2, \quad (6.2)$$

donde  $n_i$  es el número de grados de libertad, para el caso de fragmentos tridimensionales de número de masa  $n > 2$  que conservan el momento lineal y angular  $n_i = 3n - 6$ .

En la Fig. 6.1(a) mostramos la temperatura interna de los fragmentos en función de su masa para tiempos asintóticos para distintas energías. En la Fig. 6.1(b) mostramos la misma cantidad pero para tiempo de formación de fragmentos,  $\tau_{ff}(E)$ . Por supuesto para el tiempo de formación de fragmentos utilizamos los clusters obtenidos con el algoritmo ECRA; para el caso asintótico los clusters pueden tomarse como los resultantes de cualquier método, dado que para estos tiempos todos los algoritmos dan particiones muy parecidas entre sí. La figura muestra un resultado muy importante: la temperatura interna de los fragmentos asintóticos es independiente de la excitación inicial, solo depende de la masa. Es importante aclarar nuevamente que las energías mostradas en la Fig. 6.1 representan un rango muy amplio en lo que se refiere a la forma de fragmentación. De la Fig. 6.1 se puede ver que para  $E = 1.8\epsilon$  no hay fragmentos de masa mayor a 20, mientras que para  $E = -0.5\epsilon$  hay pocos fragmentos de masa intermedia, ya que proviene de un espectro de masa en forma de U, ver Fig. 4.1. Este resultado significa que un fragmento de masa, digamos, 20 tendrá, en valor medio, una dada temperatura dada sin importar si la excitación inicial es grande o pequeña, i.e. sin importar como se rompe el sistema. Este resultado, que puede resultar sorprendente, quedará claro mas adelante. De la Fig. 6.1 se desprende otro resultado importante, las temperaturas a tiempos de formación de fragmentos,  $\tau_{ff}(E)$  son muy similares a las asintóticas. Esto es, al tiempo de formación los clusters ya se han enfriado hasta un estado metaestable, de vida larga, en los que no necesitan mas relajación, excepto por evaporación.

De la misma manera que definimos temperatura interna de los fragmentos en función de su masa, también podemos estudiar la energía potencial



**Figura 6.1:** Temperatura interna de los clusters en función de su masa; para tiempos asintóticos (a) y de formación de fragmentos (b). Círculos  $E = 1.8\epsilon$ , cuadrados  $E = 0.9\epsilon$ , rombos  $E = 0.5\epsilon$  y triángulos  $E = -0.5\epsilon$ .

media definida de la siguiente manera:

$$V_{int}(n, t) = \frac{1}{N_n n} \sum_i \sum_{j < k \in i} V(r_{jk}) \quad (6.3)$$

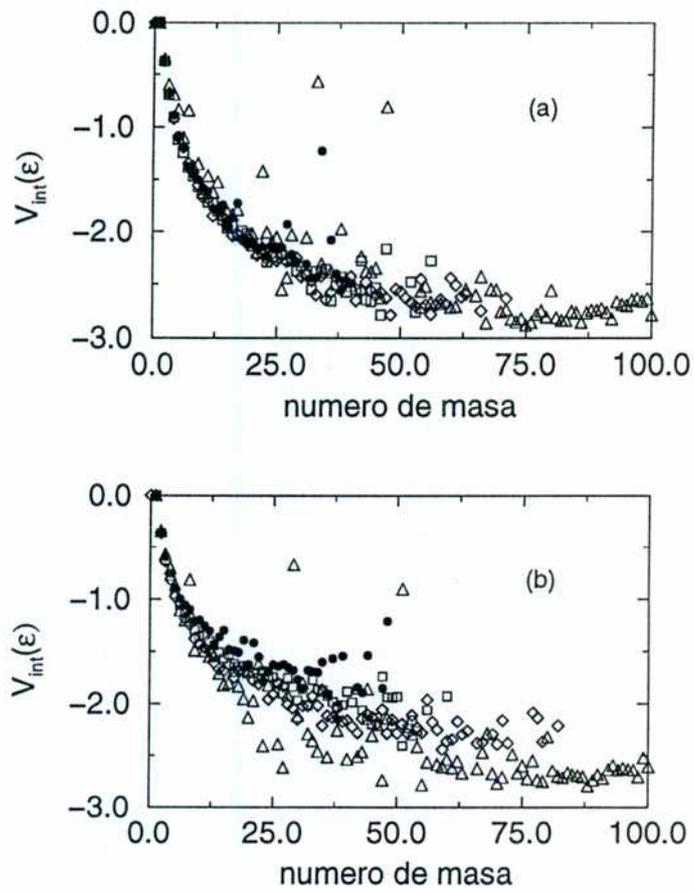
donde la primer suma recorre los clusters de masa  $n$  y la segunda recorre los pares de partículas en el cluster  $i$ ;  $V(r_{jk})$  es la energía potencial entre las partículas  $j$  y  $k$ .

En la Fig. 6.2 mostramos la energía potencial media en función de la masa para distintas energías totales, ver leyenda de figura, también para  $t = \tau_{ff}(E)$  Fig. 6.2 (a) y para tiempos asintóticos fig. 6.2 (b). De la Fig. 6.2 podemos ver que a tiempo de formación de fragmentos existe una leve dependencia de la energía potencial con la energía total del sistema, recordemos a a este tiempo los clusters todavía interactúan entre sí como lo demuestra el análisis MST, ver Fig. 5.1 y 5.2. Esta dependencia desaparece para tiempos largos: la energía potencial es independiente de la energía total del sistema. Otra factor importante de notar es que existen fragmentos que quedan muy excitados, puntos de alta energía potencial de la Fig. 6.2 (b), lo que muestra que las escalas de tiempo internas de los fragmentos son largas.

## 6.2 *Discusión*

En este capítulo mostramos un resultado muy importante: para nuestros experimentos computacionales de fragmentación el estado interno de los fragmentos asintóticos no depende de la energía total del sistema, solo de su masa. Confirmamos este comportamiento para un rango muy grande de energías. Mas aún ya a  $t = \tau_{ff}(E)$  la temperatura interna de los fragmentos ECRA es muy similar a su valor asintótico. Esto significa que, en lo que se refiere a los grados internos de libertad de los fragmentos, casi toda la relajación se produce a tiempos menores que el de formación de fragmentos. El significado de estos importantes resultados será explicado en el capítulo 8.

Hemos encontrado un comportamiento muy similar para el caso de fragmentación de gotas bidimensionales, ver [60] y el capítulo 10.



**Figura 6.2:** Energía potencial interna de los clusters en función de su masa; para tiempos asintóticos (a) y de formación de fragmentos (b). Círculos  $E = 1.8\epsilon$ , cuadrados  $E = 0.9\epsilon$ , rombos  $E = 0.5\epsilon$  y triángulos  $E = -0.5\epsilon$ .

## Capítulo 7

# Partición de la energía: temperatura local

Como se explicó anteriormente una de las características más importantes común a muchos procesos de fragmentación es la presencia de un modo colectivo de expansión. Tan importante es este modo colectivo que se han desarrollado modelos microscópicos de fragmentación donde se estudia la evolución temporal de un sistema periódico a cuyas partículas y bordes se les impone una expansión isotrópica radial [15, 61]. En el caso de interés para la presente tesis, la expansión depende de la excitación inicial y se crea mediante la dinámica propia del sistema.

En este capítulo estudiamos como la energía total del sistema se “parte” en una componente colectiva de expansión y otra relacionada con los grados internos del sistema. Como veremos éstas cantidades son de crucial importancia para entender los procesos de fragmentación.

### 7.1 Partición de la energía en modos colectivos e internos

Con el objetivo de estudiar la evolución temporal del movimiento colectivo tomamos el siguiente camino. Dado que la velocidad colectiva de expansión media es en la dirección radial (debido a la simetría del problema) y depende de la posición, dividiremos nuestro sistema en regiones esféricas, concéntricas centradas en el c.m. del sistema. La región  $i$ ésima está formada por los puntos que satisfacen:

$$\delta r (i - 1) \leq |r| < \delta r i \quad (7.1)$$

donde  $\delta r$  es el ancho de las regiones, tomamos  $\delta r = 2\sigma$ .  $r$  está medido desde el c.m. del sistema.

Definamos la velocidad radial media de la región  $i$ ésima:

$$v_{rad}^{(i)}(t) = \frac{1}{N_i(t)} \sum_{ev} \sum_{j \in i} \frac{\mathbf{v}_j(t) \cdot \mathbf{r}_j(t)}{|\mathbf{r}_j(t)|} \quad (7.2)$$

la primera sumatoria es sobre los diferentes eventos para una dada energía, la segunda sobre las partículas  $j$  que pertenecen, a tiempo  $t$ , a la región  $i$ ;  $\mathbf{v}_j$  y  $\mathbf{r}_j$  representan la velocidad y posición, medida desde el c.m. de la gota, de la partícula  $j$ .  $N_i(t)$  es el número total de partículas que pertenecen a tiempo  $t$  a la región  $i$  en todos los eventos.

La energía cinética por partícula se puede dividir en un término colectivo y uno interno:

$$K(t) = K_{coll}(t) + K_{int}(t). \quad (7.3)$$

El término  $K_{coll}(t)$  es la energía cinética contenida en el movimiento colectivo de expansión:

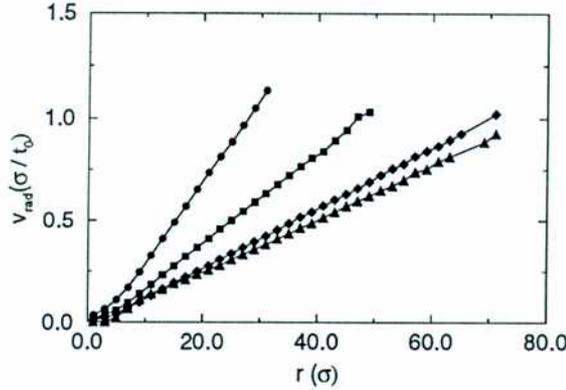
$$K_{coll}(t) = \frac{1}{n_{ev}N} \sum_{regions} N_i(t) \frac{m}{2} \left( v_{rad}^{(i)}(t) \right)^2 \quad (7.4)$$

donde  $m$  es la masa de las partículas,  $n_{ev}$  es el número de eventos para cada excitación inicial y  $N = 147$  es el número de partículas en nuestras gotas.  $K_{coll}(t)$  representa la energía cinética presente en el modo colectivo de expansión. El término  $K_{int}(t)$  está asociado con las fluctuaciones de velocidad sobre la expansión colectiva, i.e. con los grados "internos" del sistema:

$$K_{int}(t) = \frac{1}{n_{ev}N} \sum_{regions} \sum_{j \in i} \frac{1}{2} m \left( \mathbf{v}_j - \frac{v_{rad}^{(i)} \cdot \mathbf{r}_j}{|\mathbf{r}_j|} \right)^2 \quad (7.5)$$

En la Fig. 7.1 mostramos la velocidad radial en función de la distancia al centro de masa de la gota, a tiempo de formación de fragmentos,  $\tau_{ff}(E)$ , para distintas energías. De esta figura se puede ver claramente la dependencia, aproximadamente lineal, de la velocidad radial con la posición; también es claro que cuanto mayor es la energía total mayor es la velocidad radial.

Para estudiar la evolución temporal del sistema graficamos, en la Fig. 7.2 la energía cinética total, interna y colectiva así como la potencial en función del tiempo, para distintas energías totales:  $E = 1.8\epsilon$  Fig. 7.2(a),  $E = 0.9\epsilon$  Fig. 7.2(b),  $E = 0.5\epsilon$  Fig. 7.2(c) y  $E = -0.5\epsilon$  Fig. 7.2(d). Se puede ver que durante la primera etapa del proceso de fragmentación se desarrolla un



**Figura 7.1:** Perfiles de velocidad radial media a tiempo de formación de fragmentos. Los círculos denotan  $E = 1.8\epsilon$ , los cuadrados  $E = 0.9\epsilon$ , los rombos denotan  $E = 0.5\epsilon$  y los triángulos  $E = -0.5\epsilon$ .

modo colectivo de expansión y la energía cinética colectiva aumenta mientras la interna disminuye, i.e. el sistema relaja creando un modo de expansión colectivo. La energía potencial aumenta ya que el sistema al fragmentarse aumenta su superficie. La escala de tiempo para la creación del movimiento colectivo es bastante independiente de la energía total  $\tau_{col} \sim 10t_0$ .

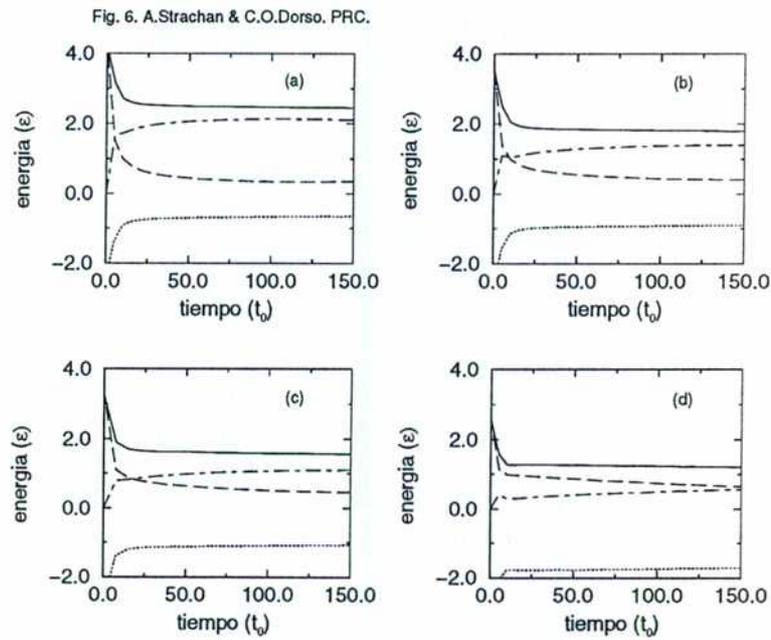
## 7.2 Temperatura local

La energía cinética interna definida en la sección anterior puede ser relacionada con una “temperatura local”, que usualmente se define como las fluctuaciones de velocidad sobre el movimiento colectivo [18]; el movimiento colectivo es, en nuestro caso, la velocidad media radial. Definamos a la temperatura local de la región  $i$ ésima:

$$T_{loc}^{(i)}(t) = \frac{1}{N_i(t)} \frac{2}{3} \sum_{j \in i} \frac{1}{2} m \left( \mathbf{v}_j - v_{rad}^{(i)} \cdot \mathbf{r}_j \right)^2, \quad (7.6)$$

donde  $\mathbf{r}_i = \mathbf{r}_i/|\mathbf{r}_i|$ .

Es importante remarcar que la temperatura local está relacionada a las fluctuaciones de velocidad sobre la expansión colectiva. La validez de nuestra definición de temperatura está basada en la conjetura que nuestro sistema está en equilibrio local; de cumplirse la conjetura, la distribución de



**Figura 7.2:** Energía cinética total (líneas llenas), colectiva (líneas rayada-punteada) e interna (líneas rayadas y energía potencial (líneas punteadas) en función del tiempo para distintas energías totales: (a)  $E = 1.8\epsilon$ , (b)  $E = 0.9\epsilon$ , (c)  $E = 0.5\epsilon$  y (d)  $E = -0.5\epsilon$ .

velocidades de las partículas que forman el sistema satisface:

$$f(\mathbf{v}; \mathbf{r}) = \rho(\mathbf{r}) \left( \frac{m\beta(\mathbf{r})}{2\pi} \right)^{3/2} e^{\beta(\mathbf{r}) \frac{m}{2} (\mathbf{v} - \mathbf{v}_{rad}(\mathbf{r}))^2} \quad (7.7)$$

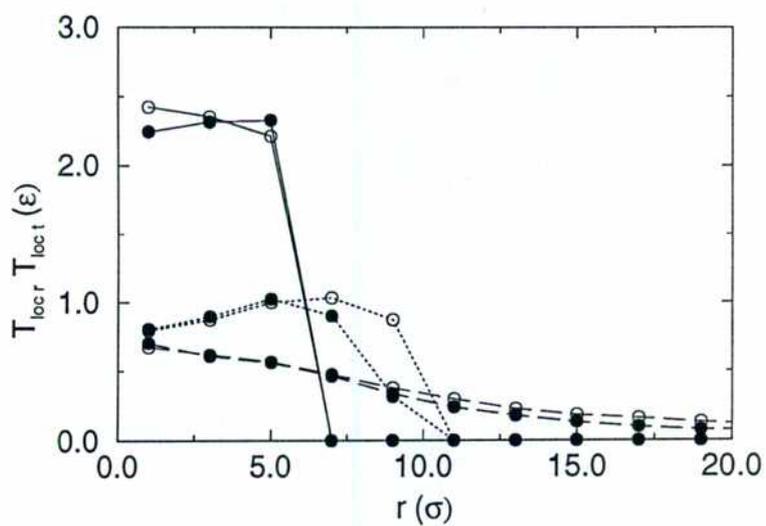
donde  $\rho(\mathbf{r})$  y  $\beta(\mathbf{r})$  son la densidad local y la inversa de la temperatura local respectivamente;  $\mathbf{v}_{rad}(\mathbf{r})$  es la velocidad colectiva que en nuestro caso es en la dirección radial.

Antes de analizar los resultados de temperatura local verificaremos su validez. A tal fin estudiamos las fluctuaciones de velocidad en la dirección radial y transversal, es claro que si la conjetura de equilibrio local se satisface las fluctuaciones en ambas direcciones darán temperaturas similares. A tal fin definimos temperatura local radial y temperatura local transversal:

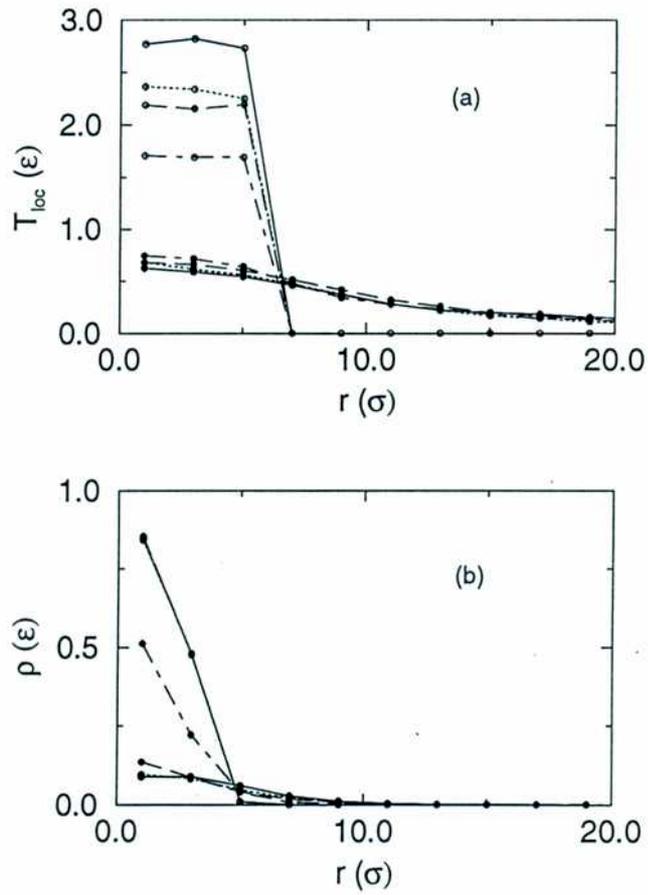
$$T_{loc\ r}^{(i)}(t) = \frac{1}{N_i(t)} 2 \sum_{j \in i} \frac{1}{2} m \left[ (\mathbf{v}_j - v_{rad}^{(i)} \cdot \mathbf{r}_j) \cdot \mathbf{r}_j \right]^2, \quad (7.8)$$

$$T_{loc\ t}^{(i)}(t) = \frac{1}{N_i(t)} \sum_{j \in i} \frac{1}{2} m \left[ (\mathbf{v}_j - v_{rad}^{(i)} \cdot \mathbf{r}_j) \cdot \left( 1 - \mathbf{r}_j \frac{\mathbf{r}_j}{|\mathbf{r}_j|} \right) \right]^2 \quad (7.9)$$

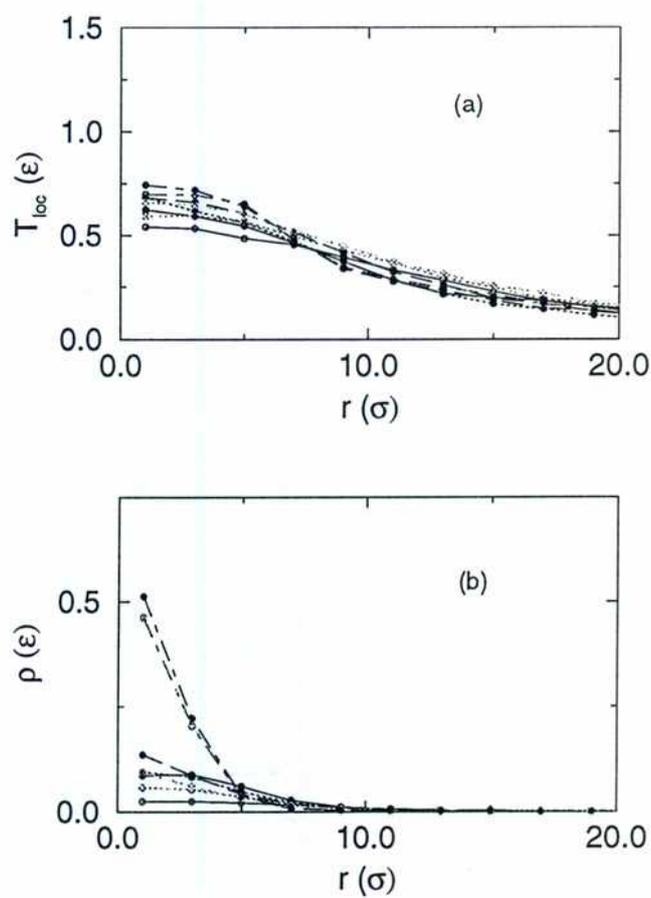
En la Fig. 7.3 mostramos  $T_{loc\ r}$  (círculos llenos), y  $T_{loc\ t}$  (círculos vacíos), para distintos tiempos: tiempo inicial (líneas llenas), tiempo  $t = 5t_0$  (líneas de puntos) y tiempo de formación de fragmentos  $t = \tau_{ff}(E)$  (líneas a rayas). Los resultados mostrados en la figura corresponden a  $E = 0.9\epsilon$ ; el comportamiento para otras energías es similar. De la Fig. 7.3 podemos ver que a  $t = 0$  las dos temperaturas, tanto la asociada a fluctuaciones radiales como la asociada a las transversales, son muy similares. Este resultado es mas o menos obvio ya que a  $t = 0$  el sistema no empezó su expansión por lo que las velocidades son las del sistema periódico en equilibrio de donde cortamos la gota. A  $t = 10t_0$  las dos temperaturas muestran algunas diferencias, a este tiempo, muy corto, el movimiento colectivo se está desarrollando y el sistema no es isótropo. Para tiempos del orden de  $t = \tau_{ff}$  las dos temperaturas son muy similares nuevamente, denotando que las fluctuaciones de velocidad sobre el movimiento colectivo son isótropas. Esto es una clara evidencia de que los grados de libertad radiales y transversales se "ven" e intercambian energía de modo de cumplir el principio de equipartición. Si bien estos resultados no aseguran que el sistema esté en equilibrio local, muestran que la definición de temperatura local es apropiada y tiene un claro significado físico.



**Figura 7.3:** Perfiles de temperatura local radial (círculos llenos) y transversal (círculos vacíos) a tiempo inicial  $t = 0t_0$  (líneas llenas), a  $t = 5t_0$  (líneas punteadas) y a tiempos  $t = \tau_{ff}$  (líneas rayadas). Para  $E = 0.9\epsilon$ .



**Figura 7.4:** Perfiles de temperatura local a tiempo inicial  $t = 0t_0$  (símbolos vacíos) y de formación de fragmentos (símbolos llenos). Las líneas llenas denotan  $E = 1.8\epsilon$ , las de puntos  $E = 0.9\epsilon$ , las de rayas  $E = 0.5\epsilon$  y las de rayas y puntos denotan  $E = -0.5\epsilon$ .



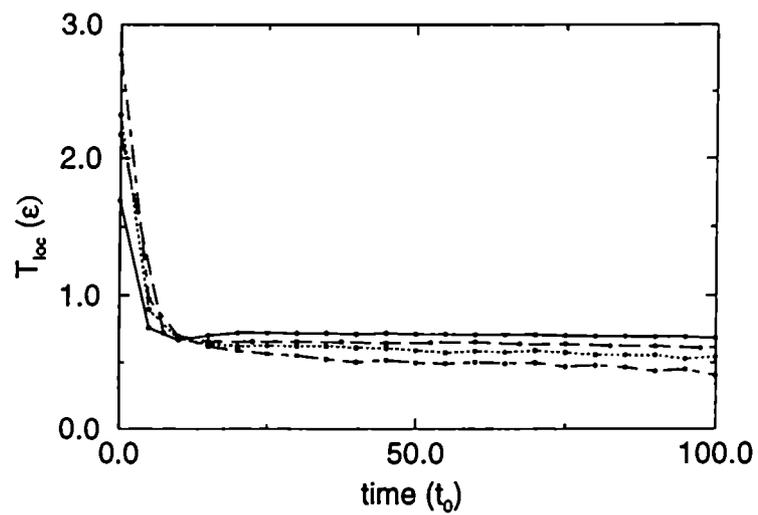
**Figura 7.5:** Perfiles de temperatura local a tiempo de formación de fragmentos (símbolos llenos) y asintóticos (símbolos vacíos). Las líneas llenas denotan  $E = 1.8\epsilon$ , las de puntos  $E = 0.9\epsilon$ , las de rayas  $E = 0.5\epsilon$  y las de rayas y puntos denotan  $E = -0.5\epsilon$ .

Pasemos ahora a analizar la temperatura local para nuestras explosiones. En la Fig. 7.4(a) mostramos los perfiles de temperatura local para distintas energías a tiempo inicial y de formación de fragmentos. Las líneas llenas denotan  $E = 1.8\epsilon$ , las de puntos  $E = 0.9\epsilon$ , las de rayas  $E = 0.5\epsilon$  y las de rayas y puntos denotan  $E = -0.5\epsilon$ . En la Fig. 7.4 (b) mostramos los perfiles de densidad para las mismas energías y tiempos que en la Fig. 7.4 (a). Nuevamente las energías mostradas en la figura representan un amplio rango, que va desde espectros en forma de U, hasta fragmentación con partículas no mayores a  $\sim 25$ . La Fig. 7.4 (a) contiene un resultado muy importante: si bien los perfiles iniciales dependen marcadamente de la energía total del sistema, representando las diferentes excitaciones iniciales, los perfiles de temperatura local a  $\tau_{ff}$  son muy similares entre sí. Esto es, independientemente de la excitación inicial los sistemas se fragmentan a la misma temperatura. Mas aun, los perfiles de temperatura varían muy poco para tiempos mayores a  $\tau_{ff}$ , como se puede ver en la Fig. 7.5 (a) donde mostramos los perfiles a  $\tau_{ff}$  y a tiempos asintóticos. En la Fig. 7.5 (b) mostramos los perfiles de densidad correspondientes. De los perfiles de densidad se puede ver que para  $E = -0.5\epsilon$  gran parte de la masa del sistema queda unida, lo que se refleja en una alta densidad de la región central tanto para tiempo de formación como asintótico. Por otro lado para las energías mayores se puede ver que la densidad de las regiones centrales al momento de formación de fragmentos es aproximadamente 1/10 de la inicial. Por otro lado es importante notar que la temperatura local es bastante constante para las regiones centrales del sistema, para distancias desde el c.m menores a  $\sim 6\sigma$ . Para distancias mayores la temperatura local disminuye, lo que coincide con una importante disminución de la densidad local.

Nuestra definición de temperatura local tiene sentido solo para tiempos cortos, mientras gran parte de la masa del sistema interactúa entre sí. Esta condición se cumple a tiempo de formación de fragmentos como se desprende de la Fig. 5.2 donde se muestra la masa del mayor fragmento en función del tiempo. Para tiempos largos donde el sistema está formado por fragmentos muy separados entre sí y en equilibrio interno la temperatura local simplemente refleja la temperatura interna de los fragmentos.

El hecho que la variación de la temperatura local con la posición es muy pequeña para las regiones internas y que las fluctuaciones de velocidad son isótropas, Fig. 7.3, demuestran que el sistema en expansión alcanza cierto grado de equilibrio local.

Para estudiar la forma en que el sistema se desexcita, a medida que se genera el flujo radial, analizamos la evolución temporal de la temperatura local. En la Fig. 7.6 mostramos la evolución temporal de la temperatura



**Figura 7.6:** Temperatura local promedio de las tres regiones más centrales en función del tiempo. La línea rayada-punteada denota  $E = 1.8\epsilon$ , la línea punteada  $E = 0.9\epsilon$ , la línea rayada  $E = 0.5\epsilon$  y la línea llena denota  $E = -0.5\epsilon$ .

local promedio de las tres coronas centrales, que representan aproximadamente el volumen de la gota inicial, para cuatro energías diferentes. Se puede ver que durante la primera etapa del proceso de fragmentación parte de la energía térmica se convierte a energía colectiva y consecuentemente el sistema se enfría. Este proceso continua hasta que la temperatura alcanza un valor dado; este valor de temperatura es bastante independiente de la energía total aunque se puede ver que disminuye lentamente a medida que la energía total aumenta.

Ahora tenemos los elementos necesarios para estudiar la manera en que la energía total del sistema se divide en cantidades asociadas con distintos grados de libertad en función de la energía total; esta es sin dudas una información sumamente importante para entender los procesos de fragmentación. En la Fig. 7.7(a) mostramos la energía cinética total, colectiva e interna, la temperatura local de las tres coronas centrales del sistema y la energía potencial en función de la energía total para tiempos asintóticos. Probablemente mas importante que los valores asintóticos son los correspondientes a  $t = \tau_{ff}$ , Fig. 7.7(b).

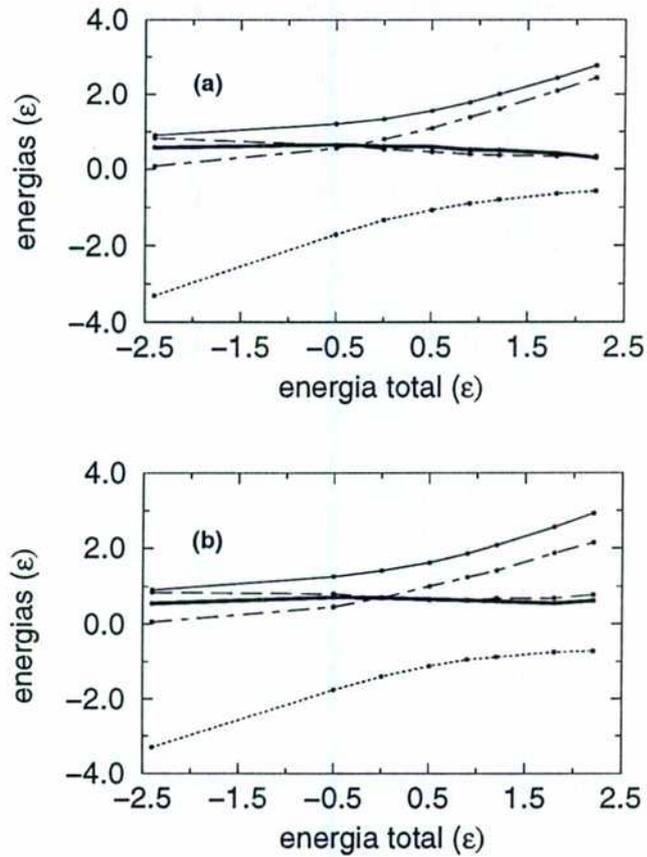
En la Fig. 7.7 se ve como la energía contenida en el movimiento colectivo crece desde cero a bajas energías donde el proceso es del tipo de evaporación hasta ser una parte muy importante de la energía total del sistema. Esto confirma el hecho que estudiamos un amplio rango de excitaciones. Por otro lado es claro que la temperatura local es bastante constante para las energías totales mostradas, en contraste con las otras magnitudes que varían notablemente.

### 7.3 Temperatura local de clusters

Como se dijo anteriormente estudiaremos otra definición de temperatura, temperatura local de clusters  $T_{loc\ cl}^{(i)}$ , asociada a las fluctuaciones de velocidad de los c.m. de los clusters sobre la velocidad radial colectiva. Si a tiempo de formación de fragmentos se cumpliera la conjetura de equilibrio local esta nueva temperatura tendría que dar resultados similares a la temperatura local, definida en la sección anterior. Definimos a la temperatura local de clusters de la región  $i$ ésima como:

$$T_{loc\ cl}^{(i)}(t) = \frac{2}{3N_i(t)} \sum_{j \in i} \frac{1}{2} m \left( \mathbf{V}_{cm}^{(j)} - \frac{v_{rad}^{(i)} \cdot \mathbf{R}_{c.m.}^{(j)}}{|\mathbf{R}_{c.m.}^{(j)}|} \right)^2, \quad (7.10)$$

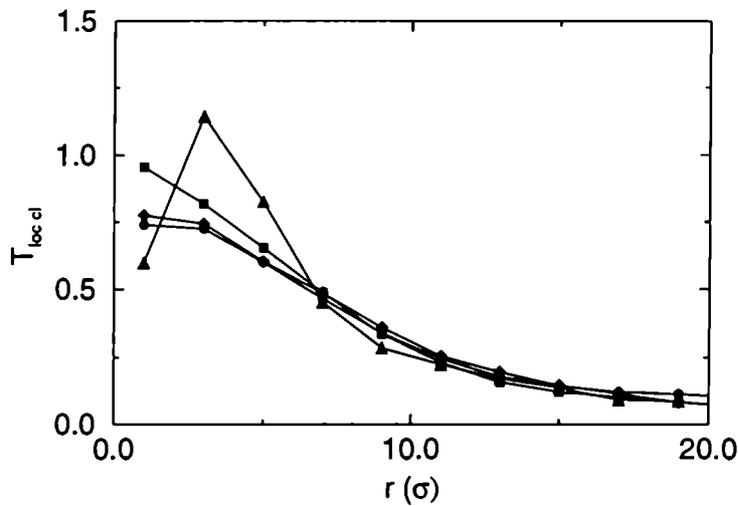
donde la sumatoria corre sobre los clusters de todos los eventos para una dada energía cuya posición de centro de masa pertenece a la región  $i$ ésima a



**Figura 7.7:** Partición de la energía. Energía cinética total (líneas llenas), colectiva (líneas rayada-punteada) e interna (líneas rayadas y energía potencial (líneas punteadas) y temperatura local promedio de las tres regiones centrales (línea llena gruesa) en función de la energía total del sistema. (a) A tiempos asintóticos y (b) de formación de fragmentos.

tiempo  $t$ ;  $\mathbf{V}_{cm}^{(j)}$  denota la velocidad de c.m. del cluster  $j$  y  $\mathbf{R}_{cm}^{(j)}$  es la posición de c.m. del fragmento.

Usaremos el nombre “temperatura local” para referir a la asociada a las fluctuaciones de velocidad de las partículas y “temperatura local de clusters” para la definida en la ec. 7.10.



**Figura 7.8:** Perfiles de temperatura local de clusters. Temperatura local de clusters en función de la distancia al c.m. del sistema. Los círculos llenos denotas  $E = 1.8\epsilon$ , los cuadrados  $E = 0.9\epsilon$ , los rombos  $E = 0.5\epsilon$  y los triángulos  $E = -0.5\epsilon$ .

En la Fig. 7.8 mostramos los perfiles de temperatura local de clusters a  $t = \tau_{ff}$  para distintas energías, al tiempo de formación de fragmentos, ver nota de figura. Se puede ver que los perfiles son similares a los de temperatura local. Dado que el número de clusters es mucho menor que el de partículas, los valores mostrados en la Fig. 7.8 muestran grandes fluctuaciones. Esta definición de temperatura es muy importante ya que, al contrario que la temperatura local, es accesible experimentalmente si se puede calcular correctamente el flujo colectivo. Es importante mencionar en este punto, que esta última temperatura, que podríamos haber llamado “temperatura del gas de fragmentos” no presenta nada que indique la presencia de la “rama gaseosa” de la curva calórica, contrariamente con el resultado de J. P. Bondorf y colaboradores [62] en experimentos computacionales de

dinámica molecular. En este último trabajo el movimiento colectivo no es tenido en cuenta en forma correcta.

## 7.4 Discusión

En este capítulo hemos estudiado la evolución temporal de distintos grados de libertad, tanto internos como colectivos. Hemos visto que durante la primera etapa del proceso, parte de la energía térmica, i.e. interna, se transforma en movimiento colectivo. Mostramos que gran parte de este movimiento colectivo se desarrolla en un tiempo característico  $\tau_{col} \sim 10t_0$  muy pequeño e independiente de la energía total del sistema. Esta primera etapa es fuertemente colisional como lo denota la alta energía cinética interna y la temperatura local.

Este proceso de relajación continúa hasta que la temperatura local de las regiones centrales alcanzan un valor, bastante independiente de la energía total del sistema, entre  $0.6\epsilon$  y  $0.7\epsilon$ . Es importante notar que este valor es muy similar a la temperatura interna de los fragmentos de masa no muy pequeña, Fig. 6.1.

Por otro lado estudiamos los perfiles de la temperatura local de fragmentos, definida como la fluctuación de velocidad de los c.m. de los fragmentos sobre la expansión colectiva. Los resultados obtenidos con esta definición de temperatura son similares a los perfiles de temperatura local. Esto indica claramente que los diferentes grados de libertad del sistema están termalizados.

Ahora falta entender el significado de esta temperatura  $T \sim 0.65$ , porque, independientemente de la energía total del sistema, el sistema se fragmenta a esa temperatura y sus fragmentos constituyentes tienen la misma temperatura, también independientemente de la energía inicial. Dedicamos el siguiente capítulo a contestar estas preguntas.

## Capítulo 8

# Curva calórica extendida

Como vimos en los capítulos iniciales, la curva calórica, i.e. temperatura vs. energía, es muy utilizada para estudiar transiciones de fases de primer orden. Éstas aparecen en sistemas macroscópicos como regiones de temperatura constante; por ejemplo en la transición líquido-gas un incremento de la energía del sistema, a presión constante, resulta en evaporación de líquido pero no en un incremento de temperatura. Como fue explicado en el capítulo 2 en sistemas finitos, debido a la ausencia de coexistencia espacial, la curva calórica microcanónica presenta un “loop” en la región de la transición [6]. En el presente capítulo estudiaremos la curva calórica de gotas de LJ en un amplio rango de energías, que comprende los ya ampliamente estudiados estados cuasi-sólido y cuasi-líquido y su transición de fase asociada, y los procesos de no-equilibrio de evaporación y multifragmentación. Mostraremos que el concepto de curva calórica, utilizado usualmente para estudiar las fases cuasi-sólida y cuasi-líquida, puede ser extendido para abarcar los procesos de evaporación y, mas aun, multifragmentación.

Recordemos que las gotas pequeñas aisladas se pueden clasificar en dos grandes grupos de acuerdo con su energía total. En el régimen de bajas energías los sistemas son auto-confinados, ejemplos de este comportamiento son gotas cuasi-sólidas o cuasi-líquidas. Por otro lado, para el régimen de altas energías los sistemas son inestables y sobrellevan procesos de fragmentación o fuerte evaporación, en este caso los sistemas, obviamente, no son auto-confinados. Es importante notar que para las energías correspondientes al primer grupo existe una correspondencia entre los estados del sistema finito aislado y los estados de un sistema termodinámico infinito. Pero para las energías de la segunda clase la correspondencia desaparece: la fragmentación es un proceso de los sistemas finitos, un sistema infinito no

puede sobrellevar fragmentación; a su vez no existe tal cosa como una gota gaseosa aislada. El comportamiento de los sistemas finitos aislados a altas energías, como veremos en detalle en este capítulo, difiere cualitativamente de el de los sistemas termodinámicos, contrariamente con lo que ocurre a bajas energías.

En la sección 8.1 describiremos nuestros experimentos computacionales para estudiar gotas de LJ en el régimen de bajas energías y mostraremos la curva calórica obtenida, donde se observa las fases cuasi-sólida y cuasi-líquida y el comienzo de procesos de evaporación. Luego explicaremos la manera de extender la curva calórica de forma de abarcar el proceso de fragmentación e interpretaremos esta generalización.

## 8.1 Gotas auto-confinadas: estados cuasi-sólido y cuasi-líquido

Decidimos estudiar gotas de  $N = 147$  partículas a bajas energías y en particular su curva calórica ya que, como veremos en la próxima sección, será importante para entender los procesos de fragmentación.

Hicimos experimentos computacionales de dinámica molecular a fin de estudiar el comportamiento de gotas auto-confinadas. Las configuraciones iniciales para la dinámica molecular se obtuvieron de la siguiente manera. Termalizamos un sistema periódico con  $N = 512$  partículas a una densidad  $\rho = 1.09$ , muy cercana a la del estado fundamental y a una temperatura muy cercana de cero. Una vez termalizado cortamos una gota de  $N = 147$  partículas, luego reasignamos todas las velocidades a cero y termalizamos la gota mediante una evolución de dinámica molecular de tiempo no menor a  $t = 1000t_0$ . Luego simplemente reescalamos las velocidades de la gota de muy baja energía para obtener la energía deseada. De esta manera estudiamos el rango de energías entre  $\sim -5.4\epsilon$  y  $-2\epsilon$ . Para las energías mas grandes el sistema en su evolución puede evaporar algunas partículas; este no es un problema serio para el cálculo de la curva calórica ya que la temperatura de una gota no varía apreciablemente si algunas partículas son evaporadas.

Para gotas auto-confinadas en equilibrio es sencillo definimos la temperatura de la manera usual utilizada en física computacional:

$$T = \left\langle \frac{2}{3N(t) - 6} \sum_{i=1}^{N(t)} \frac{1}{2} m v_i^2(t) \right\rangle_t \quad (8.1)$$

donde  $v_i^2(t)$  es la velocidad de la partícula  $i$  medida una vez que el momento lineal y angular son restados y  $\langle \rangle_t$  significa promedio temporal.  $N(t)$  es el número de partículas que a tiempo  $t$  no han evaporado. Para cada energía evolucionamos el sistema, mediante la técnica de MD, por un tiempo de  $150t_0$ . Para calcular promedios temporales, como el que aparece en la definición de la temperatura, descartamos las configuraciones pertenecientes a tiempos  $t < 100t_0$ , ya que durante la primer parte de la evolución el sistema se termaliza. En este tipo de simulaciones se sabe que el sistema está termalizado cuando la energía cinética y potencial dejan de variar y fluctúan en torno a un valor fijo. Nótese que los tiempos de los experimentos en el régimen de bajas energías, son similares a los tiempos característicos del proceso de fragmentación.

Otra cantidad muy utilizada para el estudio de transiciones sólido-líquido es el coeficiente de Lindemann que mide las fluctuaciones de la distancia de entre pares de partículas, y está definido mediante la siguiente ecuación:

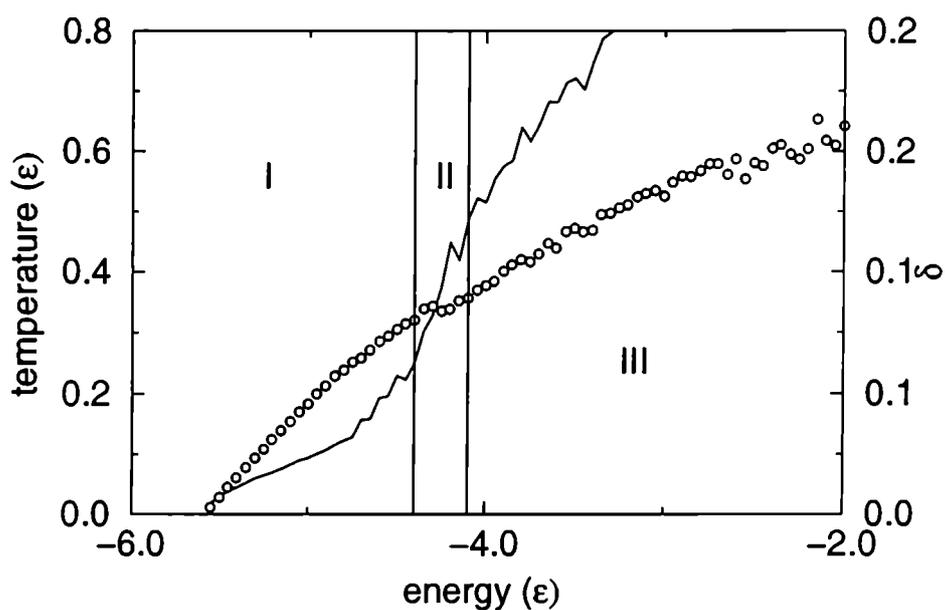
$$\delta = \frac{2}{N(N-1)} \sum_{i < j} \frac{(\langle r_{ij}^2(t) \rangle - \langle r_{ij}(t) \rangle^2)^{1/2}}{\langle r_{ij}(t) \rangle} \quad (8.2)$$

donde  $r_{ij}(t)$  es la distancia entre las partículas  $i$  y  $j$ . El coeficiente de Lindemann es pequeño cuando el sistema se encuentra en su fase sólido, y aumenta abruptamente cuando el sistema se hace líquido. Es habitual considerar que el sistema cambia de fase cuando  $\delta$  aumenta mas allá de 0.1.

En la Fig. 8.1 mostramos la curva calórica y el coeficiente de Lindemann de nuestra gota de  $N = 147$  partículas. La temperatura mostrada en la Fig. 8.1 es calculada mediante la ecuación 8.1, de manera similar la energía se calcula como el promedio temporal de la energía total de la gota, descartando las partículas evaporadas.

Podemos ver que para energías bajas, región I, la temperatura crece monotonamente con la energía, en esta región la gota está en su estado cuasi-sólido. En la región II la temperatura presenta un loop, esto denota la transición cuasi-sólido a cuasi-líquido. Para energías mayores, región III, la temperatura crece monotonamente nuevamente, en este caso la gota está en su estado cuasi-líquido. Es muy importante notar que la transición de fase se ve claramente aunque el sistema está formado por solo 147 partículas. Esta transición de fase aparece en sistemas formados por solo unas decenas de partículas [6, 63].

En la Fig. 8.1 se ve que el loop en la temperatura coincide con la región en la que el coeficiente de Lindemann crece rápidamente y cruza el valor 0.1. Este comportamiento denota claramente la transición de fase del estado



**Figura 8.1:** Curva calórica (círculos) y coeficiente de Lindemann (línea llena), cuya escala se muestra en el eje  $y$  derecho, para gotas de  $N = 147$  partículas en el régimen de bajas energías. Se puede ver la fase cuasi-sólida la cuasi-líquida y la transición de fase asociada.

cuasi-sólido donde las partículas vibran en torno a posiciones fijas al estado cuasi-líquido, con partículas con mucha mas movilidad.

Consideremos una gota líquida aislada a la que le vamos incrementando lentamente la energía. A medida que la energía aumenta la temperatura también lo hace. Sin embargo es claro que la gota no puede ser calentada indefinidamente, llegaremos a una temperatura para la cual aumentar la energía del sistema no redundará en un incremento de temperatura sino en evaporación, nótese que en la parte de alta energía de la región III Fig. 8.1 la pendiente de la temperatura disminuye notablemente. Llamaremos a esta máxima temperatura que una gota líquida puede sustentar temperatura límite. Es curioso que en la mayoría de los estudios sobre la transición cuasi-sólido cuasi-líquido, se ha evitado considerar la evaporación [6, 7, 8].

Es importante aclarar que las gotas líquidas aisladas son sistemas metaestables, ya que si la energía total alcanza para evaporar una partícula, esto ocurrirá tarde o temprano. Supongamos que tenemos una gota aislada de  $N$  partículas con energía  $E(N)$ ; si se cumple:

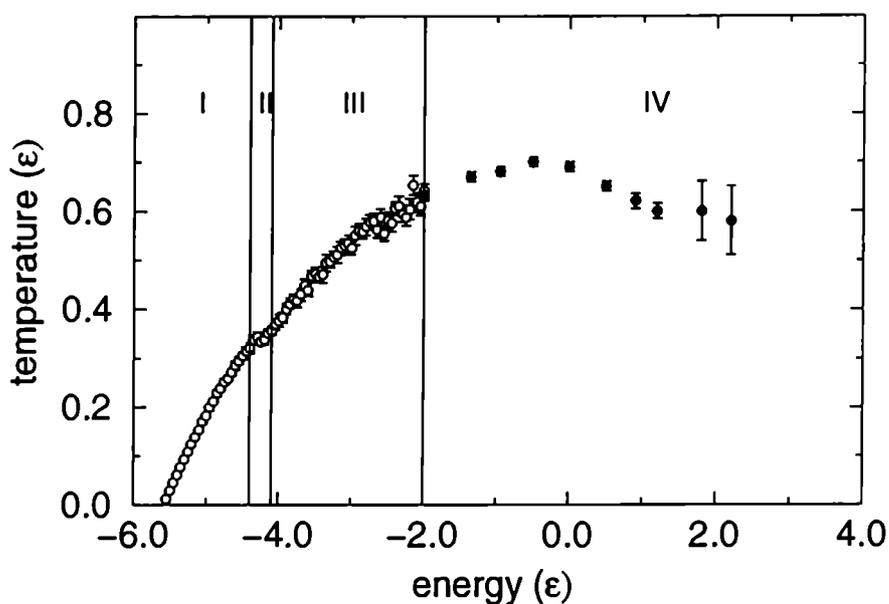
$$E(N) > E_{ef}(N - 1) \quad (8.3)$$

donde  $E_{ef}(N-1)$  es la energía del estado fundamental de un sistema con  $N-1$  partículas, el sistema evaporará una partícula. Este fenómeno continuará hasta que no se cumpla la condición anterior. Sin embargo estos estados metaestables pueden tener vidas medias lo suficientemente largas como para ser medidos en simulaciones y en experimentos. Por esta razón es muy difícil calcular la temperatura límite de gotas, en nuestro caso solo podemos decir que es cercana a  $0.65\epsilon$ .

## 8.2 La curva calórica extendida

En la sección anterior mostramos la curva calórica para nuestra gota de  $N = 147$  partículas de LJ en el rango de energía  $E \sim -5.5\epsilon$  a  $E \sim -2\epsilon$ . Para energías mas grandes entramos en el régimen de altas energías, i.e. fuerte evaporación y fragmentación. En este caso tenemos que redefinir el concepto de curva calórica. En el régimen de bajas energías las gotas están en equilibrio (estable o metaestable) y en un estado estacionario. En el caso de fragmentación la dependencia temporal de los observables físicos es notable. De todas formas como vimos en capítulos anteriores, la temperatura local y la interna de los fragmentos varían fuertemente hasta el tiempo de formación de fragmentos  $t = \tau_{ff}$  y luego se mantienen mas o menos constante. Como

dijimos anteriormente la relajación del sistema se produce en la primera etapa del proceso.



**Figura 8.2:** Curva calórica extendida. Región I cuasi-sólido, Región II transición cuasi-sólido a cuasi-líquido, Región III cuasi-líquido, región IV fragmentación

De esta manera podemos extender la curva calórica si para altas energías la definimos como la temperatura al tiempo de formación de fragmentos en función de la energía total. En la Fig. 8.2 mostramos la curva calórica extendida para gotas de LJ de  $N = 147$  partículas. Las regiones I, II y III representan el régimen de bajas energías explicado anteriormente, la región IV denota el proceso de fragmentación. En la región IV graficamos la temperatura local promedio de las 3 regiones mas interiores, también promediadas en el tiempo en un intervalo de  $t = 20t_0$  centrado en  $\tau_{ff}(E)$  ver Fig. 7.6. Es importante aclarar que a tiempo de formación de fragmentos aproximadamente el 50% de la masa total del sistema se encuentra en las tres regiones centrales.

Como dijimos la curva calórica en la región de fragmentación represen-

ta la temperatura local de la zona central del sistema al tiempo en que los fragmentos se forman. De todas formas, como vimos en los capítulos 6 y 7 la temperatura, ya sea local o interna de los fragmentos, se mantiene aproximadamente constante para tiempos mayores que  $\tau_{ff}$ . Recalquemos nuevamente que las energías mostradas en el gráfico representan un muy amplio rango de comportamientos: para  $E = -2\epsilon$  el sistema solo evapora unas cuantas partículas mientras que para  $E = 2.2\epsilon$  el sistema se rompe en muchos fragmentos ninguno con mas de 20 partículas. Los errores mostrados en la Fig. 8.2 están relacionados a las fluctuaciones temporales de la temperatura.

Pasemos a analizar el significado de la curva calórica en la región de altas energías. Podemos ver que el proceso de fragmentación aparece como una región de temperatura mas o menos constante con una disminución lenta para altas energías. El estado inicial de las gotas que fragmentan es construido artificialmente a una temperatura mayor que la límite, definida en la sección anterior, que en nuestro caso es  $\sim 0.65$ . Las gotas, en su evolución, se expanden y enfrían, i.e. parte de la energía térmica inicial se convierte en energía colectiva. Este proceso de creación de movimiento colectivo y enfriamiento continua hasta que la temperatura local del sistema alcanza la temperatura límite. Dado que ésta representa la máxima temperatura que una gota líquida puede sostener, cuando la temperatura local alcanza  $T_{lim}$  el sistema no necesita mas relajación, y continua su expansión a una velocidad constante y su temperatura también se mantiene aproximadamente constante. Esto explica porqué el proceso de fragmentación aparece como una región de temperatura aproximadamente constante. La lenta disminución de la temperatura con la energía también puede ser explicado con nuestro modelo de fragmentación; a medida que la energía aumenta el sistema se rompe en fragmentos mas pequeños y por lo tanto su temperatura límite disminuye.

### 8.3 *Discusión*

En este capítulo mostramos como se puede extender la curva calórica para abarcar régimen de altas energías de fragmentación. La curva calórica describe el comportamiento térmico del sistema, para el caso de fragmentación representa la temperatura del sistema al momento de formación de fragmentos. El proceso de fragmentación aparece como una región de temperatura mas o menos constante. Esto es, independientemente de la energía total del sistema la temperatura local al momento de formación de fragmentos será

$\sim 0.65\epsilon$ .

Este hecho, que puede resultar sorprendente, se puede entender de la siguiente manera. En la primer etapa del proceso, el sistema, caliente y comprimido, se expande y se enfría. Este proceso continúa hasta que sistema alcanza la temperatura límite, que es independiente de la condición inicial, y a partir de ese momento el sistema no necesita mas relajación. Por lo que la temperatura, tanto local como interna de los fragmentos, permanece prácticamente constante para tiempos  $t > \tau_{ff}$ .

Como dijimos en los capítulos introductorios, para entender los mecanismos que llevan a la fragmentación es necesario poder caracterizar el estado del sistema en el tiempo de formación de fragmentos. Los resultados presentados en esta sección representan un gran paso en esta dirección. Podemos conocer de antemano las fluctuaciones de velocidad de la partículas del sistema sobre la expansión colectiva. La velocidad media de expansión depende de la energía total del sistema, pero las fluctuaciones de velocidad sobre ella son prácticamente independientes de la energía total del sistema y resultan de una temperatura igual a la temperatura límite del sistema.

En los capítulos anteriores hemos estudiado tres diferentes maneras de definir temperatura, asociadas a distintos grados de libertad. La temperatura interna de los clusters está asociada a como se mueven las partículas dentro de los fragmentos y la temperatura local de fragmentos esta asociada al movimiento de los c.m. de los clusters. Comparando las Fig. 6.1, 7.4 y 7.8, se puede ver claramente que las tres temperaturas dan resultados muy similares, i.e para tiempos del orden de  $\tau_{ff}$  la temperatura local la temperatura local de fragmentos y la interna de los clusters de masa no muy pequeña son muy similares. Esto quiere decir que los distintos grados de libertad se "ven" entre sí, e intercambian energía. Este hecho reafirma fuertemente nuestra hipótesis de equilibrio local. Si bien en la curva calórica extendida se muestran los resultados de temperatura local, también podríamos haber elegido, por ejemplo, la temperatura de los fragmentos mas grandes.

Es muy importante notar que ninguna de las temperaturas estudiadas en nuestro sistema clásico muestran indicio alguno del comportamiento tipo fase gaseosa, encontrado en el caso nuclear [44, 1] para altas energías. Dentro de nuestra descripción de fragmentación no debe esperarse este tipo de comportamiento, i.e. el incremento de temperatura para altas energías, ya que asociamos la temperatura del sistema a la límite de sus clusters. El sistema no puede tener mas temperatura que sus fragmentos, todo el resto de energía esta en el movimiento colectivo y no debe asociarse a temperatura [58].

## Capítulo 9

# Señales de criticalidad en fragmentación

Como ya explicamos en los capítulos introductorios muchos sistemas que difieren enormemente en tamaño, potencial de interacción, etc. presentan, para una dada excitación, espectros de masa tipo ley de potencia al fragmentarse. Este tipo de comportamiento ha sido encontrado en fragmentación nuclear, explosiones de bombas químicas y nucleares [26] y en colisiones de rocas [28]. La distribución de asteroides en nuestro sistema planetario también presenta comportamiento tipo ley de potencia [28]. Dada la relación de espectros de masa tipo ley de potencia con transiciones de fases de 2<sup>do</sup> orden, estos resultados han despertado un gran interés en la posible caracterización de los procesos de fragmentación como un fenómeno crítico.

En nuestras simulaciones también encontramos espectros de masa similar a una ley de potencia para  $E = 0.5\epsilon$ , ver Fig. 4.1. De todas formas, la aparición de un espectro de masa tipo ley de potencia no es suficiente para caracterizar al proceso físico que lleva a él como una transición de fase de segundo orden [64]. Es necesario estudiar otras señales, que corroboren el fenómeno crítico.

El máximo exponente de Lyapunov (MEL) ha sido propuesto como señal de criticalidad por A. Bonasera y colaboradores [65] y también se ha utilizado para caracterizar la transición de fase cuasi-sólido a cuasi-líquido en clusters [66, 67, 63]. La transición cuasi-sólido cuasi-líquido aparece como un cambio de pendiente del MEL en función de la energía [67, 63]. Por otro lado, para el caso de fragmentación se encontró un máximo en el MEL para la energía que produce un espectro de masa tipo ley de potencia [65].

Para investigar señales que indiquen la posibilidad de un fenómeno crítico

en nuestros experimentos computacionales y/o que nos permitan un entendimiento mas profundo del proceso de fragmentación estudiamos el máximo exponente de Lyapunov local en el tiempo para un amplio rango de energías que comprende tanto el régimen de baja como de alta energías. Por otro lado en la sección 9.2 presentamos otros observables que también indican la posibilidad de una transición de fase de 2<sup>do</sup> orden.

## 9.1 Exponentes de Lyapunov locales en el tiempo

La evolución dinámica de nuestro sistema viene dada por el movimiento de un punto  $\mathbf{x}(t)$  en el espacio de fases, de  $6N$  dimensiones. Consideremos una hiper-esfera  $6N$  dimensional de radio infinitesimal, centrada en estado inicial del sistema  $\mathbf{x}(0)$ . Si evolucionamos el sistema por un período de tiempo pequeño la esfera se deformará en un elipsoide. Si bien, debido al teorema de Liouville, el volumen del hiper-elipsoide se conserva durante la evolución, sus ejes principales varían en el tiempo, tanto en magnitud como en dirección. La velocidad exponencial promedio de expansión o contracción de los ejes del hiper-elipsoide llevan el nombre exponentes de Lyapunov. Los exponentes así definidos dependen, en principio, de la condición inicial, pero H. D. Meyer [68] demostró que para sistemas hamiltonianos conservativos que tienen la propiedad de ergodicidad, se obtienen los mismos exponentes para casi todas las condiciones iniciales. También demostró, siguiendo con los sistemas hamiltonianos conservativos, que los exponentes vienen de a pares positivo-negativo (lo que hace que se cumpla el teorema de Liouville) y que hay, por lo menos,  $2C$  exponentes iguales a cero, si el sistema  $C$  constantes de movimiento.

El máximo exponente de Lyapunov ( $\lambda$ ) denota la velocidad promedio de divergencia exponencial de dos trayectorias que inicialmente están infinitesimalmente cercanas. Y se define usualmente mediante la siguiente ecuación:

$$\lambda = \lim_{T \rightarrow \infty} \lim_{d(0) \rightarrow 0} \frac{1}{T} \ln \frac{d(T)}{d(0)} \quad (9.1)$$

donde  $d(0)$  es la separación inicial entre las dos trayectorias y  $d(t)$  es la separación a tiempo  $t$ . Definimos, como en [65], la siguiente métrica en el espacio de fases:

$$d(t) = \sqrt{\sum_{i=1}^N [\alpha(r'_1(t) - r'_2(t))^2 + \beta(v'_1(t) - v'_2(t))^2]_i}, \quad (9.2)$$

donde la suma es sobre todas las partículas del sistema, los subíndices 1 y 2 refieren a dos trayectorias.  $r'$  y  $p'$  son la posición y momento escaleados:

$$r'(t) = \mathbf{r}(t)/R_{rms} \quad (9.3)$$

$$v'(t) = \mathbf{v}(t)/\sqrt{K/m} \quad (9.4)$$

donde  $R_{rms}$  es la raíz del radio cuadrático medio y  $K$  es la energía cinética por partícula del sistema por lo que  $\sqrt{K/m}$  es una velocidad promedio. Corroboramos en nuestras simulaciones que el exponente de Lyapunov no depende de la métrica elegida, como debe ser, por lo que tomamos:  $\alpha = 0$  y  $\beta = 1$ , i.e. medimos distancias en el espacio de velocidades.

Dado que en el proceso de fragmentación los distintos observables dependen fuertemente del tiempo, proponemos estudiar el máximo exponente de Lyapunov local en el tiempo [69]. Esta magnitud mide el crecimiento exponencial, durante un tiempo corto ( $\tau$ ), de perturbaciones infinitesimales a una dada trayectoria a tiempo  $t$ :

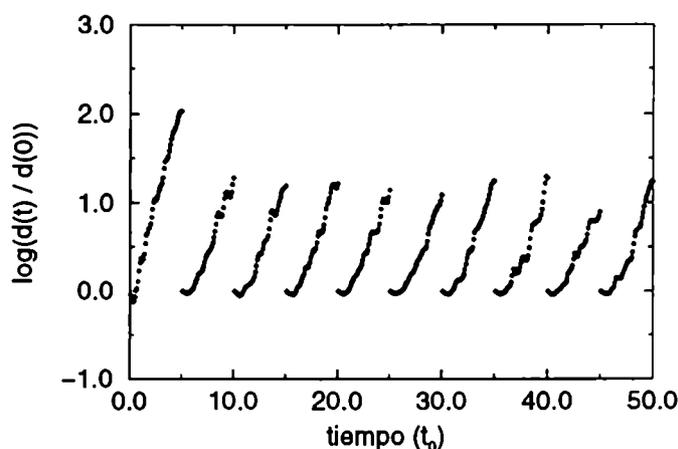
$$\lambda_\tau(t) = \left\langle \left\langle \frac{d \ln(d_t(t')/d_t(0))}{dt'} \right\rangle_{t'} \right\rangle_{ev} \quad d_t(0) \rightarrow 0 \quad (9.5)$$

donde  $t$  es el tiempo en el cual la perturbación es hecha,  $d_t(0)$  es la distancia inicial entre las trayectorias,  $d_t(t')$  es la distancia a tiempo  $t + t'$ .  $\langle \rangle_{ev}$  significa valor medio tomado en varios eventos para la misma energía y densidad inicial. Por último  $\langle \rangle_t$  significa promedio temporal tomado entre  $t + \tau_1$  y  $t + \tau$ . La razón de  $\tau_1$  es que, como veremos abajo, para tiempos cortos las trayectorias separadas al azar no divergen exponencialmente, solo después de un tiempo dado  $\sim t_0$  la divergencia promedio es exponencial.

Nótese que el máximo exponente de Lyapunov está definido tomando el límite  $t \rightarrow \infty$ . Esto significa que el exponente mide la velocidad de divergencia exponencial *promedio*, ya que si el sistema es ergódico pasará arbitrariamente cerca de cualquier punto del espacio de fases. Al definir el máximo exponente de Lyapunov local en el tiempo se relaciona el límite de  $t \rightarrow \infty$  por un promedio de diferentes condiciones iniciales. La idea es similar a la de reemplazar el promedio temporal por un promedio de ensambles en mecánica estadística [18].

Para realizar computacionalmente las ideas antedichas hicimos evoluciones de dinámica molecular en todo iguales a las explicadas anteriormente. Una vez construída la condición inicial, que llamaremos "madre", ya sea para un experimento de altas energías (fragmentación) o en el régimen de bajas energías (cuasi líquido o cuasi-sólido), generamos  $N_h$  configuraciones

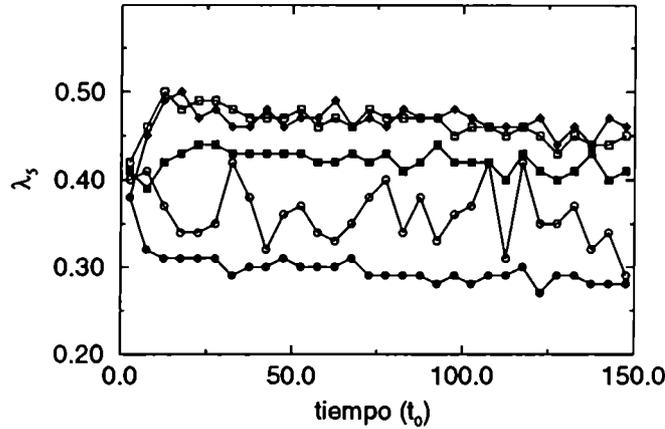
“hijas” perturbando las velocidades de la madre al azar. Generamos las hijas de manera que la distancia, en el espacio de las velocidades ec. 9.2, entre ellas y la madre sea del orden de  $10^{-6}$ . Evolucionamos, mediante la técnica de dinámica molecular, a la madre y a las  $N_h$  hijas por un tiempo  $\tau$ , calculando la distancia entre las hijas y la madre. A tiempo  $\tau$  se generan nuevas hijas a partir de la nueva posición de la madre. Este procedimiento se repite para abarcar el tiempo total deseado.



**Figura 9.1:** Logaritmo de la distancia, en el espacio de velocidades, entre la “madre” y las  $N_h = 10$  “hijas”, en función del tiempo, para  $E = 0.5\epsilon$ . Se puede ver cada  $\tau = 5t_0$  las “hijas” son generadas nuevamente.

Para aclarar el significado del exponente local de Lyapunov, en la Fig. 9.1 mostramos la distancia promedio entre una madre y sus 10 hijas en función del tiempo para  $E = 0.5\epsilon$ . Se puede ver que cada  $\tau = 5t_0$  las hijas se generan nuevamente. También podemos observar que para tiempos no muy cercanos al de generación de las hijas el logaritmo de la distancia crece aproximadamente lineal con el tiempo. Para cada energía realizamos aproximadamente 10 evoluciones de una madre y 10 hijas cada una. El máximo exponente de Lyapunov local,  $\lambda_5(t)$  lo obtenemos como la pendiente de  $\log(d_t(t')/d_t(0))$  vs.  $t'$  en el rango entre  $t + 2t_0$  y  $t + 5t_0$ .

En la Fig. 9.2 mostramos el máximo exponente local de Lyapunov  $\lambda_5(t)$  en función del tiempo para distintas condiciones iniciales [70]. Mostramos cuatro diferentes energías para densidad inicial  $\rho = 0.85\sigma^{-3}$ :  $E = 0.9\epsilon$ ,  $E = 0.5\epsilon$ ,  $E = -0.5\epsilon$  y  $E = -1.5\epsilon$  y para  $\rho = 0.95\sigma^{-3}$   $E = -1.5\epsilon$ . Analicemos en



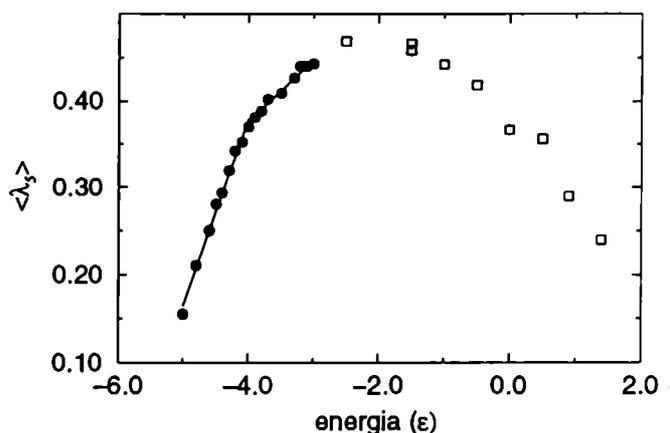
**Figura 9.2:** Exponente máximo de Lyapunov local en función del tiempo. Para  $\rho = 0.85\sigma^{-3}$   $E = 0.9\epsilon$  (círculos llenos),  $\rho = 0.85\sigma^{-3}$   $E = 0.5\epsilon$  (círculos vacíos),  $\rho = 0.85\sigma^{-3}$   $E = -0.5\epsilon$  (cuadrados llenos),  $\rho = 0.85\sigma^{-3}$   $E = -1.5\epsilon$  (cuadrados vacíos) y  $\rho = 0.95\sigma^{-3}$   $E = -1.5\epsilon$  (rombos llenos).

primer lugar el comportamiento de  $\lambda_5(t)$  para los dos caso de igual energía que difieren en la densidad inicial, cuadrados vacíos y rombos llenos de la Fig. 9.2. Se ve claramente de la figura que el valor para tiempos largos no depende de la densidad inicial, sólo de la energía. Por otro lado, podemos ver que para energías altas  $\tau_5(t)$  disminuye con el tiempo, el sistema se “ordena” a medida que se genera el movimiento colectivo de expansión. Por otro lado el exponente para tiempos largos  $\lambda_5(t)$  decrece a medida que la energía total aumenta. Esto es un claro indicativo que el sistema es cada vez mas “ordenado” a medida que y el movimiento colectivo aumenta y el sistema se rompe en fragmentos mas pequeños [70].

Hasta ahora hemos hablado del régimen de altas energías. También calculamos el máximo exponente de Lyapunov local en el tiempo para gotas en el régimen de bajas energías. El procedimiento es en todo similar al utilizado para las gotas de altas energías, el máximo exponente de Lyapunov local en el tiempo no depende del tiempo una vez que el sistema está termalizado y su valor coincide con el máximo exponente de Lyapunov, definido en la ecuación 9.1, [63].

En la Fig. 9.3 mostramos el máximo exponente de Lyapunov en función de la energía. Para el caso de fragmentación (cuadrados en la figura)

mostramos  $\langle \lambda_5 \rangle$  el valor medio del exponente local para tiempos entre  $t = 50t_0$  y  $t = 150t_0$ .



**Figura 9.3:** Exponente máximo de Lyapunov local en el tiempo, en función de la energía. Para el caso de altas energías de fragmentación tomamos el valor medio temporal de  $\lambda_5(t)$  para tiempos entre  $t = 50t_0$  y  $t = 150t_0$ .

En la Fig. 9.3 se puede ver que la transición de fase cuasi-sólido cuasi-líquido, que sucede alrededor de  $E \sim -4.1\epsilon$ , aparece como un cambio de pendiente en la curva  $\langle \lambda_5 \rangle$  vs. energía (ajustamos dos rectas para facilitar la identificación del cambio de pendiente). Nótese que este cambio de pendiente se da a la misma energía donde se produce el “loop” de la curva calórica y el fuerte incremento de coeficiente de Lindemann, Fig. 8.1. Por otro lado podemos ver que la curva de la Fig. 9.3 presenta un máximo para  $E \sim -2\epsilon$  que corresponde a la región de líquido con evaporación, i.e. cuando empieza el “plateau” que denota el proceso de alta evaporación y fragmentación en la curva calórica extendida. La presencia de este máximo se puede entender de la siguiente manera. Para energías menores la temperatura de la gota disminuye, lo que hace que el exponente también lo haga. Por otro lado, para  $E > -2\epsilon$ , la curva calórica extendida (Fig. 8.2) indica que la temperatura no aumenta apreciablemente, pero el tamaño de los fragmentos resultantes, presentes al tiempo en que el exponente local promedio se mide, disminuye. Esta disminución de la masa de los fragmentos hace que  $\langle \lambda_5 \rangle$  también decrezca [70]. Encontramos este mismo comportamiento en sistemas bidimensionales de Lennard-Jones [69].

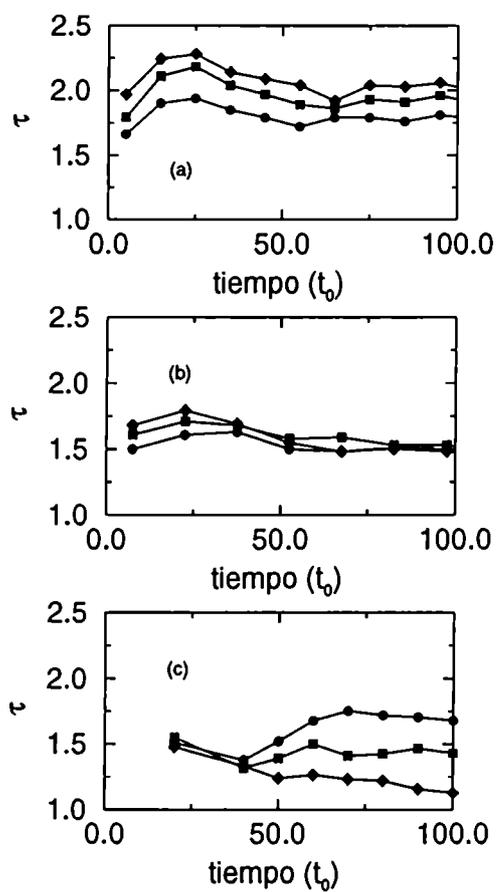
A. Bonasera y colaboradores encontraron un máximo en el exponente de Lyapunov para la excitación correspondiente al espectro tipo ley de potencia [65]. Atribuyeron el máximo en el exponente de Lyapunov a la presencia de un fenómeno crítico. En nuestro caso el máximo exponente de Lyapunov local en el tiempo no muestra ninguna señal de criticalidad, recordemos que el espectro tipo ley de potencia aparece para  $E = 0.5\epsilon$ . Sin embargo  $\langle \lambda_5 \rangle$  nos da información valiosa acerca del proceso de fragmentación y confirma los resultados de la curva calórica extendida [69, 70].

## 9.2 Propiedades del espectro de masa

Como vimos en la sección anterior el máximo exponente de Lyapunov local en el tiempo da importante información acerca del proceso de fragmentación y confirma el resultado de la curva calórica extendida, pero no sirve como indicador del fenómeno crítico.

En esta sección presentaremos cantidades que pueden indicar la presencia de una transición de fase de segundo orden.

Empecemos por analizar el espectro de masa. Recordemos que en el punto crítico de una transición de fase líquido-gas o en percolación el espectro de masa es del tipo ley de potencia, este resultado está relacionado al hecho de que el sistema no tiene una escala característica. Para sistemas finitos el espectro de masa es de la forma ley de potencia solo para las masas intermedias: los clusters pequeños se separan de la ley potencial [22] y por otro lado, las poblaciones de las masas grandes son perturbadas por el tamaño finito del sistema. Por otro lado sabemos que para sistemas pequeños no hay un punto crítico bien definido, sino, mas bien, una región crítica. De la Fig. 4.1 vemos que el espectro de masa para  $E = 0.5\epsilon$  es similar a una ley de potencia. Para verificar este hecho, ajustamos leyes de potencias a los espectros para  $E = 0\epsilon$ ,  $E = 0.5\epsilon$  y  $E = 0.9\epsilon$  para distintos tiempos y en tres rangos de masa: 4-40, 4-50 y 4-60, Fig. 9.4. Podemos ver de la figura que los espectros de masa asintóticos para  $E = 0\epsilon$  y  $E = 0.9\epsilon$  no siguen una ley de potencia, ya que el exponente ajustado depende fuertemente del rango de masa considerado. Por otro lado, para  $E = 0.5\epsilon$  y para tiempos mayores al de formación de fragmentos ( $\tau_{ff}(E = 0.5\epsilon) \sim 65t_0$ ) el exponente no varía apreciablemente con el rango de masa ajustado. Por lo tanto el espectro de masa asintótico es muy similar a una ley de potencia con un exponente  $\tau \sim 1.5$ . Recordemos que para los sistemas en el límite termodinámico el exponente satisface la relación  $2 < \tau < 3$ , el valor tan bajo encontrado en nuestro caso puede resultar de efectos de tamaño finito.



**Figura 9.4:** Exponente obtenido al ajustar espectros de masa con una ley de potencia en función del tiempo para  $E = 0.9\epsilon$  (a),  $E = 0.5\epsilon$  (b) y  $E = 0\epsilon$  (c). Los rangos de masa utilizados para el ajuste son 4-40 (círculos), 4-50 (cuadrados) y 4-60 (rombos).

Es importante mencionar en este punto que una manera de identificar el punto crítico, para un sistema termodinámico, es buscar el mínimo exponente ajustando el espectro solo para masas pequeñas. Esto se debe a que para altas energías el espectro decae rápidamente con la masa (lo que lleva a un exponente efectivo grande) y para el caso de bajas energías (espectro en forma de U) el espectro también decae rápidamente para masas pequeñas (dando nuevamente un exponente efectivo grande) y luego crece para masas grandes. Es interesante notar que para el rango 4-40 y para tiempos largos el exponente es menor para el caso  $E = 0.5\epsilon$ . Por lo tanto  $E = 0.5\epsilon$  no solo presenta un espectro de masa tipo ley de potencia sino también el mínimo exponente.

Como dijimos en los capítulos introductorios y es bien conocido en la teoría de transiciones de fase, los puntos críticos son acompañados por grandes fluctuaciones. Por lo tanto estudiamos la fluctuación normalizada del tamaño del máximo fragmento ( $\Sigma_{N_{max}}$  propuesto en [64] y definida como:

$$\Sigma_{N_{max}}(t) = \frac{\sqrt{\langle N_{max}(t)^2 \rangle - \langle N_{max}(t) \rangle^2}}{\langle N_{max}(t) \rangle} \quad (9.6)$$

donde  $\langle \rangle$  significa valor medio tomado en los distintos eventos para una dada condición inicial y  $N_{max}(t)$  es el fragmento de mayor masa a tiempo  $t$  en cada evento.

Por otro lado proponemos estudiar la fluctuación normalizada de la energía potencial:

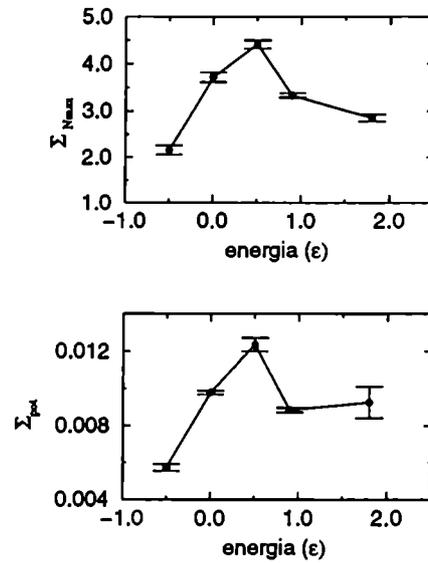
$$\Sigma_{Pot}(t) = \frac{\sqrt{\langle V(t)^2 \rangle - \langle V(t) \rangle^2}}{\langle V(t) \rangle} \quad (9.7)$$

donde, nuevamente,  $\langle \rangle$  significa valor medio tomado en los distintos eventos para una dada condición inicial y  $V(t)$  es la energía potencial total del sistema a tiempo  $t$  en cada evento.

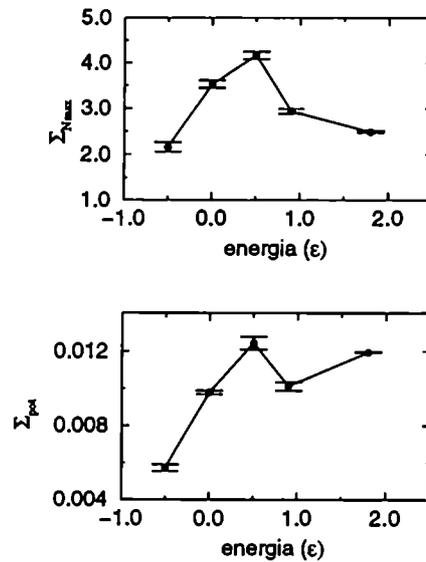
En la Fig. 9.5 mostramos las fluctuaciones normalizadas del tamaño del máximo fragmento y energía potencial en función de la energía para tiempo de formación de fragmentos. Se ve claramente que ambas fluctuaciones presentan máximo para  $E = 0.5\epsilon$ , la misma energía que presenta comportamiento tipo ley de potencia y mínimo exponente.

En la Fig. 9.6 mostramos las mismas cantidades para tiempos largos ( $t = 90t_0$ ). Encontramos el mismo comportamiento para tiempos asintóticos que para los de formación de fragmentos.

Para finalizar esta sección estudiaremos, siguiendo a X. Campi, los mo-



**Figura 9.5:**  $\Sigma_{Nmax}(\tau_{ff})$  (a) y  $\Sigma_{Pot}(\tau_{ff})$  (b) a tiempo de formación de fragmentos en función de la energía total.

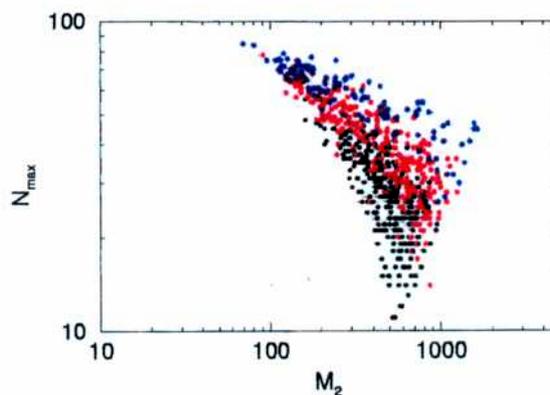


**Figura 9.6:**  $\Sigma_{Nmax}(t = 90t_0)$  (a) y  $\Sigma_{Pot}(t = 90t_0)$  (b) a tiempo de formación de fragmentos en función de la energía total.

mentos del espectro de masa evento a evento:

$$M_k^{(j)} = \sum_n n^k y^{(j)}(n), \quad (9.8)$$

donde  $y^{(j)}(n)$  es la multiplicidad de clusters de masa  $n$  en el evento  $j$  y la suma recorre los fragmentos del evento  $j$  excepto el de mayor masa. Es bien sabido que en transiciones de fase de segundo orden, como percolación, los primeros momentos de la distribución de fragmentos (sin considerar el de mayor masa) están relacionados a los exponentes críticos [22] y presentan un comportamiento singular en la vecindad del punto crítico. Los momentos de orden 2 o mayores divergen en el punto crítico. Por supuesto, para sistemas finitos ningún momento diverge. De todos modos X. Campi propuso que si el sistema finito mantuviera algunas de las características de la transición de fase se observarían fuertes correlaciones entre los momentos. En particular, estudiando (en el modelo de percolación) la correlación entre el máximo fragmento de cada evento y el segundo momento de los fragmentos restantes, se observó que presenta una forma típica que refleja la ocurrencia de una transición de fase. Esta forma consiste en dos ramas, una alta y de pendiente negativa, que corresponde a eventos “subcríticos” o “tipo líquido”, y otra rama baja de pendiente positiva correspondiente a eventos “supercríticos” o “tipo vapor”. Las dos ramas se encuentran en el punto crítico de la transición de fase [71].



**Figura 9.7:** Gráfico de Campi. Máximo fragmento vs. segundo momento de los clusters restantes. Los eventos provienen de  $E = 0.9\epsilon$  (círculos negros),  $E = 0.5\epsilon$  (círculos rojos) y  $E = 0\epsilon$  (círculos azules).

En la Fig. 9.7 mostramos el máximo fragmento vs. segundo momento de los clusters restantes, en escala doble logarítmica, lo que se conoce con el nombre de gráfico de Campi. Los eventos mostrados en la figura vienen de  $E = 0.9\epsilon$  (círculos negros),  $E = 0.5\epsilon$  (círculos rojos) y  $E = 0\epsilon$  (círculos azules). El número total de eventos para cada energía es 300. En la figura se pueden ver la rama alta o “tipo líquida” compuesta, mayoritariamente, por eventos que provienen de  $E = 0\epsilon$  y la supercrítica o “tipo vapor” compuesta, mayoritariamente, por eventos de  $E = 0.9\epsilon$ . Por otro lado la región donde las dos ramas se juntan, que correspondería a la transición de fase, está formada, mayoritariamente, por eventos provenientes de  $E = 0.5\epsilon$ , que es la energía que resulta en un espectro de masa tipo ley de potencia y grandes fluctuaciones del tamaño del mayor fragmento y la energía potencial. Este tipo de comportamiento, en el gráfico de Campi, fue encontrado anteriormente en simulaciones de fragmentación de gotas clásicas cuyas partículas interactúan mediante un potencial creado para simular la materia nuclear [72].

### 9.3 Discusión

El máximo exponente de Lyapunov local en el tiempo  $\lambda_\tau(t)$  mide la velocidad promedio de crecimiento exponencial de perturbaciones infinitesimales a una trayectoria en un tiempo corto  $\tau$ . Estudiamos  $\lambda_{\tau=5t_0}(t)$  en función del tiempo para experimentos de fragmentación y en el régimen de bajas energías. El  $\lambda_5(t)$  para tiempos largos en función de la energía presenta un máximo para  $E \sim -2\epsilon$ , donde el sistema presenta un cluster grande y muy caliente. Para menores energías la temperatura disminuye, por lo que  $\lambda_5(t)$  también lo hace y para energías mayores la temperatura se mantiene aproximadamente constante, ver Fig. 8.2, pero el tamaño de los clusters disminuye, lo que hace que  $\lambda_5(t)$  también decrezca.

Por otro lado mostramos que para  $E = 0.5\epsilon$  el espectro de masa sigue una ley de potencia. Precisamente para esta energía las fluctuaciones normalizadas del tamaño del cluster de masa mayor y de la energía potencial presentan máximos. Mas aún los eventos provenientes de esta energía se encuentran en la región donde las dos ramas del gráfico de Campi se juntan, esta región es asociada a la presencia de una transición de fase. Estos resultados no son suficientes para asegurar que estamos en presencia de un fenómeno crítico a  $E = 0.5\epsilon$ , pero el espectro de masa tipo ley de potencia, las grandes fluctuaciones y el gráfico de Campi indican que algo particular sucede para esa energía. A pesar del gran esfuerzo puesto en este sentido

(ver [64, 72, 73] y referencias allí mencionadas) la posibilidad de la existencia de un fenómeno crítico en fragmentación es una pregunta abierta que necesitará mas estudios para ser contestada.

## Capítulo 10

# El caso bidimensional

En este capítulo mostramos nuestros resultados de experimentos de fragmentación de gotas de Lennard Jones bidimensionales formadas por  $N = 100$  partículas.

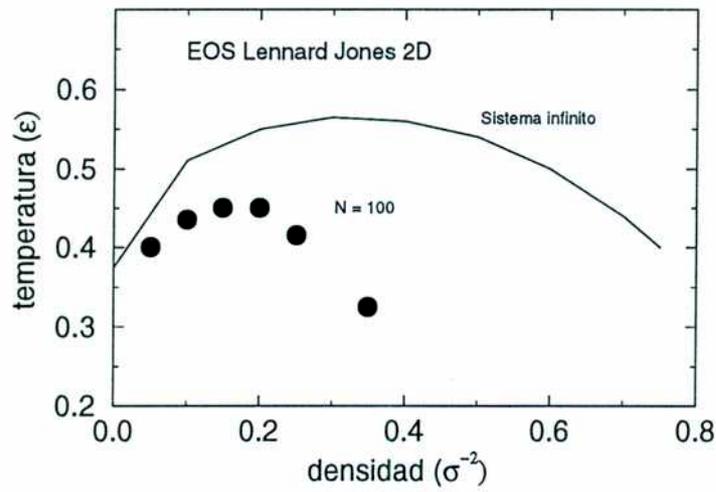
No entraremos en mucho detalle sobre los cálculos bidimensionales ya que son, en cuanto a las técnicas computacionales y resultados, muy similares a lo ya explicado en detalle para el caso tridimensional.

### 10.1 Experimentos computacionales

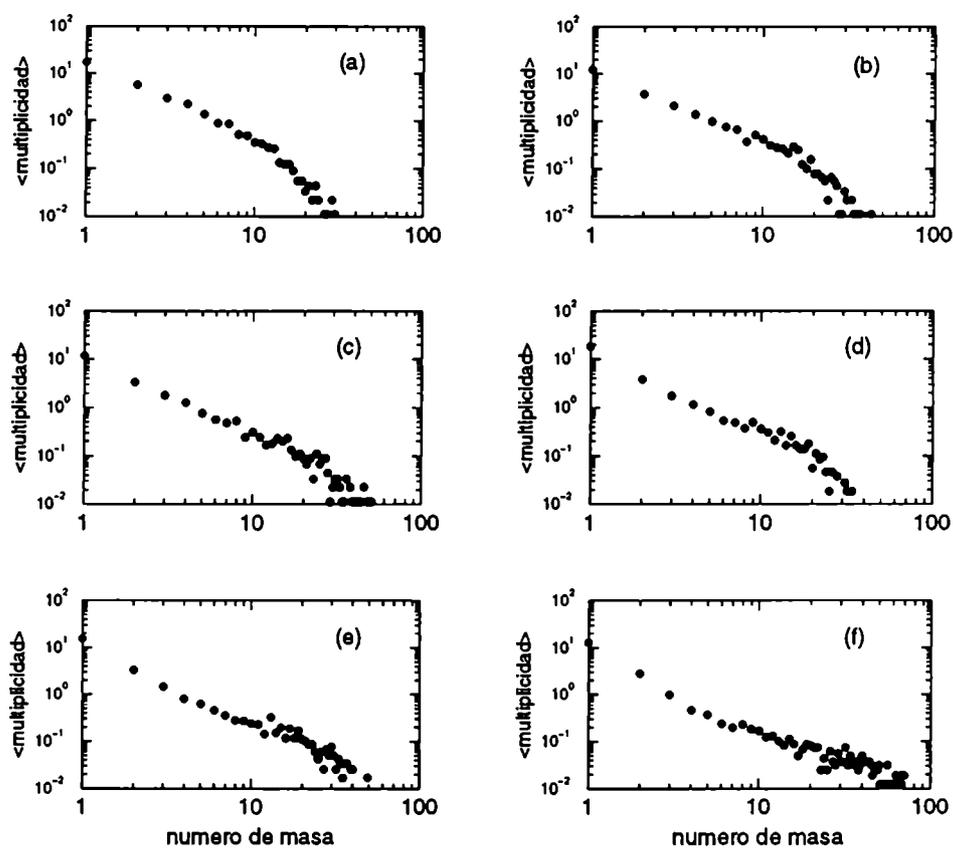
El potencial de interacción utilizado es igual al explicado en el capítulo 4, ecuación 4.1. Construimos las configuraciones iniciales de la misma manera que en el caso tridimensional. Termalizamos un sistema bidimensional de  $N = 225$  partículas con condiciones periódicas de contorno y luego cortamos gotas circulares de diferentes energías. Nuevamente la energía de las gotas está determinada por la energía y densidad del sistema periódico.

Estudiamos fragmentación en un amplio rango de energías que van desde  $-1.15\epsilon$  hasta  $1.8\epsilon$  con una densidad, tomada como la del sistema periódico de  $\rho = 0.75\sigma^{-2}$ . En la Fig. 10.1 mostramos la ecuación de estado de sistema de L-J en el límite termodinámico [75] (línea llena), junto con la ecuación de estado de un sistema periódico formado por  $N = 100$  partículas, círculos llenos. Nótese el efecto de tamaño finito, que resulta en una reducción de la región de coexistencia líquido-gas [15]. Las energías estudiadas corresponden a temperaturas entre  $\sim 1\epsilon$  y  $\sim 4\epsilon$ , lo que significa las gotas iniciales son líquidas y están muy calientes y comprimidas, ver Fig. 10.1.

En la Fig. 10.2 mostramos los espectros de masa asintóticos para distintas energías. Se puede ver que de la figura que las energías estudiadas



**Figura 10.1:** Ecuación de estado del sistema de Lennard-Jones en el límite termodinámico (línea llena) y para un sistema de  $N = 100$  partículas con condiciones periódicas de contorno.



**Figura 10.2:** Espectros de masa asintóticos para el caso bidimensional. (a)  $E = 1.8\epsilon$ , (b)  $E = 0.8\epsilon$ , (c)  $E = -0.015\epsilon$ , (d)  $R = -0.3\epsilon$ , (e)  $E = -0.55\epsilon$  y (f)  $E = -0.8\epsilon$ .

representan un amplio rango de excitaciones y que las formas de los espectros de masa son similares a los de gotas 3D.

## 10.2 Formación y emisión de fragmentos

De la misma manera que para los sistemas tridimensionales utilizamos los algoritmos MST, MSTE y ECRA para el reconocimiento de fragmentos. La formulación de los algoritmos para el caso 2D no presentan ninguna dificultad, ver [59, 74]. Los resultados son cualitativamente iguales a los ya explicados en el capítulo 5 para gotas en 3 dimensiones.

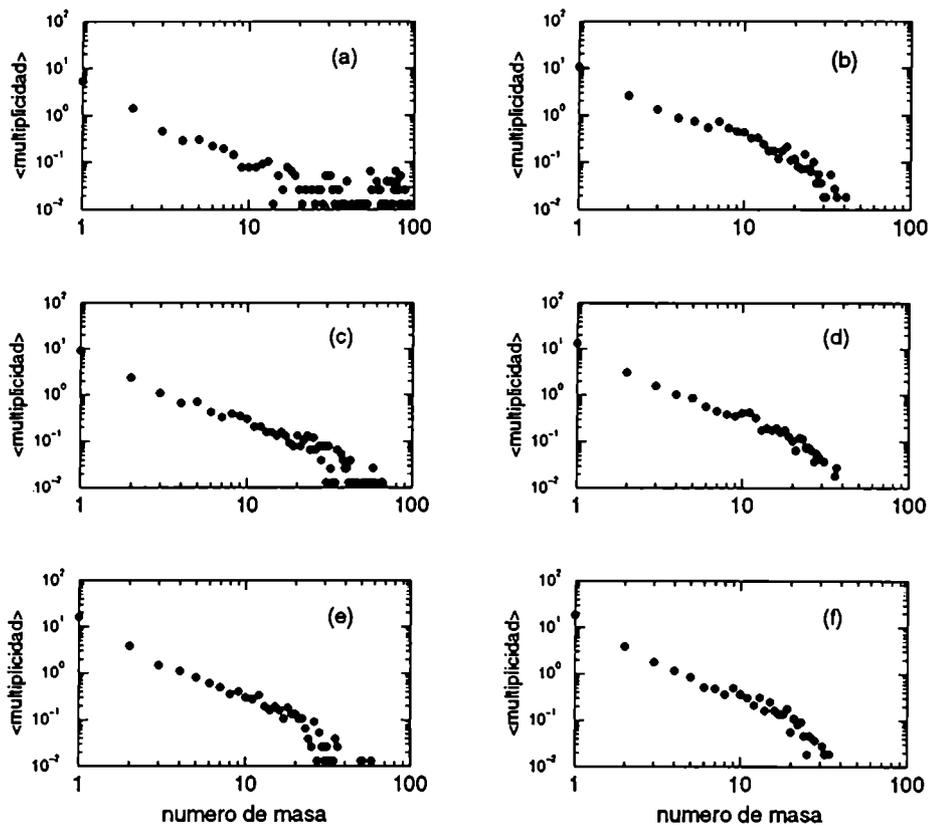


Figura 10.3: Espectros de masa para  $E = -0.3\epsilon$ . (a) MST  $t = 40t_0$ , (b) ECRA  $t = 40t_0$ , (c) MST  $t = 80t_0$ , (d) ECRA  $t = 80t_0$ , (e) MST  $t = 200t_0$  y (f) ECRA  $t = 2000t_0$ .

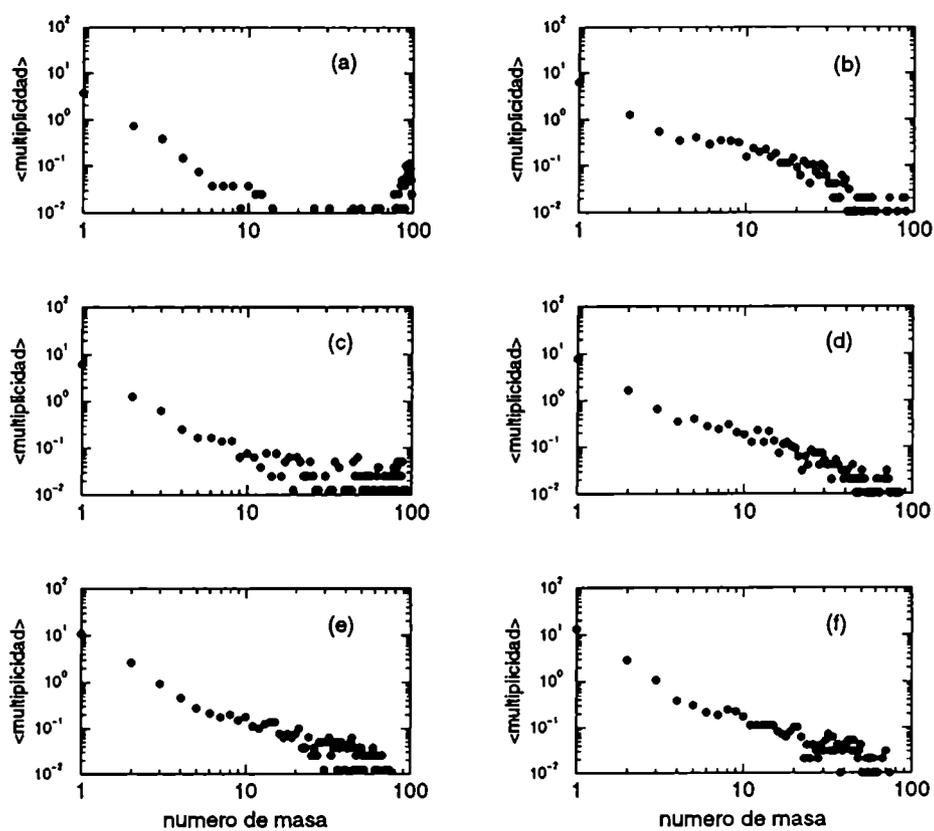


Figura 10.4: Espectros de masa para  $E = -0.8\epsilon$ . (a) MST  $t = 40t_0$ , (b) ECRA  $t = 40t_0$ , (c) MST  $t = 80t_0$ , (d) ECRA  $t = 80t_0$ , (e) MST  $t = 200t_0$  y (f) ECRA  $t = 2000t_0$ .

En la Fig. 10.3 mostramos espectros de masa para  $E = -0.3$ , utilizando tanto el algoritmo MST (Fig. 10.3 (a) (c) y (e)) como el ECRA (Fig. 10.3 (b) (d) y (f)) para distintos tiempos. Los tiempos de la figura son:  $t = 40t_0$  Fig. 10.3 (a) y (b),  $t = 80t_0$  Fig. 10.3 (c) y (d) y para  $t = 200t_0$  Fig. 10.3 (e) y (f). Es claro que el espectro de masa obtenido con el algoritmo ECRA a  $t = 40t_0$  es muy similar al asintótico, mientras que el obtenido mediante la aplicación del MST presenta poca similitud. En la Fig. 10.4 mostramos la misma información pero para  $E = -0.8\epsilon$ , ver nota de figura para los detalles.

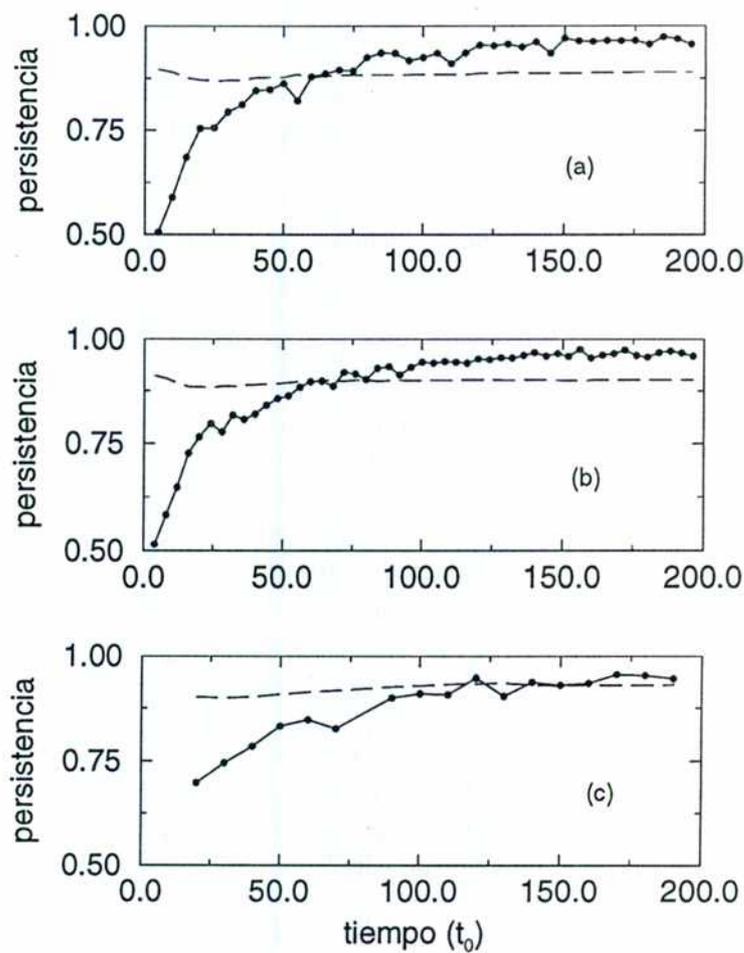
También estudiamos la estabilidad microscópica de los clusters de manera similar a la utilizada para 3D. Definamos ahora el coeficiente de estabilidad microscópica *local*. A un tiempo  $t$  nuestro sistema estará formado por un conjunto de fragmentos  $\{C_i(t)\}$ , que un tiempo  $\Delta t$  mas adelante pueden cambiar su composición y transformarse en el conjunto  $\{C_i(t + \Delta t)\}$ . Consideremos un cluster  $C_i(t)$  que contiene  $n_i(t)$  partículas, por lo que el número de pares es:  $b_i(t) = n_i(t)(n_i(t) - 1)/2$ . Las partículas que forman el cluster  $C_i(t)$  pueden permanecer unidas a tiempo  $t + \Delta t$  o pertenecer a diferentes clusters. Definimos  $a_i(t; \Delta t)$  como el número de pares de partículas que pertenecen a  $C_i(t)$  y también están unidas en algún cluster a tiempo  $t + \Delta t$ . Ahora podemos definir el coeficiente de estabilidad microscópica local:

$$P_{loc}(t; \Delta t) = \frac{1}{N_{ev}} \sum_{ev} \frac{1}{\sum_{cl} m_i(t)} \sum_{cl} m_i(t) \frac{a_i(t; \Delta t)}{b_i(t)}, \quad (10.1)$$

donde la primer suma es sobre los diferentes eventos para una dada energía,  $N_{ev}$  es el número de eventos, y las otras dos sumatorias recorren los clusters a tiempo  $t$ . Nótese que mientras en el caso tridimensional comparábamos la partición a tiempo  $t$  con la asintótica, ahora estamos comparando la partición a tiempo  $t$  con la partición a  $t + \Delta t$ . Definimos un valor de referencia para  $P_{loc}(t; \Delta t)$  relacionado a un proceso evaporativo calculado a partir de la partición a tiempo  $t$  y considerando que todos los fragmentos con masa mayor a 4 evaporan una partícula.

En la Fig. 10.5 mostramos el coeficiente de estabilidad microscópica local en función del tiempo junto con el valor de referencia, para las siguientes energías:  $E = -0.3\epsilon$  Fig. 10.5 (a),  $E = -0.55\epsilon$  Fig. 10.5 (b) y  $E = -0.8\epsilon$  Fig. 10.5 (c). Para estos cálculos tomamos  $\Delta t = 5t_0$  para  $E = -0.3\epsilon$ ,  $\Delta t = 4t_0$  para  $E = -0.55\epsilon$  y  $\Delta t = 10t_0$  para  $E = -0.8\epsilon$ .

Dado que los resultados acerca de formación de fragmentos son cualitativamente iguales a los obtenidos para el caso tridimensional no entraremos en mas detalle. Nuevamente, los fragmentos se forman en el espacio de fases, y son reconocidos mediante el formalismo ECRA, mucho antes de ser



**Figura 10.5:** Coeficiente de estabilidad microscópica local en función del tiempo. Para  $E = -0.3\epsilon$  ( $\Delta t = 5t_0$ ) Fig. 10.5 (a),  $E = -0.55\epsilon$  ( $\Delta t = 4t_0$ ) Fig. 10.5 (b) y  $E = -0.8\epsilon$  ( $\Delta t = 10t_0$ ) Fig. 10.5 (c).

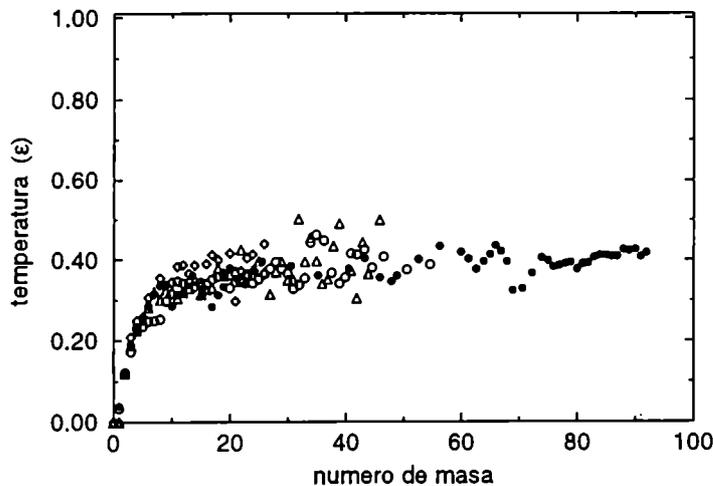
emitidos. Para mas detalle acerca de la determinación de los tiempos de formación de fragmentos ver [59, 74]. Obtuvimos los siguiente tiempos de formación de fragmentos para  $E \geq -0.015\epsilon$  es  $\tau_{ff} \sim 12t_0$ , para  $E = -0.3\epsilon$  tenemos  $\tau_{ff} \sim 40t_0$  y para  $E = -0.8\epsilon$  el tiempo es  $\tau_{ff} \sim 80t_0$  [74].

### 10.3 Propiedades internas de los fragmentos

De manera similar a la explicada en el capítulo 6 calculamos la temperatura interna de los fragmentos. En el caso 2D la temperatura viene dada por:

$$T_{int}(n, t) = \frac{1}{N_n} \sum_i \frac{1}{n - 3/2} \sum_{j \in i} \frac{1}{2} m(\mathbf{v}_i^{(cm)})^2 \quad (10.2)$$

donde  $N_n$  es el número total de fragmentos de masa  $n$ , en todos los eventos de una energía dada; la primera sumatoria corre sobre todos los fragmentos  $i$  de masa  $n$  en todos los eventos y la segunda suma recorre las partículas que forman el cluster  $i$ .  $\mathbf{v}_i^{(cm)}$  es la velocidad de la parícula  $i$  una vez que se la ha restado el momento lineal y angular del cluster al que pertenece.



**Figura 10.6:** Temperatura interna de los fragmentos asintóticos para distintas condiciones iniciales. Los círculos llenos denotan  $\rho = 0.75(1/\sigma^2)$  y  $E = -1.1\epsilon$ , círculos vacíos  $\rho = 0.75(1/\sigma^2)$  y  $E = -0.55\epsilon$ , los rombos  $\rho = 0.75(1/\sigma^2)$  y  $E = 0.8\epsilon$  y los triángulos denotan  $\rho = 0.85(1/\sigma^2)$  y  $E = -0.3\epsilon$ .

En al Fig. 10.6 mostramos la temperatura de los fragmentos asintóticos en función de la masa para  $\rho = 0.75(1/\sigma^2)$  y  $E = -1.1\epsilon$  círculos llenos,  $\rho = 0.75(1/\sigma^2)$  y  $E = -0.55\epsilon$  círculos vacíos,  $\rho = 0.75(1/\sigma^2)$  y  $E = 0.8\epsilon$  rombos y  $\rho = 0.85(1/\sigma^2)$  y  $E = -0.3\epsilon$  triángulos. Igual que en el caso 3D obtenemos que la temperatura interna de los fragmentos no depende de la excitación inicial. Nótese que el patrón de fragmentación en los casos mostrados es muy distinto: para  $E = 0.8\epsilon$  no hay fragmentos de masa mayor a  $\sim 30$  mientras que para  $E = -1.1\epsilon$  hay pocos fragmentos de masa intermedia, lo que proviene de un espectro de masa en forma de U. No entraremos en mas detalle sobre estos cálculos ya que son totalmente análogos al caso 3D.

## 10.4 Movimiento colectivo y temperatura local

Para estudiar la evolución temporal del movimiento colectivos y de los grados internos del sistema tomamos un camino similar al explicado en el capítulo 7. La única diferencia radica en la manera de dividir el sistema.

Para el caso 2D dividimos el sistema en 10 coronas concéntricas centradas en el c.m. del sistema. La región  $i$ ésima es el área entre dos círculos concéntricos de radios  $r_{int}^{(i)} = (i-1)r_{max}/10$  y  $r_{ext}^{(i)} = i)r_{max}/10$ , donde  $r_{max}$  es la distancia desde el c.m. del sistema hasta la partícula mas lejana. La única diferencia con el caso 3D es que el ancho de las regiones era fijo en aquel caso, mientras que para 2D aumentan en el tiempo.

Las definiciones de velocidad radial y de temperatura local, relacionada a las fluctuaciones de velocidad sobre la expansión colectiva, de cada corona, son similares a las del caso 3D:

$$v_{rad}^{(i)}(t) = \frac{1}{N_i(t)} \sum_{ev} \sum_{j \in i} \frac{\mathbf{v}_j(t) \cdot \mathbf{r}_j(t)}{|\mathbf{r}_j(t)|} \quad (10.3)$$

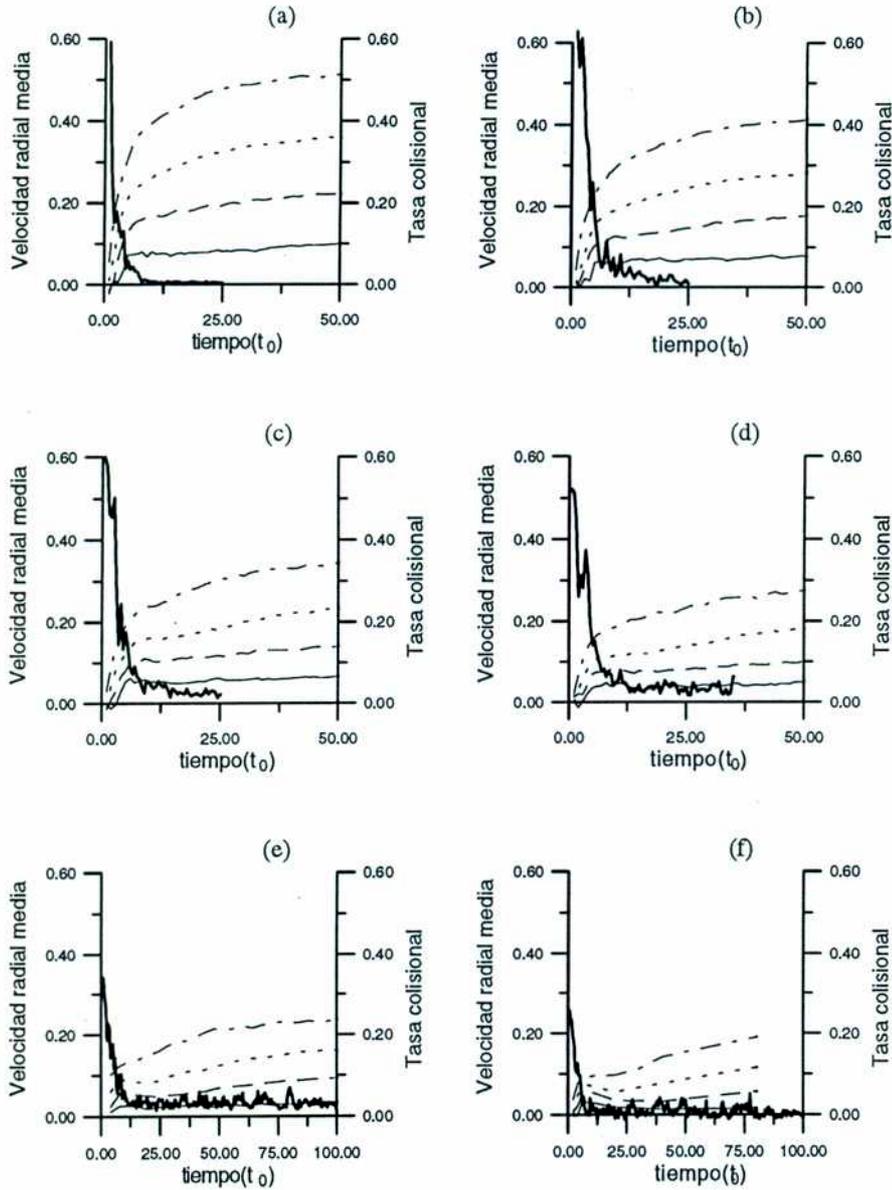
y

$$T_{loc}^{(i)}(t) = \frac{1}{N_i(t)} \sum_{j \in i} \frac{1}{2} m \left( \mathbf{v}_j - v_{rad}^{(i)} \cdot \mathbf{r}_j \right)^2. \quad (10.4)$$

La única diferencia con el caso 3D es, naturalmente, la ausencia del prefactor  $\frac{2}{3}$  en la definición de temperatura.

Para investigar el rol de las colisiones entre partículas en la generación del flujo radial de masa, encontramos conveniente definir la tasa de colisiones a tiempo  $t$ :

$$C(t) = \sum_{i=1}^N |\mathbf{v}_i(t + \delta) - \mathbf{v}_i(t)|, \quad (10.5)$$



**Figura 10.7:** Taza de colisiones en unidades arbitrarias (líneas llena gruesa) y velocidad radial media de las coronas 2 (líneas llena fina), 4 (líneas punteada), 6 (líneas rayada) y 8 (líneas rayadas punteadas) en función del tiempo. Para energías: (a)  $E = 1.8\epsilon$ , (b)  $E = 0.8\epsilon$ , (c)  $E = 0.3\epsilon$ , (d)  $E = -0.015\epsilon$ , (e)  $E = -0.3\epsilon$ , (f)  $E = -0.8\epsilon$ .

tomamos  $\delta = 0.0001t_0$ .

En la Fig. 10.7 mostramos la velocidad radial de las regiones 2, 4, 6 y 8 y la tasa de colisiones (línea llena gruesa) en función del tiempo para distintas energías:  $E = 1.8\epsilon$  Fig. 10.7 (a),  $E = 0.8\epsilon$  Fig. 10.7 (b),  $E = 0.3\epsilon$  Fig. 10.7 (c),  $E = -0.015\epsilon$  Fig. 10.7 (d),  $E = -0.3\epsilon$  Fig. 10.7 (e),  $E = -0.8\epsilon$  Fig. 10.7 (f). Podemos ver que  $C(t)$  alcanza su valor asintótico para un tiempo  $t \sim 12t_0$ . Para tiempos menores el proceso es fuertemente colisional y es precisamente durante este lapso de tiempo que el modo colectivo de expansión se desarrolla.

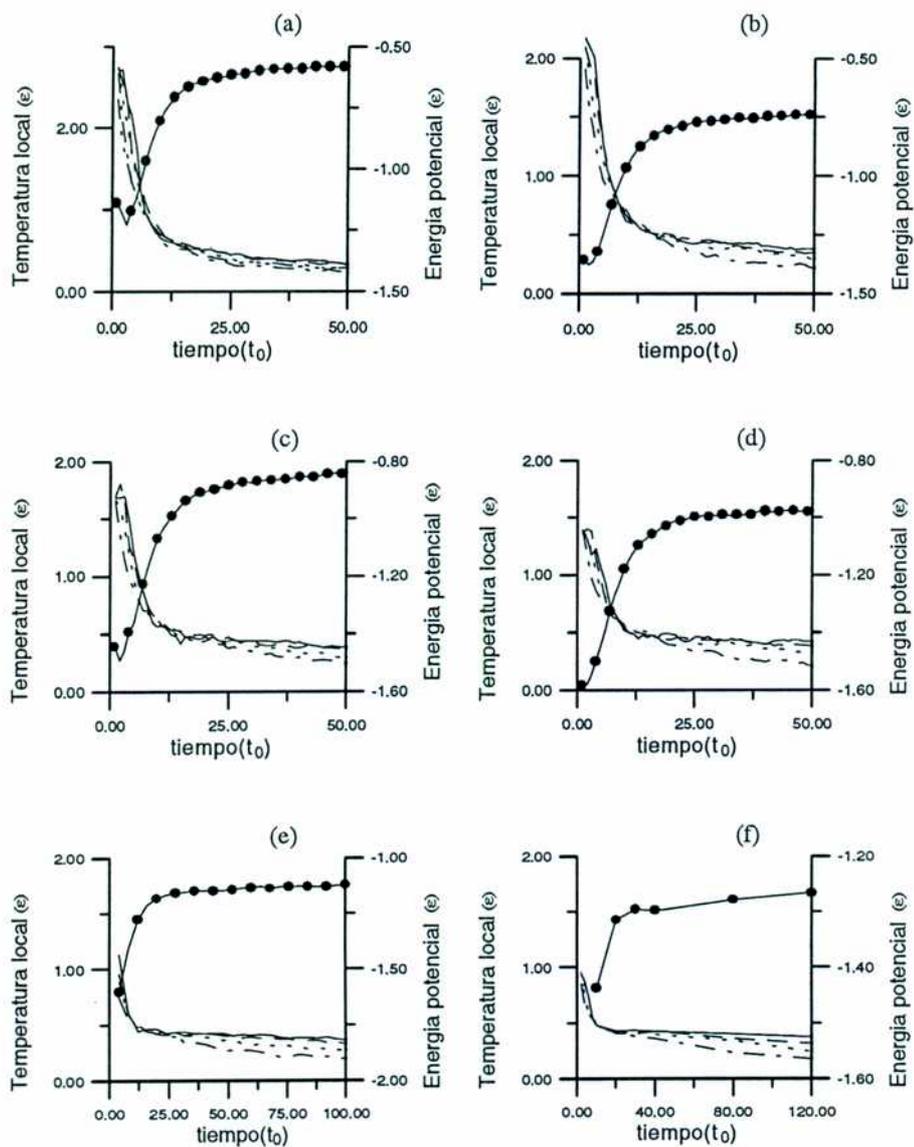
En la Fig. 10.8 mostramos la energía potencial por partícula del sistema en expansión junto con la temperatura local de las coronas 2 (líneas llena fina), 4 (líneas de puntos), 6 (líneas de rayas) y 8 (líneas de rayas y puntos). De la figura se puede ver un rápido enfriamiento del sistema durante la etapa inicial del proceso, mientras se crea el flujo de masa radial. Se puede ver que la temperatura local es bastante similar en las regiones centrales, y que disminuye lentamente a medida que nos alejamos del c.m. del sistema.

Definimos la temperatura local de las regiones centrales  $\langle T_{loc} \rangle$  como el promedio de las temperaturas locales de las regiones centrales hasta incluir aproximadamente 80 partículas [60].

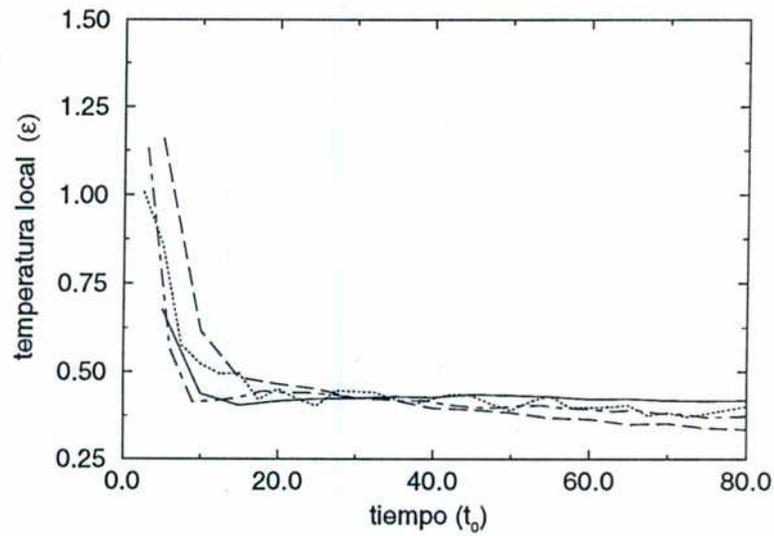
En la Fig. 10.9 mostramos  $\langle T_{loc} \rangle$  en función del tiempo para distintas condiciones iniciales, ver nota de figura para los detalles. En la Fig. 10.9 podemos ver el proceso la rápida disminución de la temperatura en la etapa inicial. A pesar que las condiciones iniciales difieren fuertemente  $1\epsilon \leq T_{loc}(t=0) \leq 4\epsilon$ , ver los espectros de masa en la Fig. 10.2, el sistema se enfría hasta que la temperatura local alcanza un valor entre  $0.35\epsilon$  y  $0.4\epsilon$  que es independiente de la excitación inicial. Mas aun, esta temperatura es igual a la interna de los clusters no muy pequeños, Fig. 10.6. Recordemos que el caso 3D presenta un comportamiento similar.

## 10.5 La curva calórica extendida

De forma similar a lo ya explicado, capítulo 8, calculamos la curva calórica para nuestras gotas bidimensionales, en el régimen de bajas energías. El método utilizado es el siguiente. Construimos una gota de muy baja energía cortándola del sistema periódico a muy baja temperatura y densidad cercana a la del estado fundamental de la gota. Cuando esta gota es evolucionada con la técnica de MD se puede ver que las partículas se arreglan formando una red triangular, el sistema no se fragmenta ni evapora partículas. Para estudiar la curva calórica, evolucionamos el sistema por un largo tiempo y



**Figura 10.8:** Energía potencial por partícula (círculos) y temperatura local de las coronas 2 (líneas llena fina), 4 (líneas a puntos), 6 (líneas a rayas) y 8 (líneas a rayas y puntos) en función del tiempo. Para energías: (a)  $E = 1.8\epsilon$ , (b)  $E = 0.8\epsilon$ , (c)  $E = 0.3\epsilon$ , (d)  $E = -0.015\epsilon$ , (e)  $E = -0.3\epsilon$ , (f)  $E = -0.8\epsilon$ .



**Figura 10.9:** Temperatura local promedio de las regiones centrales en función del tiempo para distintas energías. La línea llena denota  $\rho = 0.75(1/\sigma^2)$  y  $E = -1.1\epsilon$ , la línea punteada  $\rho = 0.75(1/\sigma^2)$  y  $E = -0.55\epsilon$ , la línea rayada  $\rho = 0.75(1/\sigma^2)$  y  $E = 0.3\epsilon$  y la rayada punteada  $\rho = 0.85(1/\sigma^2)$  y  $E = -0.3\epsilon$ .

luego reescalamos las velocidades de las partículas para incrementar la energía en la cantidad deseada y una nueva evolución isoenergética es llevada a cabo. Este procedimiento se repite hasta cubrir el rango de energía deseado. Si durante una evolución el sistema evapora una partícula, ésta no es tenida en cuenta para generar la próxima gota a una energía superior. De esta manera el sistema perderá partículas a medida que es calentado, solo consideramos gotas cuyo número de partículas fuera mayor a 90. Esta variación de la masa del sistema no es un problema serio ya que encontramos que la temperatura de la gota no varía apreciablemente si unas pocas partículas son evaporadas.

La temperatura de nuestra gota bidimensional aislada viene dada por:

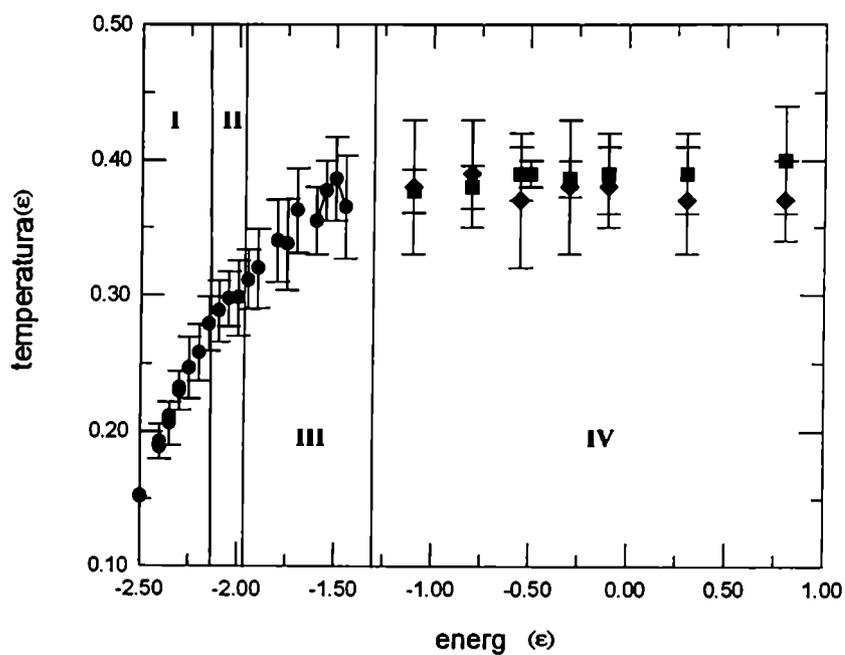
$$T = \left\langle \frac{1}{N(t) - 3/2} \sum_{i=1}^{N(t)} \frac{1}{2} m \mathbf{v}_i^2 \right\rangle_t, \quad (10.6)$$

donde  $\langle \rangle_t$  significa promedio temporal y  $N(t)$  es el número de partículas que a tiempo  $t$  no han sido evaporadas. El promedio temporal es hecho una vez que el sistema alcanza equilibrio, los primeros  $2 \times 10^4$  pasos de integración logran tal fin. El tiempo total de evolución de las gotas es  $t = 150t_0$  que es del orden de magnitud de los tiempos involucrados en el proceso de fragmentación.

De esta manera estudiamos energías en el rango  $-2.8\epsilon$  a  $-1.4\epsilon$ . La curva calórica obtenida está representada por los círculos de la Fig. 10.10. Se pueden identificar tres regiones, al igual que en el caso 3D. (I) Región cuasi-sólida, (II) región de la transición de fase cuasi-sólido cuasi-líquido y (III) región cuasi-líquida. No describiremos en detalle esta curva ya que es igual a la encontrada para el caso tridimensional. Es claro de la región de altas energías de la región (III) que la temperatura límite para el caso bidimensional es  $T_{lim} \sim 0.35\epsilon$ .

La extensión de la curva calórica al régimen de altas energías no presenta complicaciones. En la región (IV) mostramos la temperatura local de la región central  $\langle T_{loc} \rangle$ , Fig. 10. 9, promediada durante un tiempo de  $30t_0$  centrado en el tiempo de formación de fragmentos  $\tau_{ff}$  (cuadrados en la figura). Los rombos representan la temperatura interna promedio de los fragmentos de masa mayor a 15.

De la región (IV) de la Fig. 10.10 podemos ver que la temperatura interna de los fragmentos grandes es similar a la local de las regiones centrales, lo que indica que el sistema alcanza cierto grado de equilibrio local. Al igual que el caso 3D, la región de fragmentación aparece como una región de temperatura constante en la curva calórica [60, 69].



**Figura 10.10:** Curva calórica extendida para una gota de Lennard Jones bidimensional. Región I cuasi-sólido, Región II transición cuasi-sólido a cuasi-líquido, Región III cuasi-líquido, región IV fragmentación

## 10.6 Discusión

Los resultados de la explosión de gotas bidimensionales muestran un comportamiento cualitativamente igual al caso 3D.

Hemos mostrado que la curva calórica microcanónica puede ser extendida a las altas energías de fragmentación. En este caso representa la temperatura del sistema al momento de formación de fragmentos, aunque la temperatura varía muy poco para  $t > \tau_{ff}$ . El proceso de fragmentación aparece como un plateau en la curva calórica, cuyo valor es la temperatura límite (máxima temperatura que una gota líquida puede tener). Durante la etapa inicial del proceso de fragmentación el sistema, muy excitado, se enfría mientras crea el movimiento colectivo de expansión. Este proceso continúa hasta que la temperatura del sistema alcanza la límite y no necesita más relajación. Ésta es la razón por la cual la temperatura interna de los fragmentos no depende de la energía total del sistema, para  $t > \tau_{ff}$  los clusters estarán “lo más caliente que pueden”.

## Capítulo 11

# Discusión, conclusiones y perspectivas

En este último capítulo discutiremos los resultados e ideas que, a nuestro entender, son mas importantes del presente trabajo. Luego haremos una breve descripción de las perspectivas y caminos que nuestros resultados pueden abrir.

### 11.1 Diferentes etapas del proceso de fragmentación

Hemos logrado construir una descripción completa del proceso de fragmentación de gotas clásicas, en 2 y 3 dimensiones excitadas térmicamente.

Mediante la utilización de avanzados algoritmos de reconocimiento de fragmentos, hemos podido definir y calcular con precisión los tiempos de formación y emisión de fragmentos. Encontramos que los fragmentos asintóticos se forman, en el espacio de fases, mucho antes de ser emitidos, cuando el sistema es aun denso. Es natural, entonces, dividir el proceso de fragmentación en tres etapas bien diferenciadas. Durante la primer etapa, que llamamos “etapa de formación de fragmentos y flujo” el sistema genera un movimiento colectivo de expansión y, consecuentemente, se enfría. Una vez que se desarrolló el modo colectivo de expansión la fluctuación de densidad mas unida en el espacio de fases, detectadas por el método ECRA, alcanza estabilidad microscópica, lo que define el tiempo de formación de fragmentos  $\tau_{ff}$ . Nótese que, los tiempos característicos de formación de flujo son mas cortos que los de formación de fragmentos. Este hecho se debe a que la velocidad media radial es uno de los componentes mas importantes para determinar la fluctuación de densidad mas unida en el espacio de fases. Cuando termina

esta primera etapa, que va desde  $t = 0t_0$  hasta  $t = \tau_{ff}(E)$ , el sistema sigue su expansión a velocidad y temperatura prácticamente constante.

La segunda etapa va desde  $\tau_{ff}(E)$  hasta que la fluctuación mas unida en el espacio de fases, se separa en el espacio de coordenadas, conservando su estructura microscópica, y forma los fragmentos asintóticos. Durante esta etapa, que llamamos etapa de emisión de fragmentos, los fragmentos son estables, excepto por procesos de evaporación.

Por último, para  $t > \tau_{fe}(E)$  entramos en la etapa de expansión libre de los fragmentos. Como vimos en el capítulo 6 los fragmentos son gotas líquidas con una temperatura similar a la límite, por lo que siempre hay algo de evaporación.

## 11.2 La curva calórica extendida

En este trabajo hemos extendido la curva calórica de forma de abarcar el régimen de altas energías de evaporación y fragmentación. El régimen de bajas energías, donde los sistemas son auto-confinados, ha sido estudiado ampliamente por otros autores, ver [6, 7, 8]. La curva calórica microcanónica muestra un "loop" en la región de transición de fase cuasi-sólido cuasi-líquido [6]. En todos los estudios de transiciones de fase en gotas que tenemos conocimiento, se ha evitado tener en cuenta el fenómeno de evaporación, que se da fuertemente cuando la gota tiene energía alta. Es precisamente en las altas energías donde nosotros nos concentramos; no solo para estudiar evaporación sino, particularmente, multifragmentación.

Al tener en cuenta el proceso de evaporación para el cálculo de la curva calórica se ve que una gota líquida no puede ser calentada indefinidamente. Una vez alcanzada una energía dada, si se le entrega mas energía al sistema éste evapora partículas, pero no se calienta. Llamamos a la máxima temperatura que una gota líquida puede tener, temperatura límite  $T_{lim}$ .

Estudiar las propiedades térmicas del proceso de fragmentación no es una tarea fácil. Estudiamos diferentes temperaturas asociadas a distintos grados de libertad del sistema. Mencionemos en primer lugar a la temperatura interna de los fragmentos, relacionada con la energía cinética de los clusters medida desde su centro de masa. También estudiamos la temperatura local, asociada a las fluctuaciones de velocidad de las partículas sobre la velocidad radial colectiva. Por último la temperatura local de fragmentos, relacionada a la fluctuación de velocidad de los c.m. de los clusters sobre la expansión colectiva.

Los resultados que obtuvimos para las diferentes temperaturas son con-

sistentes con la hipótesis de equilibrio local. Si la distribución de velocidades fuera:

$$f(\mathbf{v}; \mathbf{r}) = \rho(\mathbf{r}) \left( \frac{m\beta(\mathbf{r})}{2\pi} \right)^{3/2} e^{\beta(\mathbf{r}) \frac{m}{2} (\mathbf{v} - \mathbf{v}_{rad}(\mathbf{r}))^2} \quad (11.1)$$

las tres temperaturas usadas en este trabajo darían resultados muy similares. Este es precisamente el caso. Este resultado es de mucha importancia como veremos abajo.

Estas definiciones de temperatura nos han permitido estudiar el proceso de creación de flujo radial de masa y enfriamiento inicial, descrito en la sección anterior. Este proceso de desexcitación continúa hasta que la temperatura, local o interna de los fragmentos, alcanza el valor de la temperatura límite de los fragmentos constituyentes, que es prácticamente independiente de la energía total del sistema. Cuando el sistema llega a esta temperatura límite no necesita más relajación. El sistema en expansión no se enfría más de lo necesario; por otro lado no es posible que, si el sistema está en equilibrio local, la temperatura sea superior a la límite. Por esta razón la temperatura interna de los fragmentos no depende de la excitación inicial, Fig. 6.1: los fragmentos resultantes de la fragmentación están "tan caliente como pueden", es decir tienen la temperatura límite. Por la misma razón los perfiles de temperatura local, Fig 7.4 (a), tampoco dependen de la energía total.

Estos resultados nos permiten extender el concepto de curva calórica al régimen de altas energías de fragmentación. En este caso definimos la curva calórica como la temperatura al momento de formación de fragmentos en función de la energía total. El fenómeno de fragmentación aparece, por lo dicho anteriormente, como una región de temperatura prácticamente constante, Fig. 8.2. Nótese que nuestra curva calórica extendida no variaría mucho si tomáramos la temperatura a otro tiempo mayor al  $\tau_{ff}$ , ya que la temperatura disminuye muy lentamente para  $t > \tau_{ff}$ .

Consideremos un sistema en el límite termodinámico, en la transición sólido-líquido, si se incrementa su energía, a presión constante, no resultará en un aumento de la temperatura sino en fusión. En el caso de fragmentación un aumento de la energía resultará en un incremento de la velocidad radial, y consecuentemente en la ruptura del sistema en un mayor número de fragmentos más pequeños, pero no en un aumento de la temperatura.

El hecho que el fenómeno de fragmentación se comporte térmicamente de la misma manera que una transición de fase y que tenga con ellas muchos puntos de contacto, como por ejemplo el espectro de masa, etc, no significa que lo sea en el sentido estricto de su definición. Por ejemplo la

fragmentación no presenta coexistencia de fases, salvo, posiblemente, para tiempos cortos: los fragmentos se alejan entre sí, sin posibilidad de interacción para tiempos mayores que el de emisión de fragmentos.

Para terminar con el análisis de la curva calórica, recordemos que en el caso de fragmentación nuclear diferentes formas de extraer la temperatura de experimentos dan comportamientos distintos. En particular el temperatura de emisión, relacionada a la excitación interna de los fragmentos, no muestra comportamiento tipo fase gaseosa, mientras que la temperatura de isótopos tiene una rama gaseosa. Ésta diferencia puede estar relacionada a que distintos grados de libertad se “congelan” a diferentes temperaturas, como ha sido propuesto en [1]. En nuestro caso de fragmentación de sistemas clásicos pudimos mostrar que tanto los grados internos de los clusters así como los relacionados a sus velocidades de c.m. dan temperaturas muy similares, y ninguna definición muestra comportamiento tipo fase gaseosa. Mas aun, dentro de nuestro modelo de fragmentación no es de esperarse un comportamiento tipo “fase gaseosa” en experimentos de fragmentación, debido a su relación con la temperatura límite de los fragmentos.

Por último mencionemos que el comportamiento del máximo exponente de Lyapunov local en función de la energía total del sistema confirma nuestros resultados para la curva calórica. El exponente presenta un máximo para  $E \sim -2\epsilon$ , ya que para esa energía tenemos un fragmento grande a la temperatura límite. Para energías menores, la temperatura baja y el exponente también. Para energías mayores la curva calórica muestra que la temperatura no aumenta, pero el sistema está formado por fragmentos mas chicos, por lo que el exponente también disminuye.

### 11.3 Criticalidad en fragmentación

Verificamos que la energía de excitación que resulta en un espectro de masa tipo ley de potencia,  $E = 0.5\epsilon$ , también presenta grandes fluctuaciones de energía potencial y del tamaño del mayor cluster. Por otro lado el análisis del gráfico de Campi, también marca a la fragmentación a  $E = 0.5\epsilon$  como posible fenómeno crítico. Este tipo de comportamiento es lo que uno esperaría si el sistema sobrelleva una transición de fase de 2<sup>do</sup> orden. De todas formas mas estudios son necesarios para confirmar o desechar esta hipótesis.

## 11.4 Perspectivas

Como dijimos anteriormente, entender el proceso de fragmentación en gotas de Lennard Jones no significa entender fragmentación en otro tipo de sistema, aunque, por supuesto, puede ayudar enormemente a hacerlo. Por este motivo sería muy interesante estudiar si el comportamiento presentado en esta tesis, en particular lo referido a la curva calórica, se cumple en otros sistemas. Dado que el potencial de Lennard-Jones es muy simple y general creemos que nuestros resultados son aplicables a muchos sistemas.

En este respecto podemos mencionar que se está estudiando fragmentación de núcleos de Ag, simulados mediante el potencial clásico desarrollado por Pandaharipande [36] y energía de Coulomb. El comportamiento de la curva calórica en el caso del potencial nuclear es muy similar al descrito en esta tesis [76].

Muy recientemente comenzamos el estudio de formación de fragmentos en superficies bidimensionales excitadas, como un modelo de juguete de "sputtering" por bombardeo con iones o ablación láser [77]. Resultados preliminares parecen indicar que la temperatura interna de los fragmentos en función de la masa es igual a la obtenida para el caso de fragmentación de gotas bidimensionales, i.e. los fragmentos que salen despedidos de la superficie excitada están "tan calientes como pueden". Por lo tanto el proceso de formación y emisión de fragmentos en superficies excitadas puede tener muchos puntos en común con el sistema descrito en la presente tesis.

# Bibliografía

- [1] J. Pochodzalla, *Prog. Part. Nucl. Phys.* **39**, 443 (1997).
- [2] R. Behrish and K. Wittmaack (eds.), *Sputtering by particle bombardment III* (Springer Verlag Berlin Heidelberg 1991).
- [3] Karsten Bromann et al., *Science* **5289**, 965 (1996).
- [4] Tamar Raz, U. Even y R. D. Levine *J. Chem. Phys.* **103**, 5394 (1995).
- [5] D. Beysens, X. Campi and E. Pefferkorn (eds.), *Proc. Workshop on Fragmentation Phenomena*, Les Houches 1993, (World Scientific, Singapore 1993).
- [6] Pierre Labastie and Robert L. Whetten, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 1567 (1990).
- [7] Hai-Ping Cheng, Xiulin Li, Robert L. Whetten and R. Stephen Berry, *Phys. Rev. A* **46**, 791 (1992).
- [8] Ralph E. Kunz and R. Stephen Berry, *Phys Rev. E* **49** 1895 (1994).
- [9] Radu Balescu, *Equilibrium and Non Equilibrium Statistical Mechanics*.
- [10] Martin Schmidt, Robert Kusche, Werner Kronmuller, Bernd von Issendorff, and Hellmut Haberland, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 99 (1997).
- [11] S. L. Lai, J. Y. Guo, V. Petrova, G. Ramanath, and L. H. Allen, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 99, (1996).
- [12] A. M. Ferrenberg y R. H. Swendsen, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 1195 (1989).
- [13] A. Vicentini, G. Jacucci and V. R. Pandharipande, *Phys. Rev. C* **31**, 1783 (1985); R. J. Lenk and V. R. Pandharipande, *Phys. Rev. C* **34**,

- 1783 (1986); T. J. Schlagel and V. R. Pandharipande, Phys. Rev. C **36**, 162 (1987).
- [14] J. W. Cahn, Acta Metalurgica, **9**, 795 (1961).
- [15] C. O. Dorso and A. Strachan, Phys. Rev. B **50**, 236 (1996).
- [16] P. J. Siemens, Nature **305**, 410 (1983).
- [17] J. J. Binney, N. J. Dowrick, A. J. Fisher y M. E. J. Newman, *The theory of critical phenomena, an introduction to renormalization group*, (Oxford University Press, Oxford, 1992).
- [18] Kerson Huang, *Statistical Mechanics* (John Wiley & Sons, New York, 1987).
- [19] E. A. Guggenheim J. Chem. Phys. **13**, 253 (1945)
- [20] V. Privman (ed), *Finite size scaling and numerical simulations in statistical systems* (World Scientific, Singapore, 1990).
- [21] M. E. Fisher, Physics (N.Y.) **3**, 255 (1967); Rep. Prog. Phys. **30**, 615 (1967); Proceedings of the International School of Physics, Enrico Fermi Course LI, Critical Phenomena, edited by M.S.Green (Academic Press, New York, 1971).
- [22] D. Stauffer, *Introduction to Percolation Theory*, (Ta & Francis, London Philadelphia, 1985).
- [23] D. J. Wales y I. Ohmine J. Chem. Phys **98**, 7245 (1993)
- [24] J. E. Finn et al., Phys. Rev. Lett. **49**, 1321 (1982).
- [25] A. S. Hirsch et al., Phys. Rev. C **29**, 508 (1984).
- [26] Donald L. Turcotte *Fractals and Chaos in Geology and Geophysics* (Cambridge University Press, Cambridge, 1997).
- [27] Oscar Sotolongo-Costa, Yamir Moreno-Vega, Juan J. Lloveras-González, y J. C. Antoranz, Phys. Rev. Lett. **76**, 42 (1996).
- [28] J. Hufner y D. Mukhopadhyay, Phys. Lett. B **173**, 373 (1986).
- [29] J. Aichelin y G. Berstch, Phys. Rev. C, **31** 255 (1985).
- [30] J. Stocker y W. Greiner, Phys. Rep., **137** 277 (1985).

- [31] F. Seville et al. *Nuc. Phys. A*, **501** 137 (1989).
- [32] J. Bondorf, A. S. Botvina, A. S. Iljinov, I. N. Mishustin y K. Sneppen *Phys. Rep.* **257**, 133 (1995).
- [33] D. H. E. Gross *Rep. Prog. Phys.* **53**, 605 (1990).
- [34] W. A. Friedman *Phys. Rev. C* **21**, 2125 (1988). *Phys. Rev. C* **42**, 667 (1990). *Phys. Rev. C* **60**, 2125 (1990).
- [35] C. O. Dorso y J. Randrup, *Phys. Lett. B*, **215**, 611 (1988); J. Aichelin *Phys. Rep.* **202**, 233 (1991); H. Feldmeier, *Nuc. Phys. A*, **515** 147 (1990).
- [36] R. J. Lenk, T. J. Schlagel y V. R. Pandharipande *Phys. Rev. C* **42**, 372 (1990)
- [37] D. Q. Lamb, J. M. Lattimer, C. J. Pethick and D. G. Ravenhall, *Phys. Rev. Lett.* **41**, 1623 (1978).
- [38] H. Jaqaman, A. Z. Mekjian y L. Zamick, *Phys. Rev. C* **27**, 2782 (1983); H. Jaqaman, A. Z. Mekjian y L. Zamick, *Phys. Rev. C* **29**, 2067 (1984);
- [39] M. L. Gilkes et al. *Phys. Rev. Lett.* **73** 1590 (1994).
- [40] J. A. Hauger et al., *Phys. Rev. Lett.* **77**, 235 (1996).
- [41] J. B. Elliot et al. *Phys. Rev. C* **49**, 3185 (1994).
- [42] J. B. Elliot et al. *Phys. Lett. B* **381** 35 (1996).
- [43] S. Albergo, S. Costa, E. Costanzo and A. Rubbino, *Nuovo Cimento A* **89**, 1 (1985).
- [44] J. Pochodzalla et al. *Phys. Rev. Lett* **75**, 1040, (1995).
- [45] A. Kolomietz, V. M. Kolomietz y S. Shlomo *Phys. Rev. C* **55**, 1376 (1997).
- [46] M. J. Huang et al. *Phys. Rev. Lett.* **78**, 1648 (1997).
- [47] Richard J. Borg y G. J. Dienes *The Physical Chemistry of Solids* (Academic Press, Boston, 1992).
- [48] W. H. Press, B. P. Flannery, S. A. Teukolsky and W. T. Vetterling, *Numerical Recipes, The Art of Scientific Computing* (Cambridge University Press, 1989).

- 
- [49] Daan Frenkel and Berend Smit, *Understanding Molecular Simulation, from algorithms to applications*, (Academic Press, San Diego, 1996).
- [50] M. P. Allen y D. J. Tildesley, *Computer Simulations of liquids*, (Oxford University Press, Oxford, 1987).
- [51] D. C. Rapaport, *Comp. Phys. Rep.* **9** 1 (1988).
- [52] Jean-Pierre Hansen and Loup Verlet, *Phys. Rev.* **184**, 151 (1969).
- [53] C. O. Dorso and J. Randrup *Phys. Lett B* **301**, 328 (1993).
- [54] P. J. M. Laarhoven y E. H. L. Aarts, *Simulated annealing: theory and applications*, (Reidl, Dordercht, 1987).
- [55] C. O. Dorso and J. Aichelin, *Phys. Lett. B* **345**, 197 (1995); C. O. Dorso and P. Balonga *Phys. Rev. C* **50**, 991 (1994).
- [56] T. Reposeur, V. de la Mota, F. Sébille y C. O. Dorso, *Z. Phys. A* **357**, 79 (1996).
- [57] N. Metropolis, A. W. Rosenbluth, M. N. Rosenbluth, A. N. Teller y E. Teller, *J. Chem. Phys.* **21**, 1087 (1953).
- [58] A. Strachan y C. O. Dorso, (*Phys. Rev. C* en prensa).
- [59] A. Strachan and C. O. Dorso, *Phys. Rev. C* **56**, 995 (1997).
- [60] A. Strachan and C. O. Dorso, *Phys. Rev. C* **58**, R632 (1998).
- [61] B. L. Holian y D. E. Grady, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 1355 (1988).
- [62] J. P. Bondorf, O. Friedrichsen, D. Idier and I. N. Mishus in "Critical Phenomena and Collective Observables", S. Costa, S. Albergo, A. Insolla and C. Tuvè (eds.), World Scientific, Singapore, 1996.
- [63] Pablo Balenzuela, Tesis de Licenciatura, Depto. Física, FCEyN, Universidad de Buenos Aires, 1998.
- [64] C. O. Dorso, V. C. Latora y A. Bonasera, (enviado a *Phys. Rev. C*).
- [65] Aldo Bonasera, Vito Latora and Andrea Rapisarda, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 3434 (1995).
- [66] Saroj K. Nayak, Ramakrishna Ramaswamy y Charusita Chakravarty, *Phys. Rev. C* **51**, 3376 (1995).

- 
- [67] V.Mehra y R.Ramaswamy, Phys. Rev. E **56**, 2508 (1997).
- [68] H. D. Meyer, J. Chem. Phys. **84**, 3147 (1986).
- [69] A. Strachan y C. O. Dorso, Physica A, **257**, 526 (1998).
- [70] Pablo Balenzuela, A. Strachan y C. O. Dorso, (en preparación).
- [71] X. Campi, J. Phys. A **19** L917 (1986).
- [72] M. Belkacem, V. Latora y A. Bonasera, Phys. Rev. C **52**, 271 (1995)
- [73] X. Campi, Phys. Lett. B **208**, 351 (1988).
- [74] A. Starchan and C. O. Dorso, Phys. Rev. C **55**, 775 (1997).
- [75] F. F. Abraham, Adv. Phys. **35**, 1 (1986).
- [76] Ariel Chernomeretz, J. López, C. O. Dorso (en preparación).
- [77] Marisa M. Kalemkariam, C. O. Dorso y A. Strachan (en preparación).

## Apéndice A

# Termómetros para núcleos en expansión

Medir la temperatura en experimentos de multifragmentación nuclear es una tarea muy difícil. En el ensamble microcanónico la temperatura está relacionada al número de estados accesibles por el sistema, que es una cantidad imposible de medir. Por lo tanto la temperatura debe ser extraída de los pocos observables medibles a través de algún modelo. En este Apéndice explicaremos brevemente una derivación de la llamada “temperatura de isótopos”.

### A.1 Temperatura de isótopos

Esta manera de calcular la temperatura de sistemas nucleares que sobrellevan fragmentación fue propuesta por S. Albergo, S. Costa, E. Costanzo y A. Rubbino [43]. Y es precisamente esta derivación que seguiremos aquí. Para más detalles sobre el método y algunas correcciones ver [1, 45].

Albergo y colaboradores consideran que, al momento de formación de fragmentos, el sistema alcanzó equilibrio entre los nucleones libres y los fragmentos compuestos en un volumen de interacción  $V$  y a una temperatura  $T$ . La densidad  $\rho(A, Z)$  de un fragmento con  $Z$  protones y  $A - Z$  neutrones se puede expresar, con argumentos de mecánica estadística como:

$$\rho(A, Z) = \frac{A^{3/2}}{\lambda_T^3} \omega(A, Z) \exp(\mu(A, Z)/T), \quad (\text{A.1})$$

donde  $\lambda_T = h/(2\pi mT)^{1/2}$  es la longitud de onda térmica de un nucleón ( $m$  es la masa de un nucleón).  $T$  es la temperatura, expresada en MeV.  $\mu(A, Z)$

es el potencial químico del fragmento  $(A, Z)$ . Y

$$\omega(A, Z) = \sum_i (2s_i(A, Z) + 1) \exp(-E_i(A, Z)/T) \quad (\text{A.2})$$

es la función de partición interna del fragmento  $(A, Z)$ , donde  $s_i(A, Z)$  es el momento angular total del estado fundamental y excitados y  $E_i(A, Z)$  es la energía de los estados, medida desde el estado fundamental.

Se utiliza la estadística de Maxwell-Boltzmann ya que para temperatura mayor que unos MeV, y para densidad menor que  $1/2\rho_0$ , siendo  $\rho_0$  la densidad nuclear normal, los efectos de la estadística cuántica son despreciables.

Luego se impone la condición de equilibrio químico:

$$\mu(A, Z) = Z\mu_p + (A - Z)\mu_n + B(A, Z), \quad (\text{A.3})$$

donde  $B(A, Z)$  es la energía de unión del cluster  $(A, Z)$  y  $\mu_p$  y  $\mu_n$  son los potenciales químicos de los protones y neutrones libres respectivamente.

Ahora podemos escribir la ec. A.1 como:

$$\rho(A, Z) = \frac{A^{3/2} \lambda_T^{3(A-1)} \omega(A, Z)}{(2s_p + 1)^Z (2s_n + 1)^{A-Z}} \rho_p^Z \rho_n^{A-Z} \exp(B(A, Z)/T), \quad (\text{A.4})$$

donde  $\rho_p$ ,  $\rho_n$  y  $\rho(A, Z)$  son las densidades de protones, neutrones y fragmentos  $(A, Z)$  contenidos en el mismo volumen  $V$  y a la misma temperatura  $T$ .

En base es estos argumentos termodinámicos el cociente entre las poblaciones experimentales de dos fragmentos  $Y(A, Z)/Y(A', Z')$  es:

$$Y(A, Z)/Y(A', Z') = \left(\frac{A}{A'}\right)^{3/2} \left(\frac{\lambda_T^3}{2}\right)^{A-A'} \frac{\omega(A, Z)}{\omega(A', Z')} \rho_p^Z \rho_n^{A-Z} \exp((B(A, Z) - B(A', Z'))/T) \quad (\text{A.5})$$

Examinando la ec. A.5 podemos ver que la temperatura puede ser evaluada via dobles cocientes de dos pares de isótopos  $(A, Z)/(A - a, Z - z)$  y  $(A', Z')/(A' - a, Z' - z)$ :

$$\begin{aligned} R &= \frac{Y(A, Z)/Y(A-a, Z-z)}{Y(A', Z')/Y(A'-a, Z'-z)} \\ &= \left(\frac{A/(A-a)}{A'/(A'-a)}\right)^{3/2} \frac{(2s(A, Z)+1)/(2s(A-a, Z-z)+1)}{(2s(A', Z')+1)/(2s(A'-a, Z'-z)+1)} \\ &\quad \exp \frac{B(A, Z) - B(A-a, Z-z) - (B(A', Z') - B(A'-a, Z'-z))}{T} \end{aligned} \quad (\text{A.6})$$

donde donde la suma involucrada en la función de partición de partición  $\omega(A, Z)$  solo se toma el termino del estado fundamental:  $2s(A, Z) + 1$ , donde  $s(A, Z)$  es el spin del estado fundamental.

Es claro que una buena escala de temperatura se obtiene si el cociente  $R$  es muy sensible a variaciones de temperatura y las poblaciones de los fragmentos son medibles en un amplio rango de energías de excitación. Valores particularmente buenos se obtienen si se utiliza el cociente  ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$  [1]. Si tomamos el otro cociente como  ${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$ , obtenemos la siguiente temperatura en MeV:

$$T_{\text{HeLi}} = 13.33 / \ln\left(2.18 \frac{Y_{6\text{Li}}/Y_{7\text{Li}}}{Y_{3\text{He}}/Y_{4\text{He}}}\right). \quad (\text{A.7})$$

Es importante aclarar que estos resultados son válidos para sistemas en equilibrio, y no se tiene en cuenta el grado colectivo de expansión, que es particularmente importante en fragmentación para altas energías de excitación.

# Agradecimientos

Muchas personas han colaborado, en forma consciente o no, con esta tesis. No es necesario aclarar que la mayoría de ellos negarán cualquier relación con el presente trabajo.

La guía, consejo e incentivo permanentes que recibí de Claudio Dorso durante los últimos años ha tomado las mas diversas formas. Aclaremos ya mismo que, muchas veces, este intercambio intelectual, toma la forma evidente y concreta de gritos, amenazas, etc. Sin embargo, otras veces la interacción es mas sutil y, probablemente, mas profunda. Disfruté particularmente de la primera forma de comunicación. A Dorso todo mi agradecimiento, admiración y amistad.

Quiero agradecer a Jai, Ale, Gui y Cesar, a los que tantas veces torturé contándoles y discutiendo sobre mi trabajo, y que me han ayudado mucho, y en muchas formas. En esto va mi agradecimiento a Mariana, Lauri (por las milanesas) y Sil.

Quiero agradecer también a la gente del Departamento de Física. En esto va un agradecimiento particular a Ariel y Balen.

También quiero agradecer, aunque no se bien el motivo, a Diego, Carlitos, Carlos, Gaby y Sil y Marieya.

Gracias a mis viejos, Eze, Cons y el Donci que siempre me ayudaron en esto.

Quiero agradecer muy especialmente a Marisol, por todo...

