

ESTIMACIÓN TEÓRICA DEL MOMENTO MAGNÉTICO EN FONONES
QUIRALES

JUAN DAVID LAMUS RINCÓN

UNIVERSIDAD INDUSTRIAL DE SANTANDER
FACULTAD DE CIENCIAS BÁSICAS
ESCUELA DE FÍSICA
GRUPO DE INVESTIGACIÓN: FÍSICA COMPUTACIONAL EN MATERIA
CONDENSADA (FICOMACO)
BUCARAMANGA

2026

ESTIMACIÓN TEÓRICA DEL MOMENTO MAGNÉTICO EN FONONES
QUIRALES

JUAN DAVID LAMUS RINCÓN

Trabajo de Grado para optar al título de
Físico

Director

Prof. Andrés Camilo García Castro, Ph.D.

UNIVERSIDAD INDUSTRIAL DE SANTANDER
FACULTAD DE CIENCIAS BÁSICAS
ESCUELA DE FÍSICA
GRUPO DE INVESTIGACIÓN: FÍSICA COMPUTACIONAL EN MATERIA
CONDENSADA (FICOMACO)
BUCARAMANGA
2026

*"Todos intentamos que se nos recuerde por nuestras contribuciones,
pero es más fácil que se nos recuerde por el corazón."*

A mi tía Ligia y mis tíos Joaquín y Roso.

AGRADECIMIENTOS

Estas líneas son para las personas que me acompañaron en este proceso. A Dios, por el don de la vida y por el regalo de mi familia. A mi madre, María del Carmen, por ese amor incondicional que las palabras no alcanzan a explicar. A mi padre, José Miguel, por su apoyo permanente y por todo el cariño que le guardo en el alma. A mis hermanos, Miguelito, Andrés y Jenny, por aguantarme tanto y enseñarme lo que significa la resiliencia. A toda mi familia, por ser el cimiento de lo que soy hoy.

A mis amigos de la universidad, con los que compartí innumerables tertulias sobre física, vida y política. Al grupo de investigación FICOMACO, que me abrió las puertas y me enseñó lo bonito y duro que es investigar. A mi director, el Profesor Andrés Camilo, de quien aprendí y sigo aprendiendo, por su paciencia inagotable y su amor por enseñar; le agradezco infinitamente por compartir su conocimiento conmigo.

Finalmente, quiero dedicarme unas palabras a mí. Por no rendirme ante la duda. Por entender, como decía Chespirito, que el verdadero valor está en enfrentar el miedo; que aun sabiéndonos frágiles o torpes, lo importante es atreverse a fallar y volver a levantarse.

CONTENIDO

	pág.
INTRODUCCIÓN	16
1. FUNDAMENTO TEÓRICO/CONCEPTOS FUNDAMENTALES	21
1.1. Dinámica de los fonones	21
1.2. Momento angular de los fonones	24
1.3. Magnetismo itinerante	26
1.4. Análisis de las cargas atómicas	28
1.4.1. Cargas atómicas de Bader	30
1.4.2. Cargas atómicas DDEC6	31
2. SOBRE EL MAGNETISMO EN LOS FONONES QUIRALES	32
2.1. Momento angular de los fonones en sistemas quirales	32
2.2. Densidad de estados resuelto por momento angular	34
2.3. Momento magnético de los fonones quirales	36
2.4. Aspectos computacionales: Flujo para la estimación del momento magnético	38
3. ESTIMACIÓN DEL MOMENTO MAGNÉTICO DE LOS FONONES QUIRALES	42
3.1. Detalles computacionales	42
3.2. Estimación del momento magnético en $BaTiO_3$ (SG.221 y SG.99)	43
3.2.1. Momento angular fonónico, pamDOS y estimación del momento magnético fonónico	45

3.3. Estimación del momento magnético en la familia MSi_2 , $M = V, Nb$, y Ta (SG. 180 y SG.181)	48
3.3.1. Cálculos: Momento angular fonónico, pamDOS y momento magnético fonónico	49
3.4. Estimación del momento magnético bajo un campo magnético	55
3.4.1. Acoplamiento de Zeeman y desdoblamiento del pamDOS	55
3.4.2. Definición del momento magnético fonónico bajo campo magnético	56
3.5. Contraste con modelos teóricos y resultados previos	59
4. RECOMENDACIONES Y TRABAJO FUTURO	62
5. CONCLUSIONES	63
BIBLIOGRAFÍA	65
ANEXOS	74

LISTA DE FIGURAS

	pág.
Figura 1. (a) Descripción esquemática de la grilla usada para encontrar el volumen de Bader, la línea roja es la frontera entre volúmenes. ¹ (b) Volúmenes de Bader para la molécula de H_2O .	30
Figura 2. Descripción esquemática del pamDOS. En este caso, se obtienen contribuciones para l_x , l_y , y l_z en las cuales las direcciones up y down se denotan con colores rojo y azul, respectivamente. Para el caso de la figura, existe un desfase entre ambas como puede ocurrir en la presencia de campo magnético aplicado.	35
Figura 3. Flujo de trabajo para la estimación del momento magnético fonónico.	40
Figura 4. Celda unitaria $BaTiO_3$: (a) fase cúbica centrosimétrica (b) fase ferroeléctrica tetragonal. El vector de polarización se muestra con la flecha negra. Ba, Ti y O siguen los colores verde, azul y rojo respectivamente.	44
Figura 5. Relación de dispersión resuelta por PAM en el $BaTiO_3$ para eléctrico: (a) Proyección del momento angular en las tres direcciones cartesianas sobre las bandas. (b) Primera zona de Brillouin con los puntos y líneas de alta simetría. En la anterior figura, la barra de colores denota las direcciones up- y down- para el momento angular fonónico.	45

¹ W Tang, E Sanville y G Henkelman. "A grid-based Bader analysis algorithm without lattice bias". En: *Journal of Physics: Condensed Matter* 21.8 (2009), pág. 084204. DOI: 10.1088/0953-8984/21/8/084204.

- Figura 6. Contraste del DOS vs pamDOS en las tres direcciones para el $BaTiO_3$ - paraeléctrico. En el anterior, el DOS esta denotado con color negro mientras que el pam-DOS esta en colores azul, rojo, y verde para las direcciones x , y , y z , respectivamente. 46
- Figura 7. Relación de dispersión resuelta por PAM en el $BaTiO_3$ - ferroeléctrico: (a) Proyección del momento angular en las tres direcciones sobre las bandas. (b) Primera zona de Brillouin, líneas y puntos de alta simetría. 46
- Figura 8. Contraste del DOS vs pamDOS en las tres direcciones para el $BaTiO_3$ - ferroeléctrico. Las línea continua correspondiente a estados levógiros y la línea discontinua para estados dextrógiros. 47
- Figura 9. Estimación del momento magnético en el $BaTiO_3$:(a) Comparación del momento magnético estimado en las dos fases (b) Tabla 1. Valores del momento magnético con NECs DDC6. 48
- Figura 10. Familia MSi_2 SMT: (a) Vista superior de celda unitaria. (b), (c) Cadena formada por los silicios y MT en el SG. 180. y SG. 181 respectivamente. 49
- Figura 11. Relación de dispersión resuelta por PAM en el VSi_2 : (a) Para SG. 180. (b) Para SG. 181. (c) Primera zona de Brillouin, líneas y puntos de alta simetría. 50
- Figura 12. Contraste del DOS vs pamDOS en las tres direcciones para el VSi_2 - SG. 180. Las línea continua correspondiente a estados levógiros y la línea discontinua para estados dextrógiros. 51
- Figura 13. Comparación del pamDOS en las tres direcciones para el VSi_2 : SG. 180 en línea continua y SG. 181 en línea punteada 51
- Figura 14. Estimación del momento magnético en el VSi_2 :(a) Comparación del momento magnético estimado en los SG. 180 y 181 (b) Tabla 2. Valores del momento magnético con NECs y DDC6. 52

Figura 15. NAC obtenidas mediante los métodos de partición electrónica: En los sistemas $MTSi_2$ y $BaTiO_3$	53
Figura 16. Estimación del momento magnético en la familia MSi_2 :(a) Comparación del momento magnético estimado en el SG. 180 (b) Tabla 3. Valores del momento magnético μ_N con NECs Bader y DDC6.	54
Figura 17. Figura esquemática que ilustra el comportamiento del pamDOS en presencia de un campo magnético externo aplicado.	56
Figura 18. El campo magnético externo aplicado en la dirección z induce un desdoblamiento en frecuencia de la componente z del pamDOS, mientras que las componentes x e y permanecen inalteradas.	57
Figura 19. Momento magnético fonónico calculado para el VSi_2 en función de la temperatura.	58
Figura 20. Momento magnético reportado: (a) Dicalcogenuros de metales de transición monocapa utilizando las cargas efectivas de Born (BEC) y las cargas formales (FC) ² (b) Estructura de bandas de fonones coloreada según la magnitud del momento magnético de los fonones. ³	59
Figura 21. (a), (b) Densidad de estados parcial para los sistemas $MTSi_2$ y $BaTiO_3$ respectivamente. (c) Tabla 5. Pesos asignados para los sistemas	79
Figura 22. Relación de dispersión resuelta por PAM en el $TaSi_2$ SG. 180	80
Figura 23. Relación de dispersión resuelta por PAM en el $NbSi_2$ SG. 180	80
Figura 24. Contraste del pamDOS en la Familia MSi_2 SG. 180 y el $BaTiO_3$ SG. 221	81

² Dominik M. Juraschek y Nicola A. Spaldin. "Orbital magnetic moments of phonons". En: *Phys. Rev. Mater.* 3 (6 2019), pág. 064405. DOI: 10.1103/PhysRevMaterials.3.064405.

³ Hiroki Ueda et al. "Chiral phonons in quartz probed by X-rays". En: *Nature* 618.7967 (2023), págs. 946-950. DOI: 10.1038/s41586-023-06016-5.

LISTA DE TABLAS

	pág.
Tabla 1. Valores del momentos magnéticos para el BaTiO ₃ en las fases paraélectrica y ferroeléctrica con las cargas DDEC6 1.	48
Tabla 2. Valores del momentos magnéticos para el VSi_2 en SG. 180 y 181 con las cargas DDEC6 2.	52
Tabla 3. Valores del momentos magnéticos para la familia MSi_2 en SG. 180 con las cargas Bader y DDEC6 5.	54
Tabla 4. Grupos espaciales quirales.	78
Tabla 5. Pesos asignados para cada contribución de las especies atómicas en los sistemas $MTSi_2$ y $BaTiO_3$ 5.	79

LISTA DE ANEXOS

	pág.
Anexo A. Hamiltoniano efectivo de los fonones	74
Anexo B. Grupos espaciales quirales	77
Anexo C. Pesos por especie atómica	79
Anexo D. Material complementario para los sistemas $MTSi_2$	80

LISTA DE ACRÓNIMOS

- DFT** Density Functional Theory
- VASP** Vienna Ab-initio Simulation Package
- BOA** Born-Oppenheimer Approximation
- DDEC** Density Derived Electrostatic and Chemical
- NACs** Net Atomic Charges
- pDOS** Partial Density Of States
- FICOMACO** Física Computacional de la Materia Condensada
- UIS** Universidad Industrial de Santander.
- PAM** Phonon Angular Momentum
- pamDOS** Phonon Angular Momentum Density of States
- DOS** Density Of State
- PAW** Projector Augmented Wave
- GGA** Generalized Gradient Approximation
- PBE** Perdew–Burke–Ernzerhof
- DFPT** Density Functional Perturbation Theory
- SMT** Siliciuros de Metales de Transición

RESUMEN

TÍTULO: ESTIMACIÓN DEL MOMENTO MAGNÉTICO EN FONONES QUIRALES *

AUTOR: JUAN DAVID LAMUS RINCÓN **

PALABRAS CLAVE: MAGNETISMO FONÓNICO; FONONES QUIRALES; MOMENTO ANGULAR FONÓNICO; MATERIALES QUIRALES.

DESCRIPCIÓN:

Los fonones, como una de las piedras angulares de la física de la materia condensada, han sido ampliamente estudiados y se asocian con cuasipartículas que describen vibraciones atómicas alrededor de sus posiciones de equilibrio. Desarrollos recientes han demostrado que estas vibraciones pueden presentar desplazamientos no lineales que implican movimientos rotacionales, dando lugar a un momento angular distinto de cero. Bajo una analogía con la teoría electrónica, estos fonones pueden generar momentos magnéticos orbitales asociados a dicho momento angular. En este trabajo se realiza una estimación teórica del momento magnético fonónico en materiales quirales. En estos sistemas, las simetrías de inversión temporal e inversión espacial desempeñan un papel fundamental en la generación y cancelación del momento magnético fonónico. Dado que este fenómeno depende críticamente de estas simetrías, se abre la posibilidad de controlar los momentos magnéticos fonónicos como un nuevo grado de libertad en sistemas cristalinos.

Se propone un enfoque novedoso para estimar el momento magnético del fonón asumiendo un mar bosónico, análogo al gas fermiónico metálico en el caso de los electrones. Este marco permite una comparación directa con métodos previamente desarrollados en la literatura. La metodología se basa en el cálculo del momento angular para cada banda fonónica, así como en la determinación de la densidad de estados resuelta por momento angular en materiales quirales. Estos cálculos se llevaron a cabo mediante una versión extendida de librería de software libre PHONOPY, desarrollada en el grupo de investigación *FICOMACO* de la Universidad Industrial de Santander. Los resultados muestran que, a pesar de los esfuerzos por refinar la estimación del momento magnético fonónico mediante este enfoque, persiste una discrepancia significativa entre los valores obtenidos teórica-

* Trabajo de grado

** Facultad de Ciencias Básicas. Escuela de Física, Física computacional en Materia Condensada. Director: Andrés Camilo García Castro, Ph.D.

mente y aquellos reportados experimentalmente. No obstante, esta metodología desarrollada aporta nuevas rutas de entendimiento del momento magnético fonónico en sistemas quirales.

ABSTRACT

TITLE: ESTIMATION OF MAGNETIC MOMENT IN CHIRAL PHONONS *

AUTHOR: JUAN DAVID LAMUS RINCÓN **

KEYWORDS: PHONONIC MAGNETISM; CHIRAL PHONONS; PHONON ANGULAR MOMENTUM; CHIRAL MATERIALS.

DESCRIPTION:

Phonons, as one of the cornerstones of condensed matter physics, have been extensively studied and are associated with quasiparticles describing atomic vibrations around their equilibrium positions. Recent developments have shown that these vibrations may exhibit non-linear displacements involving rotational motion, giving rise to a non-zero angular momentum. By analogy with electronic theory, such phonons can generate orbital magnetic moments associated with their angular momentum. In this work, a theoretical estimation of the phonon-induced magnetic moment in chiral materials is carried out. In these systems, time-reversal and spatial inversion symmetries play a fundamental role in the generation and cancellation of the phononic magnetic moment. Since this phenomenon critically depends on these symmetries, it opens the possibility of controlling phononic magnetic moments as a new degree of freedom in crystalline systems.

A novel approach is proposed to estimate the magnetic moment of the phonon assuming a bosonic sea, analogous to the metallic fermionic gas in the case of electrons in magnetically active crystals. This framework enables a direct comparison with previously developed methods in the literature. The methodology is based on the calculation of the angular momentum for each phonon band, as well as on the determination of the angular-momentum-resolved density of states in chiral materials. These calculations were performed using an extended version of the free software library PHONOPY, developed by the *FICOMACO* research group at the Industrial University of Santander. The results indicate that, despite efforts to refine the estimation of the phononic magnetic moment using this approach, a significant discrepancy persists between theoretical predictions and experimentally reported values. Nevertheless, this methodology provides new avenues for understanding the phonon magnetic moment in chiral systems.

* B. Sc. Thesis

** Faculty of Sciences. School of Physics. Advisor: Andrés Camilo García Castro, Ph.D

INTRODUCCIÓN

La cristalografía se ocupa del estudio de las propiedades estáticas de los cristales, describiendo características fundamentales como su simetría.¹ En la física del estado sólido se sigue una línea similar en lo que respecta a las propiedades electrónicas elementales.² Este modelo, que considera únicamente las posiciones promedio de los átomos, resulta adecuado para explicar diversas propiedades de los materiales, entre ellas las químicas, la dureza, la morfología cristalina, las propiedades ópticas, la estructura electrónica y las propiedades eléctricas. Sin embargo, existen propiedades que no se pueden explicar con este modelo. En realidad, los átomos que constituyen la materia no permanecen estáticos, sino que vibran alrededor de sus posiciones de equilibrio debido a las fuerzas interatómicas.³ Siempre que los desplazamientos atómicos desde las posiciones medias sean pequeños en comparación con las distancias interatómicas, el comportamiento dinámico del sólido está determinado principalmente por movimientos bien definidos.⁴ Estas excitaciones elementales se caracterizan por vectores y frecuencias propias, y pueden interpretarse, en el marco de la mecánica clásica, como ondas en el sólido, y en el de la mecánica cuántica, como cuasipartículas cuantizadas denominadas fonones.⁵ Si bien no son partículas reales, constituyen una construcción matemática que permite describir el carácter colectivo de estas vibraciones. No obstante, los fonones median diferentes fenómenos en la materia condensada y permiten describir propiedades más allá del modelo

¹ H Fuess et al. "Complete Printed Set of International Tables for Crystallography". En: *Complete Printed Set of International Tables for Crystallography* (2007). DOI: <https://doi.org/10.1107/97809553602060000001>.

² C. Kittel. *Introduction to Solid State Physics*. Wiley, 2004.

³ Martin T. Dove. *Introduction to lattice dynamics*. Vol. 4. Cambridge Topics in Mineral Physics and Chemistry. Cambridge, United Kingdom: Cambridge University Press, nov. de 1993, págs. xvii + 258. DOI: <https://doi.org/10.1017/CB09780511619885>.

⁴ G. Eckold. "Phonons". En: *International Tables for Crystallography Volume D: Physical properties of crystals*. Ed. por A. Authier. Dordrecht: Springer Netherlands, 2003, págs. 266-293. DOI: 10.1107/97809553602060000638.

⁵ Efthimios Kaxiras. *Atomic and Electronic Structure of Solids*. Cambridge University Press, 2010. DOI: 10.1017/CB09780511755545; Dove, ver n. 3.

de red estática tales como la capacidad calorífica,⁶ el transporte de calor y sonido,⁷ la conductividad electrónica y la superconductividad⁸ por mencionar algunos. En consecuencia, la investigación teórica y experimental de los fonones resulta esencial en el estudio del estado sólido y la materia condensada.

En los últimos años, uno de los campos emergentes asociados al estudio de los fonones (la fonónica), ha cobrado gran relevancia. Su objetivo principal es controlar la dinámica de los fonones y emplearlos como portadores de información.⁹ Entre los avances más recientes en este ámbito se encuentra el descubrimiento del efecto Hall de los fonones.¹⁰ Análogo a lo que sucede en el efecto Hall para los electrones, en los fonones, debido a un campo magnético externo aplicado en dirección perpendicular a una corriente de calor, se produce un gradiente de temperatura perpendicular tanto al campo magnético como a la corriente.

Sin embargo, contrario al caso de los electrones los fonones son cuasipartículas que no poseen carga ni espín, y no se acoplan directamente al campo magnético mediante la fuerza de Lorentz, como ocurren en los electrones.¹¹ Esto ha motivado el desarrollo de diversos trabajos teóricos y

⁶ R. Vali. "Phonons and heat capacity of LaAlO₃". En: *Computational Materials Science* 44.2 (2008), págs. 779-782. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.commatsci.2008.05.029>.

⁷ Martin Maldovan. "Sound and heat revolutions in phononics". En: *Nature* 503.7475 (2013), págs. 209-217. DOI: <https://doi.org/10.1038/nature12608>.

⁸ John Bardeen. "Electron-phonon interactions and superconductivity". En: *Science* 181.4106 (1973), págs. 1209-1214. DOI: <https://doi.org/10.1126/science.181.4106.1209>.

⁹ Thomas Vasileiadis et al. "Progress and perspectives on phononic crystals". En: *Journal of Applied Physics* 129.16 (abr. de 2021), pág. 160901. DOI: 10.1063/5.0042337.

¹⁰ C. Strohm, G. L. J. A. Rikken y P. Wyder. "Phenomenological Evidence for the Phonon Hall Effect". En: *Phys. Rev. Lett.* 95 (15 2005), pág. 155901. DOI: 10.1103/PhysRevLett.95.155901.

¹¹ Edwin H Hall et al. "On a new action of the magnet on electric currents". En: *American Journal of Mathematics* 2.3 (1879), págs. 287-292. DOI: <https://doi.org/10.2307/2369245>; Robert Karplus y JM Luttinger. "Hall effect in ferromagnetics". En: *Physical Review* 95.5 (1954), pág. 1154. DOI: 10.1103/PhysRev.95.1154.

experimentales para comprender mejor la naturaleza de este efecto.¹²

Entre estas propuestas destaca la hipótesis de que los fonones pueden poseer momento angular, lo que les permitiría interactuar con campos externos.¹³ En este sentido, se entiende que, además de sus vibraciones lineales, los fonones pueden presentar movimientos de rotación alrededor de sus posiciones de equilibrio. A estos fonones con momento angular se les ha denominado fonones quirales.¹⁴ No obstante, debido al desarrollo reciente y acelerado de este campo, la rigurosidad y el alcance preciso de esta definición continúan siendo objeto de debate en la literatura actual.¹⁵

El estudio de estos fonones con momento angular adquiere especial relevancia al considerar su analogía con los fenómenos magnéticos clásicos. Desde los primeros registros de dispositivos magnéticos en manuscritos chinos, pasando por la unificación de la electricidad, el magnetismo y la luz formulada por James Clerk Maxwell, hasta la teoría moderna de la materia condensada,¹⁶ el magnetismo ha sido un tema central en la física. Un aspecto fundamental en esta área es la estrecha relación entre el momento angular y el momento magnético.

Esta conexión comenzó a explorarse con los descubrimientos de Oersted, que inspiraron a Ampère a

¹² L. Sheng, D. N. Sheng y C. S. Ting. "Theory of the Phonon Hall Effect in Paramagnetic Dielectrics". En: *Phys. Rev. Lett.* 96 (15 2006), pág. 155901. DOI: 10.1103/PhysRevLett.96.155901; Jian-Sheng Wang y Lifa Zhang. "Phonon Hall thermal conductivity from the Green-Kubo formula". En: *Phys. Rev. B* 80 (1 2009), pág. 012301. DOI: 10.1103/PhysRevB.80.012301; Lifa Zhang et al. "Topological nature of the phonon Hall effect". En: *Physical review letters* 105.22 (2010), pág. 225901. DOI: 10.1103/PhysRevLett.105.225901.

¹³ Lifa Zhang y Qian Niu. "Angular Momentum of Phonons and the Einstein–de Haas Effect". En: *Phys. Rev. Lett.* 112 (8 2014), pág. 085503. DOI: 10.1103/PhysRevLett.112.085503; D. A. Garanin y E. M. Chudnovsky. "Angular momentum in spin-phonon processes". En: *Phys. Rev. B* 92 (2 2015), pág. 024421. DOI: 10.1103/PhysRevB.92.024421; Lifa Zhang. "Berry curvature and various thermal Hall effects". En: *New Journal of Physics* 18.10 (2016), pág. 103039. DOI: 10.1088/1367-2630/18/10/103039.

¹⁴ Lifa Zhang y Qian Niu. "Chiral Phonons at High-Symmetry Points in Monolayer Hexagonal Lattices". En: *Phys. Rev. Lett.* 115 (11 2015), pág. 115502. DOI: 10.1103/PhysRevLett.115.115502; Hanyu Zhu et al. "Observation of chiral phonons". En: *Science* 359.6375 (2018), págs. 579-582. DOI: 10.1126/science.aar2711. eprint: <https://www.science.org/doi/pdf/10.1126/science.aar2711>.

¹⁵ Dominik M. Juraschek et al. "Chiral phonons". En: *Nature Physics* 21.10 (2025), págs. 1532-1540. DOI: 10.1038/s41567-025-03001-9.

¹⁶ J.M.D. Coey y Frédéric Mazaleyrat. *History of magnetism*. Elsevier, 2023. DOI: 10.1016/B978-0-323-90800-9.00155-4.

postular su hipótesis de las corrientes moleculares. Posteriormente, los experimentos de Einstein y de Haas confirmaron dicha hipótesis, estableciendo de forma clara la correspondencia entre momento angular y momento magnético.¹⁷ En otras palabras, un sistema que experimenta un cambio en su momento magnético debe presentar una respuesta en su momento angular, observable como una rotación; este fenómeno se conoce como el efecto *Einstein–de Haas*.¹⁸ De manera complementaria, cuando un sistema rota alrededor de un eje, genera un momento magnético que se manifiesta como un cambio en su magnetización, conocido como el efecto *Barnett*.¹⁹

En este contexto, se plantea que los fonones quirales pueden inducir un momento magnético. De hecho, existen teorías recientes que intentan calcular el orden de magnitud de dicho momento.²⁰ Estas aproximaciones constituyen un esfuerzo por establecer un marco cuantitativo para comprender el magnetismo fonónico.

Sin embargo, estas teorías no consideran plenamente la naturaleza del magnetismo asociado a los fonones quirales. Además, no reproducen de manera consistente los resultados experimentales.²¹ En general, tratan los momentos magnéticos inducidos por fonones quirales como localizados, de forma análoga a como se trabaja en el magnetismo en aislantes. No obstante, la combinación de

¹⁷ Viktor Ya Frenkel'. "On the history of the Einstein–de Haas effect". En: *Soviet Physics Uspekhi* 22.7 (1979), pág. 580. DOI: 10.1070/PU1979v022n07ABEH005587.

¹⁸ A Einstein y WJ De Haas. "Experimenteller Nachweis der Ampèreschen Molekularströme, 19 Feb 1915". En: *Deutsche Physikalische Gesellschaft* (1915).

¹⁹ S. J. Barnett. "Magnetization by Rotation". En: *Phys. Rev.* 6 (4 1915), págs. 239-270. DOI: 10.1103/PhysRev.6.239.

²⁰ Dominik M. Juraschek y Nicola A. Spaldin. "Orbital magnetic moments of phonons". En: *Phys. Rev. Mater.* 3 (6 2019), pág. 064405. DOI: 10.1103/PhysRevMaterials.3.064405; Xiao-Wei Zhang et al. "Gate-Tunable Phonon Magnetic Moment in Bilayer Graphene". En: *Phys. Rev. Lett.* 130 (22 2023), pág. 226302. DOI: 10.1103/PhysRevLett.130.226302; Swati Chaudhary et al. "Giant effective magnetic moments of chiral phonons from orbit-lattice coupling". En: *Phys. Rev. B* 110 (9 2024), pág. 094401. DOI: 10.1103/PhysRevB.110.094401.

²¹ Jiaming Luo et al. "Large effective magnetic fields from chiral phonons in rare-earth halides". En: *Science* 382.6671 (2023), págs. 698-702. DOI: 10.1126/science.adi9601; Bing Cheng et al. "A Large Effective Phonon Magnetic Moment in a Dirac Semimetal". En: *Nano Letters* 20.8 (2020). PMID: 32633978, págs. 5991-5996. DOI: 10.1021/acs.nanolett.0c01983; Dominik M. Juraschek, Tomáš Neuman y Prineha Narang. "Giant effective magnetic fields from optically driven chiral phonons in 4f paramagnets". En: *Phys. Rev. Res.* 4 (1 2022), pág. 013129. DOI: 10.1103/PhysRevResearch.4.013129.

modos fonónicos depende tanto de la frecuencia como del vector de onda \mathbf{k} en el espacio recíproco, generando un conjunto de estados que no son estrictamente localizados.

Esto sugiere que el magnetismo asociado a los fonones quirales es más apropiadamente descrito en analogía con el magnetismo itinerante de los electrones, donde los portadores no localizados se modelan como un gas de electrones libres. De hecho, esta idea de tratar los fonones como un gas bosónico no es nueva: en el modelo de Debye para el calor específico se trata a los fonones ya no como vibraciones aisladas como se consideran en el modelo de Einstein, sino por el contrario se tratan como un continuo de modos colectivos.²²

Es por ello, que este trabajo de grado aborda el estudio de los fonones mediante un modelo de gas fonónico, para así establecer una expresión para la estimación del momento magnético asociado a los fonones quirales. El cálculo de esta expresión se realizó en sistemas cristalográficos quirales, en los cuales los fonones quirales surgen de manera natural originados por las operaciones de simetría de estos grupos. Esta investigación teórica busca sentar las bases para una comprensión más profunda del magnetismo inducido por fonones quirales y contribuir a esclarecer los órdenes de magnitud reportados en la literatura.

En el desarrollo de este trabajo, el Capítulo 1 presenta los conceptos teóricos fundamentales que conforman el marco teórico para el tratamiento de los fonones y su momento angular, así como otros elementos relevantes que se emplean a lo largo de los capítulos posteriores. En el Capítulo 2 se lleva a cabo un análisis detallado del cálculo del momento angular de los fonones en sistemas cristalográficos quirales y se propone una metodología para la estimación del momento magnético en dichos sistemas. Posteriormente, en el Capítulo 3 se presentan los resultados de los cálculos realizados para distintos materiales quirales, junto con la discusión de un modelo que considera la presencia de un campo magnético externo. Finalmente, se exponen las conclusiones de esta investigación, así como recomendaciones y posibles líneas de mejora para trabajos futuros.

²² Peter Debye. "Zur theorie der spezifischen wärmen". En: *Annalen der Physik* 344.14 (1912), págs. 789-839.

1. FUNDAMENTO TEÓRICO/CONCEPTOS FUNDAMENTALES

1.1. Dinámica de los fonones

Los cálculos de primeros principios desempeñan un papel fundamental tanto en investigación básica como en aplicaciones tecnológicas, ya que permiten resolver la ecuación de Schrödinger para sistemas reales.²³ El desarrollo de métodos computacionales avanzados y la implementación de paquetes especializados como VASP²⁴ o ABINIT²⁵ han hecho posible el estudio detallado de los fonones mediante cálculos de primeros principios. En la mayoría de los casos, la teoría del funcional de la densidad (DFT) se utiliza como herramienta principal para este propósito.

En las metodologías estándar basadas en DFT, los fonones se obtienen resolviendo las ecuaciones de movimiento que dependen de las interacciones interatómicas y de las masas atómicas.²⁶

En este contexto los fonones son descritos de manera inicial dentro de la aproximación de Born-Oppenheimer (BOA) y la aproximación armónica lo cual resulta en un problema de autovalores y autovectores. Sin embargo, esta metodología resulta insuficiente en algunos casos. En esta sección se revisa más allá del trato usual de los fonones.

El formalismo desarrollado por *Vanderbilt et al.* constituye la base del desarrollo de esta sección.²⁷

²³ M. C. Payne et al. "Iterative minimization techniques for ab initio total-energy calculations: molecular dynamics and conjugate gradients". En: *Rev. Mod. Phys.* 64 (4 1992), págs. 1045-1097. DOI: 10.1103/RevModPhys.64.1045.

²⁴ J. Hafner y G. Kresse. "The Vienna AB-Initio Simulation Program VASP: An Efficient and Versatile Tool for Studying the Structural, Dynamic, and Electronic Properties of Materials". En: *Properties of Complex Inorganic Solids*. 1997, págs. 69-82. DOI: 10.1007/978-1-4615-5943-6_10.

²⁵ Aldo H. Romero et al. "ABINIT: Overview and focus on selected capabilities". En: *The Journal of Chemical Physics* 152.12 (mar. de 2020), pág. 124102. DOI: 10.1063/1.5144261.

²⁶ Atsushi Togo. "First-principles Phonon Calculations with Phonopy and Phono3py". En: *Journal of the Physical Society of Japan* 92.1 (2023), pág. 012001. DOI: 10.7566/JPSJ.92.012001.

²⁷ Shang Ren et al. "Adiabatic Dynamics of Coupled Spins and Phonons in Magnetic Insulators". En: *Phys. Rev. X* 14 (1 2024), pág. 011041. DOI: 10.1103/PhysRevX.14.011041.

Comenzando por el Hamiltoniano para un sistema con electrones y núcleos²⁸

$$\begin{aligned}
 H_{\text{tot}} &= T_N(\mathbf{R}) + T_e(\mathbf{r}) + V(\mathbf{r}, \mathbf{R}), \\
 T_e(\mathbf{R}) &= - \sum_I \frac{\hbar^2 \nabla_I^2}{2M_I}, \\
 T_N(\mathbf{r}) &= - \sum_i \frac{\hbar^2 \nabla_i^2}{2m_i}, \\
 V(\mathbf{r}, \mathbf{R}) &= \frac{1}{2} \sum_{I \neq J} \frac{e^2}{|\mathbf{r}_I - \mathbf{r}_J|} - \sum_{Ii} \frac{Z_i e^2}{|\mathbf{r}_I - \mathbf{R}_i|} + \frac{1}{2} \sum_{i \neq j} \frac{Z_i Z_j e^2}{|\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j|},
 \end{aligned} \tag{1}$$

donde los índices I, J se refieren a los electrones, y los índices i, j a los núcleos (de carga $Z_i e$ y $Z_j e$). Mientras que \mathbf{r} y \mathbf{R} son las coordenadas respectivamente. $T_N(\mathbf{R})$, $T_e(\mathbf{r})$ son la energía cinética del sistema. Por otro lado $V(\mathbf{r}, \mathbf{R})$ representa la energía electrostática de interacción. La ecuación de Schrödinger para la función $\Psi(\mathbf{r}, \mathbf{R})$ del sistema

$$[T_N(\mathbf{R}) + T_e(\mathbf{r}) + V(\mathbf{r}, \mathbf{R})] \Psi(\mathbf{r}, \mathbf{R}) = W \Psi(\mathbf{r}, \mathbf{R}), \tag{2}$$

donde W es la energía total del sistema. Ahora bien, al hacer uso de la BOA, se considera que todos los grados de libertad electrónicos siguen adiabáticamente el movimiento de los núcleos. Como consecuencia, esta aproximación permite desacoplar la función de onda total en una parte electrónica y una parte nuclear.

$$\Psi(\mathbf{r}, \mathbf{R}) = \Phi(\mathbf{r}; \mathbf{R}) \chi(\mathbf{R}), \tag{3}$$

ahora \mathbf{R} aparece simplemente como parámetro se utiliza punto y coma para denotar esta dependencia paramétrica. La parte electrónica satisface

$$[T_e(\mathbf{r}) + V(\mathbf{r}; \mathbf{R})] \Phi(\mathbf{r}; \mathbf{R}) = \epsilon(\mathbf{R}) \Phi(\mathbf{r}; \mathbf{R}), \tag{4}$$

Introduciendo 3 en 2, multiplicando $\Phi^*(\mathbf{r}; \mathbf{R})$ en la izquierda e integrando sobre \mathbf{r} se obtiene

²⁸ G. Grosso y G.P. Parravicini. *Solid State Physics*. Academic Press, 2014. DOI: <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-385030-0.00019-0>.

$$\left[\sum_{i\alpha} \frac{(\mathbf{P}_{i\alpha} - \hbar \mathbf{A}_{i\alpha})^2}{2m_i} + \epsilon(\mathbf{R}) \right] \chi(\mathbf{R}) = W \chi(\mathbf{R}), \quad (5)$$

$$\mathbf{A}_{i\alpha} = i \langle \Phi(\mathbf{r}; \mathbf{R}) | \partial_{i\alpha} \Phi(\mathbf{r}; \mathbf{R}) \rangle,$$

entonces el Hamiltoniano efectivo para los fonones resulta

$$H_{eff} = \sum_{i\alpha} \frac{(\mathbf{P}_{i\alpha} - \hbar \mathbf{A}_{i\alpha})^2}{2m_i} + \epsilon(\mathbf{R}). \quad (6)$$

Una derivación más detallada de este Hamiltoniano efectivo se presenta en el Anexo 1. Al resolver la ecuación de movimiento de los fonones se deriva,

$$-M_i \frac{d^2 x_i^\alpha}{dt^2} = \sum_{j\beta} F_{ij}^{\alpha\beta} x_j^\beta + \sum_{j\beta} G_{ij}^{\alpha\beta} \frac{dx_j^\beta}{dt}, \quad (7)$$

donde la matriz $F_{ij}^{\alpha\beta} = \partial_{i\alpha} \partial_{j\beta} \epsilon(\mathbf{R})|_{x=0}$ se obtiene al expandir el potencial hasta segundo orden alrededor de la posición de equilibrio, lo cual es válido para pequeños desplazamientos. Esta matriz es conocida como la matriz de constantes de fuerza. Por su parte, M es una matriz diagonal compuesta por las masas atómicas, $M_i = m_i \delta_{ij} \delta_{\alpha\beta}$. Finalmente, G es la matriz de velocidades de fuerza, que relaciona la fuerza sobre el núcleo i en la dirección α con la velocidad del núcleo j en la dirección β , y puede escribirse como

$$G_{i\alpha, j\beta} = 2\hbar \text{Im} \langle \partial_{i\alpha} \psi(\mathbf{R}) | \partial_{j\beta} \psi(\mathbf{R}) \rangle = \hbar \Omega_{ij}^{\alpha\beta}, \quad (8)$$

donde $\Omega_{ij}^{\alpha\beta}$ corresponde a la curvatura de Berry. Para resolver las ecuaciones de movimiento, se puede suponer una solución en la base de ondas planas de la forma

$$x_i^\alpha(t) = m_i^{-1/2} A \epsilon_i^\alpha e^{i[\mathbf{r}_i \cdot \mathbf{k} - \omega t]} \quad (9)$$

donde A es una constante de normalización. Por otro lado, ϵ_i^α corresponden a los vectores de polarización de los fonones, los cuales se encuentran normalizados. Al combinar las ecuaciones 7 y 9 se obtiene

$$\sum_{j\beta} \frac{1}{\sqrt{m_i m_j}} \left(F_{ij}^{\alpha\beta} + i\omega G_{ij}^{\alpha\beta} \right) \epsilon_j^\beta = \omega^2 \epsilon_i^\alpha. \quad (10)$$

Cuando la matriz $G = 0$, la ecuación anterior se reduce al tratamiento usual de los fonones, y el problema se limita a encontrar los valores y vectores propios de la matriz dinámica $F_{ij}^{\alpha\beta} / \sqrt{m_i m_j}$. En este caso, la ecuación 10 permite obtener directamente los vectores de polarización y las frecuencias de los fonones.

Para lograr una descripción más completa de la dinámica fonónica es posible expandir el potencial incluyendo términos de orden superior, lo que permite capturar efectos anarmónicos. Otra alternativa consiste en incorporar la matriz G asociada a las velocidades de fuerza, lo que implica abandonar un tratamiento puramente clásico de las vibraciones y abordarlas desde una perspectiva cuántica.

Mientras que, por construcción, la matriz de constantes de fuerza F respeta la simetría de inversión espacial, la simetría de inversión temporal no se encuentra incorporada en dicha matriz. Por otro lado, puede observarse a partir de la ecuación 7 que el término que acompaña a G puede interpretarse como una derivada mixta de segundo orden de la energía, una con respecto a la posición atómica y otra con respecto a la velocidad. En consecuencia, la matriz de velocidades de fuerza cambia de signo bajo la inversión temporal, ya que la velocidad invierte su signo bajo dicha transformación.²⁹

1.2. Momento angular de los fonones

Hasta ahora, se consideraba que los fonones en los cristales estaban conformados principalmente desplazamientos lineales con momento angular nulo. Sin embargo, los vectores de polarización pueden generar movimientos de rotación. Por ende, estos fonones producen un momento angular. Este concepto y su subsecuente teoría fue propuesto por Lifa Zhang y Qian Niu³⁰

$$\mathbf{L}^{ph} = \sum_{li} \mathbf{u}_{li} \times \partial_t \mathbf{u}_{li}, \quad (11)$$

donde \mathbf{u}_{li} es el vector desplazamiento del átomo i en la celda unitaria l . El vector desplazamiento está normalizado por la raíz cuadrada de la masa m_i

²⁹ Sinisa Coh. "Classification of materials with phonon angular momentum and microscopic origin of angular momentum". En: *Phys. Rev. B* 108 (13 2023), pág. 134307. DOI: 10.1103/PhysRevB.108.134307.

³⁰ Zhang y Niu, "Angular Momentum of Phonons and the Einstein–de Haas Effect", ver n. 13.

$$u_l = (\sqrt{m_1}u_{l1x}, \sqrt{m_1}u_{l1y}, \sqrt{m_1}u_{l1z}, \dots, \sqrt{m_N}u_{lNz})^T, \quad (12)$$

N es el número de átomos por celda unitaria. El momento angular de los fonones entonces se puede reescribir

$$L_\alpha^{ph} = \sum_l u_l^T i M_\alpha \partial_t u_l, \quad (13)$$

donde la matriz $M_\alpha = I_{N \times N} \otimes (-i)\varepsilon_{\alpha\beta\gamma}$ es un producto tensorial de la matriz unitaria para N sitios dentro de la celda unidad y un generador de la rotación SO(3), representado por el tensor antisimétrico $\varepsilon_{\alpha\beta\gamma}$. Podemos representar el vector desplazamiento en la forma de segunda cuantización como³¹

$$u_l = \sum_{\mathbf{k}\sigma} \epsilon_{\mathbf{k}\sigma} e^{i(\mathbf{R}_l \cdot \mathbf{k} - \omega_{\mathbf{k}\sigma} t)} \sqrt{\frac{\hbar}{2\omega_{\mathbf{k}\sigma} N}} a_{\mathbf{k}\sigma} + \epsilon_{\mathbf{k}\sigma}^* e^{-i(\mathbf{R}_l \cdot \mathbf{k} - \omega_{\mathbf{k}\sigma} t)} \sqrt{\frac{\hbar}{2\omega_{\mathbf{k}\sigma} N}} a_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger, \quad (14)$$

donde $\epsilon_{\mathbf{k}\sigma}$ y $a_{\mathbf{k}\sigma}$ ($a_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger$) es el vector de polarización y el operador de creación (aniquilación) para los fonones respectivamente. \mathbf{k} especifica el vector de onda y σ la rama. Con esto la ecuación 13 resulta

$$\begin{aligned} L_\alpha^{ph} = & \frac{\hbar}{2N} \sum_l \sum_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}'\sigma'} \sqrt{\frac{\omega_{\mathbf{k}'\sigma'}}{\omega_{\mathbf{k}\sigma}}} \left[\epsilon_{\mathbf{k}\sigma}^T M_\alpha \epsilon_{\mathbf{k}'\sigma'} e^{i(\mathbf{R}_l \cdot (\mathbf{k} + \mathbf{k}') - i(\omega_{\mathbf{k}\sigma} + \omega_{\mathbf{k}'\sigma'}) t)} a_{\mathbf{k}\sigma} a_{\mathbf{k}'\sigma'} \right. \\ & - \epsilon_{\mathbf{k}\sigma}^T M_\alpha \epsilon_{\mathbf{k}'\sigma'}^* e^{i(\mathbf{R}_l \cdot (\mathbf{k} - \mathbf{k}') - i(\omega_{\mathbf{k}\sigma} - \omega_{\mathbf{k}'\sigma'}) t)} a_{\mathbf{k}\sigma} a_{\mathbf{k}'\sigma'}^\dagger \\ & + \epsilon_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger M_\alpha \epsilon_{\mathbf{k}'\sigma'} e^{-i(\mathbf{R}_l \cdot (\mathbf{k} - \mathbf{k}') + i(\omega_{\mathbf{k}\sigma} - \omega_{\mathbf{k}'\sigma'}) t)} a_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger a_{\mathbf{k}'\sigma'} \\ & \left. + \epsilon_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger M_\alpha \epsilon_{\mathbf{k}'\sigma'}^T e^{-i(\mathbf{R}_l \cdot (\mathbf{k} + \mathbf{k}') + i(\omega_{\mathbf{k}\sigma} + \omega_{\mathbf{k}'\sigma'}) t)} a_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger a_{\mathbf{k}'\sigma'}^\dagger \right], \quad (15) \end{aligned}$$

si consideramos la ecuación anterior en el equilibrio termodinámico y la definición del valor medio de un operador, entonces

$$\langle a_{\mathbf{k}\sigma} a_{\mathbf{k}'\sigma'} \rangle = \langle a_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger a_{\mathbf{k}'\sigma'}^\dagger \rangle = 0, \quad (16)$$

³¹ Zhang y Niu, "Angular Momentum of Phonons and the Einstein-de Haas Effect", ver n. 13.

$$\langle a_{\mathbf{k}\sigma'}^\dagger a_{\mathbf{k}\sigma} \rangle = f_0(\omega_{\mathbf{k}\sigma}) \delta_{\sigma\sigma'}, \quad (17)$$

donde $f_0(\omega_{\mathbf{k}\sigma})$ es la función de distribución de Bose - Einstein con potencial químico μ igual a cero. Además ya que $\frac{1}{N} \sum_l e^{-i(\mathbf{R}_l \cdot (\mathbf{k} - \mathbf{k}'))} = \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}$ y $\epsilon_{\mathbf{k}'\sigma'}^T (-M_\alpha) \epsilon_{\mathbf{k}\sigma}^* = \epsilon_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger M_\alpha \epsilon_{\mathbf{k}'\sigma'}$. La ecuación 15 resulta

$$L_\alpha^{ph} = \frac{\hbar}{2} \sum_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}'\sigma'} \epsilon_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger M_\alpha \epsilon_{\mathbf{k}'\sigma'} \left[\sqrt{\frac{\omega_{\mathbf{k}'\sigma'}}{\omega_{\mathbf{k}\sigma}}} a_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger a_{\mathbf{k}'\sigma'} + \sqrt{\frac{\omega_{\mathbf{k}\sigma}}{\omega_{\mathbf{k}'\sigma'}}} a_{\mathbf{k}'\sigma'} a_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger \right] \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} e^{-i(\omega_{\mathbf{k}\sigma} - \omega_{\mathbf{k}'\sigma'})t}, \quad (18)$$

podemos usar la relación de conmutación $[a_{\mathbf{k}'\sigma'}, a_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger] = \delta_{\sigma\sigma'}$ y la ecuación 17 para finalmente obtener

$$L_\alpha^{ph} = \hbar \sum_l \sum_{\mathbf{k}\sigma, \sigma'} \epsilon_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger M_\alpha \epsilon_{\mathbf{k}\sigma'} f_0(\omega_{\mathbf{k}\sigma}) \delta_{\sigma\sigma'} e^{-i(\omega_{\mathbf{k}\sigma} - \omega_{\mathbf{k}'\sigma'})t} + \frac{\hbar}{2} \sum_{\mathbf{k}\sigma} \epsilon_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger M_\alpha \epsilon_{\mathbf{k}\sigma} \quad (19)$$

$$L_\alpha^{ph} = \hbar \sum_{\mathbf{k}\sigma} l_{\mathbf{k}\sigma, \alpha} \left(f_0(\omega_{\mathbf{k}\sigma}) + \frac{1}{2} \right), \quad \text{donde } l_{\mathbf{k}\sigma, \alpha} = \epsilon_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger M_\alpha \epsilon_{\mathbf{k}\sigma}. \quad (20)$$

La ecuación anterior nos proporciona el momento angular fonónico sobre todos los vectores \mathbf{k} en una celda unitaria y de todas las ramas de los fonones σ . Por otro lado $l_{\mathbf{k}\sigma, \alpha}$ es el momento angular por rama σ del vector \mathbf{k} . A temperatura cero el momento angular de cada modo del vector \mathbf{k} posee momento angular diferente de cero.³²

1.3. Magnetismo itinerante

En un átomo libre, el momento magnético total tiene dos contribuciones principales: una asociada al momento angular orbital de los electrones que se mueven en órbitas cerradas y otra proveniente

³² Zhang y Niu, "Angular Momentum of Phonons and the Einstein-de Haas Effect", ver n. 13.

del momento angular de espín.³³ El cálculo de estas contribuciones se realiza dentro del marco de la mecánica cuántica, y aunque para átomos aislados puede estimarse con gran exactitud, cuando el número de electrones alcanza el orden de las centenas surgen dificultades significativas.³⁴ En los sólidos, incluso en sistemas relativamente simples, la gran cantidad de electrones imposibilita un tratamiento directo, por lo que es necesario recurrir a modelos que permitan estimar el momento magnético.³⁵

En los sistemas en los que los electrones pueden considerarse ligados a un átomo particular, el momento magnético se estima empleando las reglas de Hund, sumando tanto el momento angular orbital como el de espín de todos los átomos.³⁶ Este comportamiento es usual en los aislantes razón por la cual en algunos textos se le llama magnetismo en aislantes. En este marco del magnetismo localizado, dado que cada electrón contribuye con un magnetón de Bohr, se espera que el momento magnético total tome valores enteros. Esto constituye un primer modelo para la estimación del momento magnético.

Por otro lado, en los sistemas donde los electrones no están ligados a un átomo en particular, sino que se desplazan libremente, la descripción es diferente. En este caso, las funciones de onda de los orbitales responsables del momento magnético se solapan significativamente, y los estados electrónicos dejan de ser discretos.³⁷ En lugar de ello, los niveles de energía se organizan en un continuo de estados dentro de un rango definido, conocido como bandas electrónicas.

La distribución de estos estados se describe mediante la densidad de estados, la cual proporciona información sobre cómo se encuentran repartidos en la banda. Formalmente, la densidad de estados

³³ Michael E. McHenry. "Magnetic Moment and Magnetization". En: *Characterization of Materials*. John Wiley & Sons, Ltd, 2002. DOI: <https://doi.org/10.1002/0471266965.com042>.

³⁴ S. Blundell. *Magnetism in Condensed Matter*. Oxford Master Series in Condensed Matter Physics. OUP Oxford, 2001.

³⁵ M. Getzlaff. *Fundamentals of Magnetism*. Springer Berlin Heidelberg, 2007. DOI: <https://doi.org/10.1007/978-3-540-31152-2>.

³⁶ John Crangle. *Solid-state magnetism / John Crangle*. eng. New York: Springer New York, NY, 1991. DOI: <https://doi.org/10.1007/978-1-4615-3920-9>; Getzlaff, ver n. 35.

³⁷ P. Mohn. *Magnetism in the Solid State: An Introduction*. Springer Series in Solid-State Sciences. Springer Berlin Heidelberg, 2002. DOI: <https://doi.org/10.1007/3-540-30981-0>; Getzlaff, ver n. 35.

por unidad de volumen, $g(\varepsilon)$, se define de modo que la cantidad $g(\varepsilon) d\varepsilon$ representa el número de estados electrónicos (por unidad de volumen) en el intervalo de energías comprendido entre ε y $\varepsilon + d\varepsilon$

$$g(\varepsilon) d\varepsilon = \frac{1}{V} \frac{dN_\varepsilon}{d\varepsilon} d\varepsilon. \quad (21)$$

A diferencia del caso del magnetismo localizado —donde se consideran orbitales bien definidos llenados sucesivamente según las reglas de Hund—, aquí la descripción se formula en términos de la densidad de estados. Como consecuencia, los momentos magnéticos estimados ya no son necesariamente enteros. Para estimar estos momentos magnéticos se puede calcular la densidad de estados resulta por spin up y spin down por cada banda. Para los metales de transición y las aleaciones el momento magnético total por celda se puede estimar³⁸

$$\mu = (n^\uparrow - n^\downarrow) \mu_B \quad (22)$$

donde

$$n_\uparrow = \frac{N_\uparrow}{V} = \int_0^{\varepsilon_F} g_\uparrow(\varepsilon) d\varepsilon, \quad n_\downarrow = \frac{N_\downarrow}{V} = \int_0^{\varepsilon_F} g_\downarrow(\varepsilon) d\varepsilon \quad (23)$$

1.4. Análisis de las cargas atómicas

Durante mucho tiempo ha existido un interés constante en el cálculo de las cargas atómicas netas (NACs), tanto en la física del estado sólido como en la química.³⁹ El principal interés radica en que las

³⁸ Yin Cui et al. “The Structure and Magnetic Moment Study of Fe–Si–Al by First-Principles Calculation”. En: *IEEE Transactions on Magnetics* 51.11 (2015), págs. 1-4. DOI: 10.1109/TMAG.2015.2434940; Weiming Cheng et al. “Magnetic moments in SmCo 5 and SmCo 5-xCux films”. En: *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism* 25 (ago. de 2012). DOI: 10.1007/s10948-012-1530-4; M. Pénicaud et al. “Calculated electronic band structure and magnetic moments of ferrites”. En: *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 103.1 (1992), págs. 212-220. DOI: [https://doi.org/10.1016/0304-8853\(92\)90255-M](https://doi.org/10.1016/0304-8853(92)90255-M).

³⁹ Benoit Champagne et al. “Assessment of conventional density functional schemes for computing the polarizabilities and hyperpolarizabilities of conjugated oligomers: An ab initio investigation of polyacetylene chains”. En: *The Journal of Chemical Physics* 109.23 (dic. de 1998), págs. 10489-10498. DOI: 10.1063/1.477731.

cargas atómicas surgen de manera natural en diversos problemas y, con frecuencia, resultan útiles para ofrecer una descripción simplificada de sólidos y moléculas.⁴⁰

En el estado sólido, sin embargo, resulta difícil determinar la carga asociada a un átomo específico debido a las múltiples interacciones, enlaces y al movimiento de los electrones en el sistema. Para abordar este desafío, se han propuesto diversos métodos para estimar la carga neta atómica. En general, pueden distinguirse tres enfoques principales⁴¹ : (i) Métodos basados en el análisis de población , que incluye las cargas de Mulliken, Löwdin y naturales. (ii) Métodos basados en el ajuste electrostático, entre los cuales se encuentran las cargas de Merz–Kollman. (iii) Métodos basados en la partición de la densidad electrónica, donde destacan las cargas de Bader y DDEC (por sus siglas en inglés, *Density Derived Electrostatic and Chemical*).

Para que un método describa de manera adecuada las NACs, debe cumplir ciertos criterios.⁴² En primer lugar, debe ser aplicable de forma independiente del conjunto de bases utilizado para generar la densidad electrónica en los cálculos DFT. En segundo lugar, las NACs calculadas deben ser capaces de reproducir correctamente el potencial electrostático. Finalmente, el método debe ser válido tanto para sistemas periódicos como no periódicos. Mientras que en los dos enfoques principales al menos una de estas condiciones no se cumple, las cargas calculadas mediante el método (iii) satisfacen todos estos requisitos.⁴³ Es por esto que en este trabajo de investigación se usa las cargas Bader y DDEC para caracterizar la carga de los átomos y utilizarlas en la estimación del momento magnético.

⁴⁰ Martin Sterrer et al. “Control of the Charge State of Metal Atoms on Thin MgO Films”. En: *Phys. Rev. Lett.* 98 (9 2007), pág. 096107. DOI: 10.1103/PhysRevLett.98.096107; Anne Lechtken et al. “Comparative study of the structures of copper, silver, and gold icosamers: Influence of metal type and charge state”. En: *The Journal of Chemical Physics* 129.15 (oct. de 2008), pág. 154304. DOI: 10.1063/1.2992073.

⁴¹ Indrani Choudhuri y Donald G. Truhlar. “Calculating and Characterizing the Charge Distributions in Solids”. En: *Journal of Chemical Theory and Computation* 16.9 (2020), págs. 5884-5892. DOI: 10.1021/acs.jctc.0c00440.

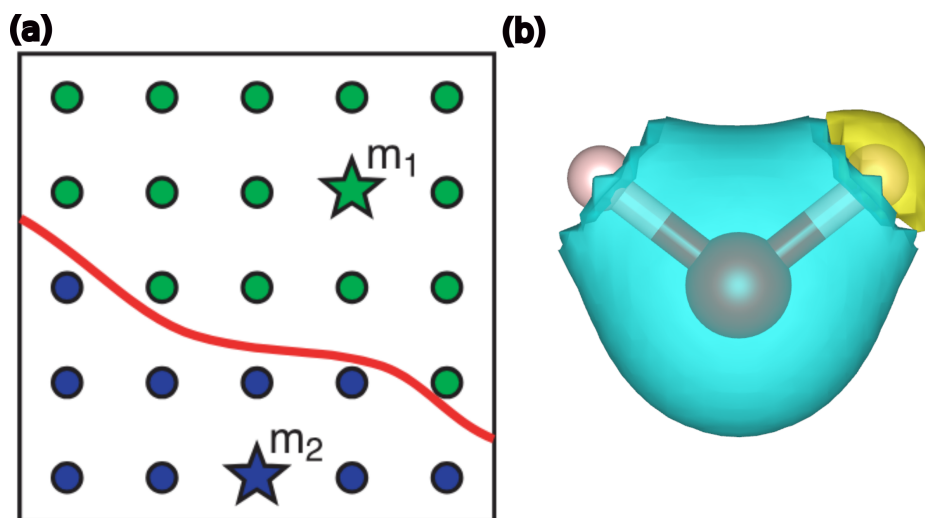
⁴² Thomas A. Manz y David S. Sholl. “Chemically Meaningful Atomic Charges That Reproduce the Electrostatic Potential in Periodic and Nonperiodic Materials”. En: *Journal of Chemical Theory and Computation* 6.8 (2010), págs. 2455-2468. DOI: 10.1021/ct100125x.

⁴³ Manz y Sholl, ver n. 42.

1.4.1. Cargas atómicas de Bader

Bader propone una herramienta poderosa para lograr particionar los átomos.⁴⁴ La idea es usar la densidad electrónica para dividir el espacio en el sistema en volúmenes atómicos, también conocidos como volúmenes de Bader Ω_ρ . Cada volumen de Bader contiene un único máximo de densidad de carga y se encuentra separado por una superficie en la que la densidad de carga es mínima y normal a la mencionada superficie, es decir, $\nabla\rho(\mathbf{r}) \cdot \hat{n} = 0$, donde \hat{n} es un vector perpendicular a la superficie y $\rho(\mathbf{r})$ es la densidad electrónica para cada punto $\mathbf{r} \in \partial\Omega_\rho$.⁴⁵ Integrandó la densidad de carga en el volumen de Bader se puede estimar la carga total electrónica del átomo.

Figura 1. (a) Descripción esquemática de la grilla usada para encontrar el volumen de Bader, la línea roja es la frontera entre volúmenes.⁴⁶ (b) Volúmenes de Bader para la molécula de H_2O .



El grupo de Henkelman de la Universidad de Texas desarrolló un método computacional para parti-

⁴⁴ R.F.W. Bader. *Atoms in Molecules: A Quantum Theory*. International Ser. of Monogr. on Chem. Clarendon Press, 1994.

⁴⁵ W Tang, E Sanville y G Henkelman. "A grid-based Bader analysis algorithm without lattice bias". En: *Journal of Physics: Condensed Matter* 21.8 (2009), pág. 084204. DOI: 10.1088/0953-8984/21/8/084204; Min Yu y Dallas R. Trinkle. "Accurate and efficient algorithm for Bader charge integration". En: *The Journal of Chemical Physics* 134.6 (feb. de 2011), pág. 064111. DOI: 10.1063/1.3553716.

cionar la densidad de carga en volúmenes de Bader, el cual se caracteriza por ser eficiente, robusto y escalar linealmente con el número de puntos de la malla. El algoritmo sigue trayectorias de ascenso más pronunciado a lo largo del gradiente de la densidad de carga, avanzando de punto en punto hasta alcanzar un máximo de densidad. Una vez asignado un máximo, las trayectorias posteriores se interrumpen cuando alcanzan puntos previamente asignados. Este enfoque basado en mallas proporciona una gran eficiencia computacional, permitiendo el análisis en mallas extensas generadas en cálculos de DFT. El código es de acceso libre y permite calcular la carga total asociada a cada átomo, así como las superficies de flujo nulo que definen los volúmenes de Bader.⁴⁷

1.4.2. Cargas atómicas DDEC6

Las cargas DDEC fueron desarrolladas por Thomas Manz y Donald Sholl con el propósito de obtener una partición de la densidad electrónica que reproduzca simultáneamente el potencial electrostático del sistema y mantenga una interpretación química intuitiva.⁴⁸ Las cargas DDEC combina características de los enfoques basados en el potencial electrostático y los métodos de partición de la densidad. La idea central consiste en asignar a cada átomo una distribución de densidad electrónica que conserve la forma y el tamaño adecuados para reproducir fielmente el entorno químico local.

Esta asignación se realiza de manera iterativa, ajustando las densidades atómicas de referencia hasta que la suma de todas ellas reproduzca la densidad total del sistema. A diferencia de los métodos de Bader o Hirshfeld, las cargas DDEC presentan una convergencia más suave y una mejor transferencia entre entornos moleculares y sólidos. Actualmente, el método DDEC se encuentra implementado en el paquete `Chargemol`, disponible de manera libre para su uso en estudios de materiales, superficies y moléculas.⁴⁹

⁴⁷ UT Austin Henkelman Group Center for Computational Materials. *Code: Bader Charge Analysis*. 2025. URL: <https://theory.cm.utexas.edu/henkelman/code/bader/> (visitado 27-08-2025).

⁴⁸ Manz y Sholl, ver n. 42; Nidia Gabaldon Limas y Thomas A. Manz. "Introducing DDEC6 atomic population analysis: part 4. Efficient parallel computation of net atomic charges, atomic spin moments, bond orders, and more". En: *RSC Adv.* 8 (5 2018), págs. 2678-2707. DOI: 10.1039/C7RA11829E.

⁴⁹ ThomasAmanz / Project DDEC. *Program Computing DDEC Atomic Charges — SourceForge Files*. 2025. URL: <https://sourceforge.net/projects/ddec/files/> (visitado 14-10-2025).

2. SOBRE EL MAGNETISMO EN LOS FONONES QUIRALES

En este capítulo se presenta una descripción sobre el magnetismo asociado a los fonones quirales. En primer lugar, se expone por qué los sistemas quirales constituyen candidatos particularmente relevantes para la estimación del momento magnético. Subsecuentemente, ya que el momento angular es clave para la estimación del momento magnético se construye una metodología para el cálculo en estos sistemas. Posteriormente, se introduce el concepto de densidad de estados de los fonones quirales, cuya evaluación se realiza mediante el código desarrollado en el grupo FICOMACO. Este código, basado en cálculos DFT implementados en PHONOPY, se encuentra actualmente en proceso de integración con dicho programa y permite obtener tanto el momento angular como la densidad de estados fonónicos resuelta por momento angular, entre otras funcionalidades. Finalmente, el capítulo concluye con la formulación de una expresión para la estimación del momento magnético de los fonones quirales en cristales pertenecientes a los grupos espaciales cristalográficos quirales.

2.1. Momento angular de los fonones en sistemas quirales

La elección de estructuras quirales como objeto de estudio se justifica por su relación directa con la generación de momento angular fonónico. La primera definición formal de quiralidad fue propuesta por Lord Kelvin, quien estableció que una figura geométrica o un conjunto de puntos es quiral si su imagen especular no puede superponerse consigo misma.⁵⁰ En otras palabras, un sistema quiral carece de planos espejo, centros de inversión y ejes de rotación–reflexión. Desde el punto de vista cristalográfico, de los 230 grupos espaciales posibles, únicamente 22 cumplen estas condiciones; estos se listan en el Anexo 2.

Los sistemas quirales constituyen un escenario particularmente relevante en este contexto, ya que, por definición, no presentan operaciones de simetría impropias y, en consecuencia, rompen de manera natural la simetría de inversión espacial (\hat{P}). Asimismo, en el caso de que los átomos que con-

⁵⁰ W.T.B. Kelvin. *The Molecular Tactics of a Crystal*. Boyle lecture. Clarendon Press, 1894; B.K. William Thomson y W. Thomson. *Baltimore Lectures on Molecular Dynamics and the Wave Theory of Light*. Cambridge Library Collection - Physical Sciences. Cambridge University Press, 2010.

forman la red posean carácter magnético, se rompe adicionalmente la simetría de inversión temporal ($\hat{\mathcal{T}}$).

Sobre esta base, se lleva a cabo un análisis de simetría del momento angular fonónico en sistemas quirales. En particular, se examina el efecto de las simetrías $\hat{\mathcal{T}}$ y $\hat{\mathcal{P}}$ sobre el momento angular. Si el sistema conserva $\hat{\mathcal{T}}$, el momento angular fonónico resulta⁵¹

$$l_{-\mathbf{k}\sigma,\alpha} = \hbar \epsilon_{-\mathbf{k}\sigma}^\dagger M_\alpha \epsilon_{-\mathbf{k}\sigma} = \hbar \epsilon_{\mathbf{k}\sigma}^T M_\alpha \epsilon_{\mathbf{k}\sigma}^*, \quad (24)$$

ya que $\epsilon_{\mathbf{k}\sigma}^T (-M_\alpha) \epsilon_{\mathbf{k}\sigma}^* = \epsilon_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger M_\alpha \epsilon_{\mathbf{k}\sigma}$, obtenemos

$$l_{-\mathbf{k}\sigma,\alpha} = -\hbar \epsilon_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger M_\alpha \epsilon_{\mathbf{k}\sigma} = -l_{\mathbf{k}\sigma,\alpha}, \quad (25)$$

es decir, en este caso el momento angular fonónico es un función impar del vector \mathbf{k} . Además, tenemos que $f_0(\omega_{-\mathbf{k}\sigma}) = f_0(\omega_{\mathbf{k}\sigma})$, luego para un sistema que preserve $\hat{\mathcal{T}}$ la ecuación 20, resulta

$$\sum_{\mathbf{k}\sigma} l_{\mathbf{k}\sigma,\alpha} \left(f_0(\omega_{\mathbf{k}\sigma}) + \frac{1}{2} \right) = \sum_{\mathbf{k}\sigma} -l_{\mathbf{k}\sigma,\alpha} \left(f_0(\omega_{\mathbf{k}\sigma}) + \frac{1}{2} \right) \quad (26)$$

Por lo tanto, para cada fonón en un punto \mathbf{k} de la zona de Brillouin existe un fonón correspondiente en el punto opuesto $-\mathbf{k}$ que también posee momento angular, pero con un sentido de giro opuesto. Sin embargo, esta relación no implica necesariamente que ambos fonones tengan la misma magnitud de momento angular.

Por otro lado cuando el sistema conserva $\hat{\mathcal{P}}$ el momento angular fonónico resulta⁵²

$$l_{-\mathbf{k}\sigma} = \hbar \epsilon_{-\mathbf{k}\sigma}^\dagger M_\alpha \epsilon_{-\mathbf{k}\sigma} = \hbar \epsilon_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger M_\alpha \epsilon_{\mathbf{k}\sigma} = l_{\mathbf{k}\sigma}, \quad (27)$$

es decir, el momento angular fonónico para cada modo es una función par del vectores \mathbf{k} . Lo anterior implica que, para cada fonón en un punto \mathbf{k} de la zona de Brillouin, existe un fonón correspondiente en el punto opuesto $-\mathbf{k}$ con un momento angular de igual magnitud. Sin embargo, la simetría considerada no impone ninguna restricción sobre el sentido de giro de dichos modos

⁵¹ G.P. Srivastava. *The Physics of Phonons*. Taylor & Francis, 1990.

⁵² Srivastava, ver n. 51.

Una importante consecuencia de este análisis, es que si el sistema conserva simultáneamente las simetrías $\hat{\mathcal{P}}$ y $\hat{\mathcal{T}}$ es decir, se debe cumplir las ecuaciones 25 y 27 simultáneamente esto lleva naturalmente a que el momento angular fonónico sea necesariamente cero. Dicho de otro modo, la existencia del momento angular fonónico requiere necesariamente la ruptura de, al menos, una de estas simetrías. Como resultado de esto, los fonones en sistemas quirales son intrínsecamente quirales.

Es importante señalar, sin embargo, que el origen del momento angular fonónico depende de la simetría rota. En los casos en que únicamente se rompe $\hat{\mathcal{P}}$, el origen del momento angular se encuentra en la matriz dinámica D . Por el contrario, cuando solo se rompe $\hat{\mathcal{T}}$, la contribución proviene de la matriz de velocidades de fuerza G . Finalmente, si ambas simetrías se encuentran rotas, el momento angular fonónico resulta de una combinación tanto de D como de G .⁵³ Esta condición se presente en sistemas multiferroicos con respuesta polar eléctrica y ferromagnética.

2.2. Densidad de estados resuelto por momento angular

La densidad de estados de los fonones se define entonces, de manera análoga a la densidad de estados electrónica.⁵⁴ Por celda unitaria se expresa como:

$$\Theta(\omega) = \sum_{\mathbf{k}\sigma} \delta(\omega - \omega_{\mathbf{k}\sigma}) \simeq \frac{V_c}{(2\pi)^3} \int_{BZ} d\mathbf{k} \sum_{\nu} \delta(\omega - \omega_{\mathbf{k}\sigma}), \quad (28)$$

donde la integral se realiza sobre toda la zona de Brillouin, BZ, y la suma incluye todas las bandas fonónicas σ . El resultado total corresponde al número de modos vibracionales $3N$, siendo N el número de átomos en la celda unitaria. La densidad de estados parcial (pDOS) se obtiene considerando la contribución individual, o proyección, de cada átomo a la densidad de estados total.⁵⁵ Esta información está contenida en los vectores de polarización (*i.e.* eigenvectores) $\epsilon_{i\alpha}(\mathbf{k}\sigma)$, entonces para representar esta contribución se proyecta la densidad de estados total sobre cada vector de

⁵³ Coh, ver n. 29; John Bonini et al. “Frequency Splitting of Chiral Phonons from Broken Time-Reversal Symmetry in CrI_3 ”. En: *Phys. Rev. Lett.* 130 (8 2023), pág. 086701. DOI: 10.1103/PhysRevLett.130.086701.

⁵⁴ Kittel, ver n. 2.

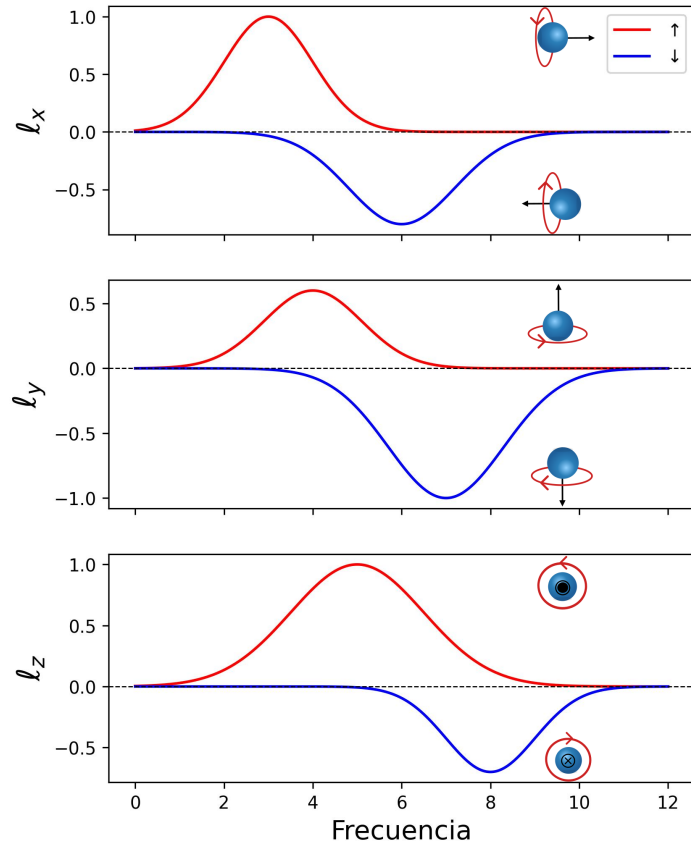
⁵⁵ Togo, ver n. 26.

polarización de la forma:

$$\vartheta_{i\alpha}(\omega) = \sum_{\mathbf{k}\sigma} \delta(\omega - \omega_{\mathbf{k}\sigma}) |\epsilon_{i\alpha}(\mathbf{k}\sigma)|^2. \quad (29)$$

La densidad de estados total debe ser, por ende, la suma de cada contribución, es decir, $\Theta(\omega) = \sum_{\mathbf{k}\sigma} \vartheta_{i\alpha}(\omega)$. Siguiendo esta misma lógica, es posible definir la densidad de estados resuelta por momento angular en los fonones.

Figura 2. Descripción esquemática del pamDOS. En este caso, se obtienen contribuciones para l_x , l_y , y l_z en las cuales las direcciones up y down se denotan con colores rojo y azul, respectivamente. Para el caso de la figura, existe un desfase entre ambas como puede ocurrir en la presencia de campo magnético aplicado.



Esta cantidad permite identificar la contribución de aquellos modos fonónicos que poseen momento angular distinto de cero en cada una de las tres direcciones cartesianas. Definimos la densidad de estados proyectada por momento angular (pamDOS) como:

$$\ell_{i\sigma}^{\uparrow\downarrow\alpha}(\omega) = \sum_{\mathbf{k}\sigma} \delta(\omega - \omega_{\mathbf{k}\sigma}) \left| \epsilon_{i\alpha}^{\uparrow\downarrow\alpha}(\mathbf{k}\sigma) \right|^2, \quad (30)$$

donde $\uparrow\downarrow$ denota la dirección del momento angular, esto quiere decir que para cada vector de polarización que resulta con momento angular cero de la ecuación 20 se organiza por dirección α y signo dependiendo el sentido de giro, \uparrow en sentido contrario de las manecillas del reloj y \downarrow para el sentido de las manecillas del reloj.

Únicamente en el caso en que todos los modos de vibración presenten momento angular, la suma total del pamDOS recupera los $3N$ modos. Como resultado de la ecuación 30, se obtienen seis funciones de densidad de estados: tres asociadas a cada dirección cartesiana, cada una desdoblada en dos según el sentido de rotación (ver figura 2).

2.3. Momento magnético de los fonones quirales

Los fonones desempeñan un papel fundamental en una amplia gama de fenómenos, que abarcan desde propiedades térmicas básicas hasta la superconductividad.⁵⁶ Desde sus inicios, la noción de fonón ha generado controversias en torno a una pregunta recurrente: ¿son los fonones entidades físicas reales o simplemente una construcción matemática para describir las vibraciones atómicas? La respuesta no es sencilla, pues ninguna de estas interpretaciones resulta más apropiada que la otra. Sin embargo, existen razones de peso para describir las vibraciones en términos de fonones.⁵⁷ La razón principal radica en que el intercambio de energía en un sólido no ocurre a través de un átomo individual, sino mediante cantidades discretas de energía. Un ejemplo claro se observa en el intercambio de energía de un fotón con un sólido: este proceso ocurre a través de cuantos de energía bien definidos y no por la energía de un átomo particular.⁵⁸

⁵⁶ Maldovan, ver n. 7; Bardeen, ver n. 8.

⁵⁷ Hernán Lucas Accorinti et al. "The Case of Phonons: Explanatory or Ontological Priority". En: *Current Debates in Philosophy of Science: In Honor of Roberto Torretti*. Ed. por Cristián Soto. Cham: Springer International Publishing, 2023, págs. 419-440. DOI: 10.1007/978-3-031-32375-1_16.

⁵⁸ Bardeen, ver n. 8; Karl W. Böer y Udo W. Pohl. "Photon-Phonon Interaction". En: *Semiconductor Physics*. Cham: Springer International Publishing, 2016, págs. 1-36. DOI: 10.1007/978-3-319-06540-3_11-1.

Podría resultar intuitivo representar a los fonones como un conjunto de átomos vibrando de manera independiente. Sin embargo, esta visión se aleja de su verdadera naturaleza física.⁵⁹ En realidad, los fonones corresponden a combinaciones colectivas de múltiples estados de vibración que dependen tanto del vector de onda \mathbf{k} como de la frecuencia ω .⁶⁰

En este contexto, el tratamiento habitual que asume a cada fonón como una vibración aislada no proporciona una descripción precisa. Este enfoque es utilizado en múltiples trabajos que intentan estimar el momento magnético fonónico,⁶¹ al tratar el momento magnético como una propiedad localizada e ignorar la naturaleza colectiva de los fonones, se puede llegar a estimaciones que no reflejan adecuadamente su comportamiento real. Por esta razón, la descripción del momento magnético en términos de un gas de fonones, conformado por todas estas combinaciones, resulta más conveniente.

Frente a las limitaciones de estos modelos locales, se propone aquí un modelo efectivo fundamentado en la naturaleza colectiva del gas de fonones. El pilar de esta propuesta es una analogía directa con el magnetismo itinerante en los electrones: así como el magnetismo emerge de un desequilibrio de estados de espín, el magnetismo fonónico debe emerger de un desequilibrio de la densidad de estados resuelta por momento angular fonónico.

Sin embargo, este enfoque aborda un desafío conceptual: a diferencia de los electrones, que poseen un momento magnético intrínseco e idéntico (μ_B), cada modo fonónico (\mathbf{k}, ω) contribuye de manera única al momento total. Por lo tanto, en lugar de un magnetón fonónico universal (En principio, inexistente), se debe definir en una primera aproximación una razón giromagnética fonónica efectiva que pondere la contribución colectiva de todo el gas.

De este modo, basado en este marco físico, se propone la siguiente expresión para la estimación del momento magnético fonónico por celda

$$M_{ph}^{\alpha} = \gamma \int [\ell_{i\sigma}^{\uparrow\alpha}(\omega) - \ell_{i\sigma}^{\downarrow\alpha}(\omega)] d\omega, \quad (31)$$

⁵⁹ John S Reid. "Phonon gas". En: *Physics Education* 11.5 (1976), pág. 348. DOI: 10.1088/0031-9120/11/5/007.

⁶⁰ Dove, ver n. 3; Kaxiras, ver n. 5.

⁶¹ Juraschek y Spaldin, ver n. 20; Zhang et al., "Gate-Tunable Phonon Magnetic Moment in Bilayer Graphene", ver n. 20; Chaudhary et al., ver n. 20.

donde la integral representa el desequilibrio entre estados con momento angular sobre el rango de frecuencias de interés. El término γ representa la razón giromagnética efectiva del gas de fonones, la cual se propone estimar de la siguiente manera:

$$\gamma = \sum_i \frac{Q_i \hbar}{2\zeta M_i}. \quad (32)$$

La forma de γ se construye a partir de la definición giromagnética para un cuerpo rotando de manera clásica. Los componentes de esta ecuación se definen a partir de parámetros calculables desde primeros principios, Q_i y M_i son las NACs y la masa asociada a cada átomo i en la celda unitaria. ζ es un factor de ponderación adimensional que cuantifica la contribución relativa de cada especie atómica i al gas fonónico. Este factor se determina a partir de la densidad proyectada por átomo, pDOS, en el rango de frecuencias de integración. Finalmente, la constante de Planck reducida proviene de contar los estados por momento angular fonónico.

De esta manera podemos estimar en primera aproximación con este modelo el momento magnético fonónico por componente por celda. Es importante subrayar que esta formulación se presenta como un modelo efectivo. Su fortaleza no radica en una derivación matemática rigurosa, sino en su base física y en el uso de parámetros fundamentales y calculables por primeros principios. Para el momento magnético por celda en la dirección \mathbf{z} tenemos:

$$M_{ph}^z = m_z^\uparrow - m_z^\downarrow = \gamma \int \ell_{i\sigma}^\uparrow(\omega) d\omega - \gamma \int \ell_{i\sigma}^\downarrow(\omega) d\omega, \quad (33)$$

De igual manera se puede formular para las dos direcciones restantes, es decir a lo largo del eje x y el eje y .

2.4. Aspectos computacionales: Flujo para la estimación del momento magnético

En esta sección se describe el flujo de trabajo utilizado para estimar el momento magnético siguiendo la metodología propuesta en la sección anterior. El diagrama de la Figura 3 muestra dicho flujo de trabajo. Las cajas cuadradas representan el inicio de un cálculo con un programa o código determinado, mientras que los paralelogramos indican el tipo de cálculo específico realizado. Los cálculos que resultan de las implementaciones desarrolladas en el grupo de investigación *FICOMACO* se

representan mediante hexágonos.

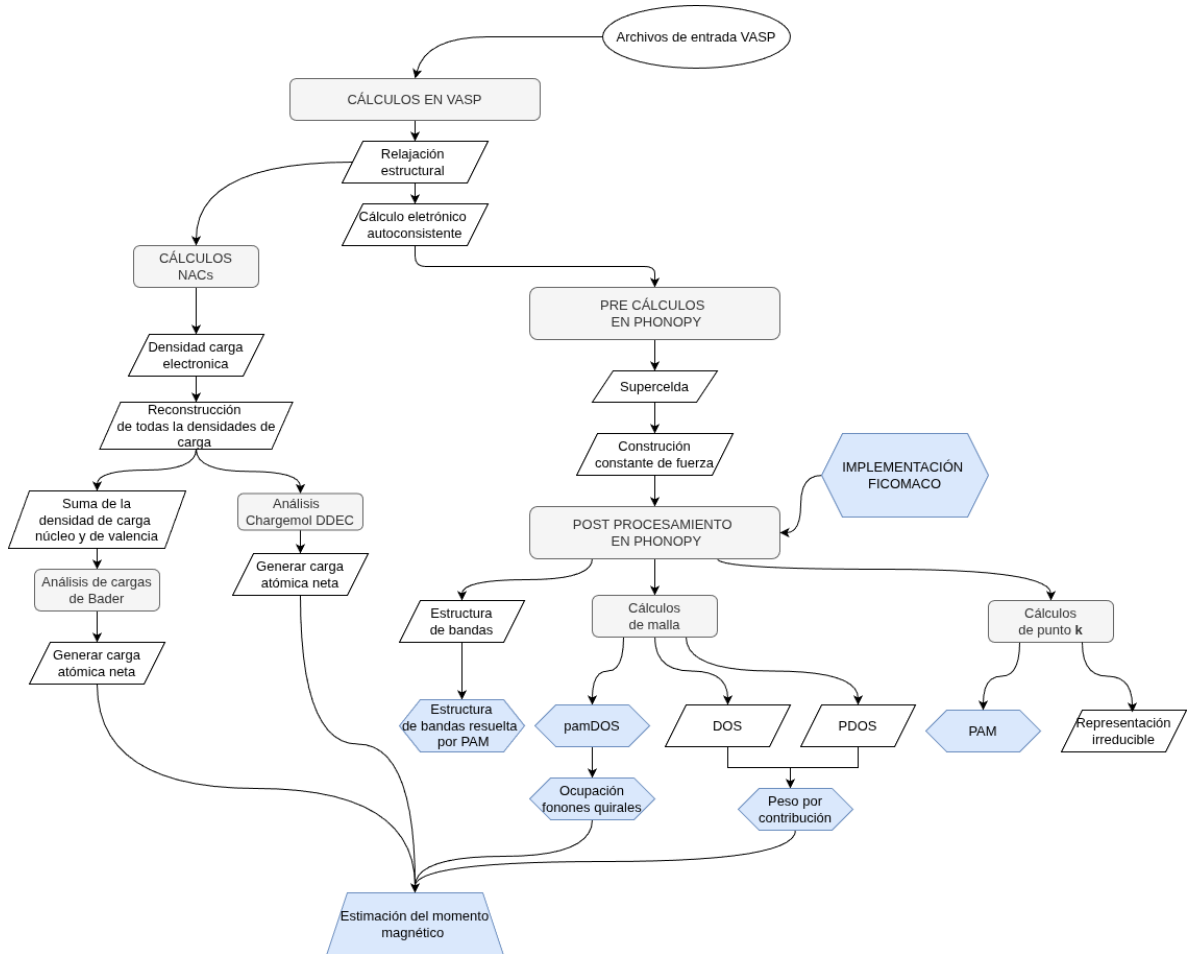
En primer lugar, es necesario realizar la optimización estructural, es decir, determinar las posiciones atómicas que minimizan la energía total del sistema. Posteriormente, se llevan a cabo los cálculos autoconsistentes para obtener la densidad de carga electrónica, la cual es necesaria como punto de partida para los cálculos de fonones y de las NACs. En este último caso, es indispensable reconstruir la densidad de carga total, que incluye la contribución del núcleo, la densidad de carga atómica superpuesta y la densidad de carga de valencia, todas calculadas explícitamente. Los cálculos anteriores se realizaron empleando el paquete *VASP*.⁶²

En el caso de los fonones, basta con realizar el cálculo autoconsistente. Una vez obtenidos estos resultados, se utiliza el código *PHONOPY*⁶³ para construir la matriz de constantes de fuerza. Para el cálculo de la constante de fuerza se puede utilizar el método de diferencias finitas o teoría de la perturbación. *PHONOPY* es un código de acceso libre que permite el cálculo de las propiedades fonónicas en las aproximaciones armónica y cuasiharmónica. Entre sus principales funcionalidades se incluyen el cálculo de la estructura de bandas, la densidad de estados total y parcial, la matriz dinámica, los vectores de polarización y las frecuencias de los modos fonónicos.

⁶² Hafner y Kresse, ver n. 24.

⁶³ Togo, ver n. 26.

Figura 3. Flujo de trabajo para la estimación del momento magnético fonónico.



Además de las funcionalidades originales, en el grupo de investigación *FICOMACO* de la Universidad Industrial de Santander (UIS) se desarrolló una versión extendida de *PHONOPY*.⁶⁴ Esta versión aprovecha las rutinas base del código para incorporar el cálculo del momento angular fonónico (PAM), la densidad de estados resuelta por momento angular (*pamDOS*) y la proyección del momento angular sobre la estructura de bandas.

⁶⁴ Brayan B. *phonopy-1: Modified version with pam_ldos_integration branch*. Ver. *pam_ldos_integration*. Custom branch for integration based on the original Phonopy project. GitHub. 2025. URL: https://github.com/brayanb1701/phonopy-1/tree/pam_ldos_integration (visitado 27-10-2025).

Cabe resaltar que *PHONOPY* considera únicamente el tratamiento convencional de los fonones, es decir, en la ecuación 10 la matriz G se asume nula. En consecuencia, las implementaciones actuales resultan insuficientes para el estudio de sistemas quirales magnéticos. No obstante, en sistemas quirales no magnéticos, tanto las implementaciones del grupo como el propio *PHONOPY* permiten una descripción adecuada del momento angular fonónico, y por extensión, una estimación consistente del momento magnético fonónico.

Por otro lado, los pesos asociados a las contribuciones en la ecuación correspondiente se determinaron a partir del porcentaje de contribución en la pDOS. Para ello, se calcularon tanto la densidad de estados total (DOS) como pDOS. Dado que la pDOS está proyectada sobre cada especie atómica, al integrar la pDOS de cada especie y compararla con la integral total de la DOS, es posible obtener el peso relativo de cada tipo de átomo en el sistema.

Finalmente, se calcularon las cargas de Bader y DDEC6. Los precálculos necesarios para la reconstrucción de la densidad de carga requerida en la obtención de las NACs se realizaron en *VASP*. Una vez obtenidas por separado las diferentes contribuciones a la densidad de carga (núcleo, atómica superpuesta y de valencia), se generaron las NACs utilizando los códigos disponibles.⁶⁵

⁶⁵ Henkelman Group, ver n. 47; ThomasAmanz / Project DDEC, ver n. 49.

3. ESTIMACIÓN DEL MOMENTO MAGNÉTICO DE LOS FONONES QUIRALES

Como se desarrolló en las secciones anteriores, la metodología para la estimación del momento magnético fonónico en sistemas cristalográficos quirales será aplicada en este capítulo a dichos sistemas. Antes de proceder con esos cálculos con el fin de comprobar la validez tanto de la metodología como de los códigos implementados, se realiza en primer lugar un cálculo de primeros principios en un material centro simétrico no magnético. De acuerdo con el análisis presentado en el capítulo 2, desde el punto de vista de la simetría, estos materiales no poseen momento angular y, por ende, los fonones no inducen un momento magnético.

En este trabajo de investigación se demostró que el origen del momento magnético puede deberse a dos fuentes. Debido a que en la actualidad todos los programas para el cálculo de los fonones están basados en la diagonalización de la matriz dinámica, esto implica que en el caso de materiales donde se aplica o existe un campo magnético interno la descripción resulta insuficiente. Con el fin de esbozar el comportamiento se construye un modelo para describir el comportamiento al aplicar un campo magnético a un compuesto quiral. Finalmente, en este capítulo se realizó un contraste de los resultados encontrados para el momento magnético de los fonones quirales con las teorías actuales en la literatura.

3.1. Detalles computacionales

Los cálculos DFT para las propiedades electrónicas y estructurales se realizaron utilizando el código *VASP*,⁶⁶ dentro del esquema del proyector de ondas aumentadas (PAW, por sus siglas en inglés). La energía de intercambio y correlación se trató mediante la aproximación del gradiente generalizado (GGA, por sus siglas en inglés), siguiendo la parametrización de Perdew–Burke–Ernzerhof (PBE)⁶⁷ para todos los sistemas.

⁶⁶ Hafner y Kresse, ver n. 24.

⁶⁷ John P. Perdew et al. "Restoring the Density-Gradient Expansion for Exchange in Solids and Surfaces". En: *Phys. Rev. Lett.* 100 (13 2008), pág. 136406. DOI: 10.1103/PhysRevLett.100.136406.

Para el sistema $BaTiO_3$, se utilizó un corte de energía de 520 eV en la expansión en ondas planas y un muestreo de puntos k de $6 \times 6 \times 6$ dentro de la celda unitaria de cinco átomos. Por otro lado, para los materiales quirales se empleó una energía de corte de 600 eV en la expansión en ondas planas y una malla de puntos k de $5 \times 5 \times 3$ correspondiente a la celda unitaria de nueve átomos.

Los cálculos de fonones se realizaron mediante *PHONOPY*,⁶⁸ utilizando una supercelda de $2 \times 2 \times 2$ y la misma malla de puntos k empleada en el paso anterior. La construcción de las constantes de fuerza se llevó a cabo utilizando la teoría de la perturbación del funcional de la densidad (DFPT, por sus siglas en inglés). Finalmente, el cálculo de la DOS, pDOS y el *pamDOS* se realizó en una malla de integración de $31 \times 31 \times 31$ para ambos sistemas.

3.2. Estimación del momento magnético en $BaTiO_3$ (SG.221 y SG.99)

Las perovskitas han recibido gran atención debido a sus propiedades multifuncionales.⁶⁹ Características como la ferroelectricidad están presentes tanto en óxidos como en fluoruros de perovskita.⁷⁰ Asimismo, se han reportado propiedades de piezoelectricidad, dielectricidad y magnetoelectricidad en estos compuestos. Todo lo anterior convierte a las perovskitas en materiales altamente atractivos para diversas aplicaciones tecnológicas.

El titanato de bario ($BaTiO_3$, BTO) es uno de las perovskitas más estudiados debido a sus transiciones de fase.⁷¹ A temperaturas superiores a 398 K, el BTO es paraeléctrico y cristaliza en una estructura cúbica correspondiente al grupo espacial $Pm\bar{3}m$ (SG. 221). Al descender la temperatura, el BTO experimenta tres transiciones de fase sucesivas: primero a una ferroeléctrica tetragonal $P4mm$ (SG. 99) a 398 K, luego a una fase ortorrómbica $Amm2$ (SG. 38) a 281 K, y finalmente a una

⁶⁸ Togo, ver n. 26.

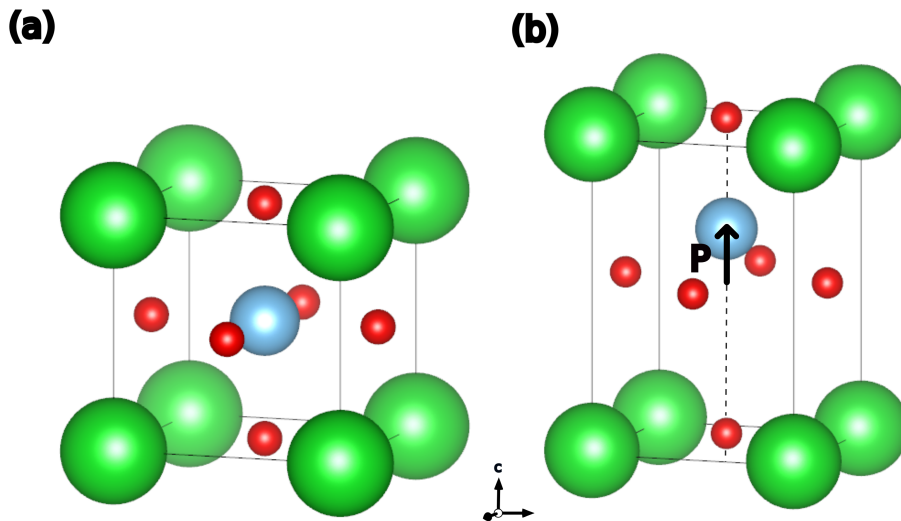
⁶⁹ M. E. Lines y A. M. Glass. *Principles and Applications of Ferroelectrics and Related Materials*. Oxford University Press, feb. de 2001. DOI: 10.1093/acprof:oso/9780198507789.001.0001.

⁷⁰ A. C. Garcia-Castro et al. "Geometric ferroelectricity in fluoroperovskites". En: *Phys. Rev. B* 89 (10 2014), pág. 104107. DOI: 10.1103/PhysRevB.89.104107.

⁷¹ H. D. Megaw. "Origin of ferroelectricity in barium titanate and other perovskite-type crystals". En: *Acta Crystallographica* 5.6 (1952), págs. 739-749. DOI: <https://doi.org/10.1107/S0365110X52002069>.

fase romboédrica $R\bar{3}m$ (SG. 166) a 202 K.⁷²

Figura 4. Celda unitaria $BaTiO_3$: (a) fase cúbica centrosimétrica (b) fase ferroeléctrica tetragonal. El vector de polarización se muestra con la flecha negra. Ba, Ti y O siguen los colores verde, azul y rojo respectivamente.



Entre estas fases, la única que pertenece a un grupo espacial centrosimétrico es la fase cúbica. Dado que esta perovskita no presenta magnetismo, en dicha fase se espera un momento magnético nulo. En contraste, la fase tetragonal rompe la simetría de inversión espacial, lo que da lugar a un momento magnético fonónico distinto de cero. Resulta particularmente interesante que, al tratarse de una fase polar, se abre la posibilidad de controlar dicho momento magnético mediante un campo eléctrico externo.⁷³ No obstante, en esta sección nos enfocaremos en demostrar la validez de nuestro análisis para el caso centrosimétrico $Pm\bar{3}m$ (SG. 221) y el caso tetragonal $P4mm$ (SG. 99), ambos no magnéticos.

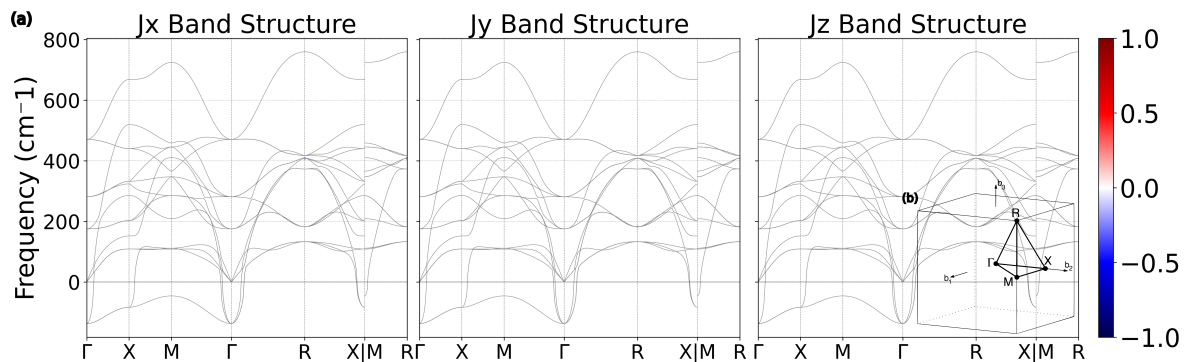
⁷² Jingtong Zhang et al. "Structural phase transitions and dielectric properties of $BaTiO_3$ from a second-principles method". En: *Phys. Rev. B* 108 (13 2023), pág. 134117. DOI: 10.1103/PhysRevB.108.134117.

⁷³ Hiroki Ueda et al. "Chiral phonons in polar $LiNbO_3$ ". En: *Nature Communications* 17.1 (2025), pág. 212. DOI: 10.1038/s41467-025-66911-5; Kevin Moseni, Richard B. Wilson y Sinisa Coh. "Electric field control of phonon angular momentum in perovskite $BaTiO_3$ ". En: *Phys. Rev. Mater.* 6 (10 2022), pág. 104410. DOI: 10.1103/PhysRevMaterials.6.104410.

3.2.1. Momento angular fonónico, pamDOS y estimación del momento magnético fonónico

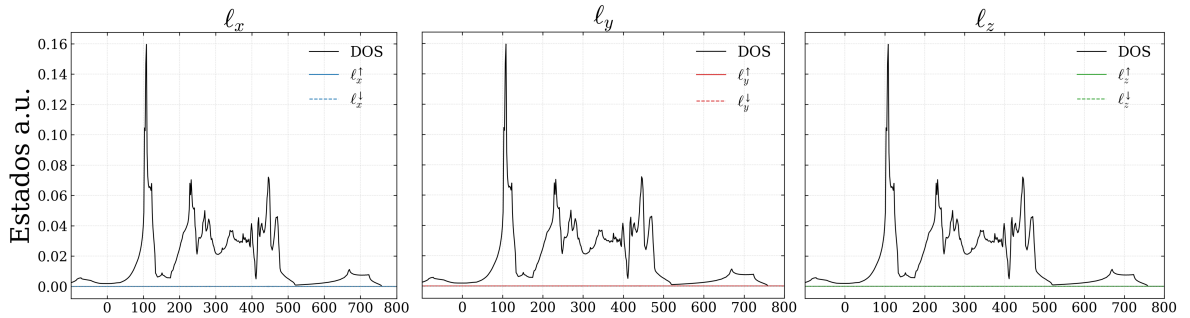
Para describir el comportamiento del momento angular fonónico, se proyecta su contribución sobre la relación de dispersión a lo largo del camino de alta simetría en la zona de Brillouin, como se muestra en la Fig. 5b. En la Fig. 5a se observa que, a lo largo de las tres direcciones cartesianas, ningún modo fonónico presenta momento angular distinto de cero. No obstante, esta representación corresponde únicamente a un subconjunto de la zona de Brillouin y, por tanto, no constituye una prueba concluyente de que el sistema carezca por completo de modos con momento angular capaz de inducir un momento magnético.

Figura 5. Relación de dispersión resuelta por PAM en el $BaTiO_3$ paraeléctrico: (a) Proyección del momento angular en las tres direcciones cartesianas sobre las bandas. (b) Primera zona de Brillouin con los puntos y líneas de alta simetría. En la anterior figura, la barra de colores denota las direcciones up- y down- para el momento angular fonónico.



Para verificar de manera global si alguno de los modos fonónicos en la zona de Brillouin exhibe momento angular, se emplea el pamDOS. Este permite contabilizar los estados en toda la zona de Brillouin que puedan contribuir al momento angular. En la Fig. 6 se compara el DOS total con el pamDOS, observándose que no existe contribución finita de momento angular en ninguna de las tres direcciones. En otras palabras, todos los modos fonónicos de este compuesto son estrictamente lineales, confirmando la ausencia de momento angular fonónico y, consecuentemente, la imposibilidad de generar un momento magnético fonónico en esta fase.

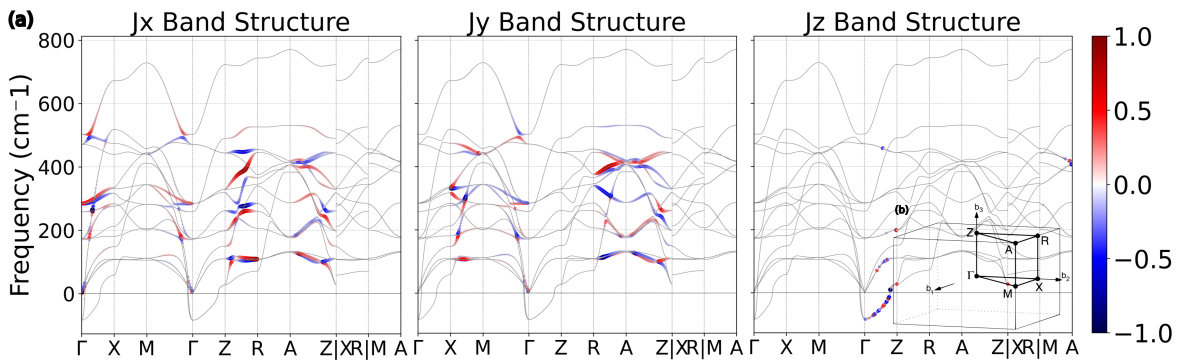
Figura 6. Contraste del DOS vs pamDOS en las tres direcciones para el $BaTiO_3$ - paraeléctrico. En el anterior, el DOS esta denotado con color negro mientras que el pam-DOS esta en colores azul, rojo, y verde para las direcciones x , y , y z , respectivamente.



Por otro lado, en la Fig. 7a se observa que, en la fase tetragonal del $BaTiO_3$, sí aparecen modos fonónicos con momento angular distinto de cero a lo largo del camino de alta simetría. En el segmento $\Gamma - X$ y $Z - R$ se pueden observar estados con momento angular en el plano $k_z k_y$ en color rojo para levógiros y azul para movimientos dextrógiros. Lo mismo sucede $M - \Gamma$ y $R - A$ en este caso para el plano $k_z k_x$ y $\Gamma - Z$ para el plano $k_y k_x$.

Además de estos modos confinados en planos bien definidos, en los trayectos $M - \Gamma$ y $A - Z$ también aparecen modos que no se encuentran restringidos a un solo plano, dando lugar a componentes de momento angular simultáneamente en las direcciones x y y .

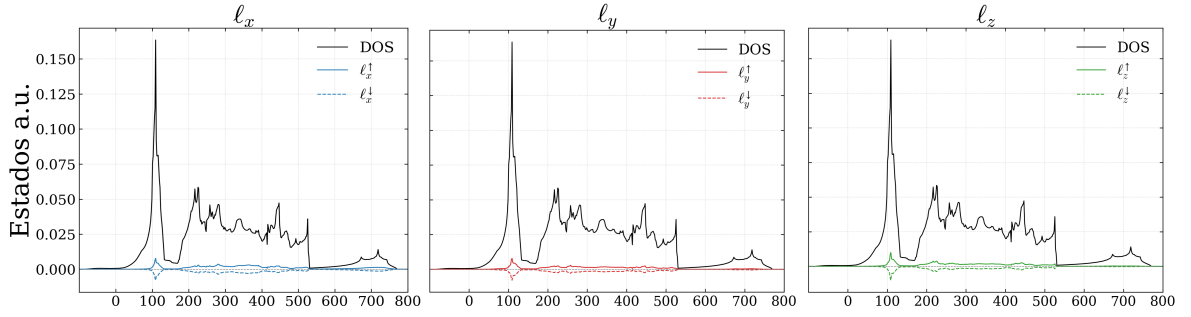
Figura 7. Relación de dispersión resuelta por PAM en el $BaTiO_3$ - ferroeléctrico: (a) Proyección del momento angular en las tres direcciones sobre las bandas. (b) Primera zona de Brillouin, líneas y puntos de alta simetría.



Si bien la proyección del momento angular sobre un camino de alta simetría permite identificar los

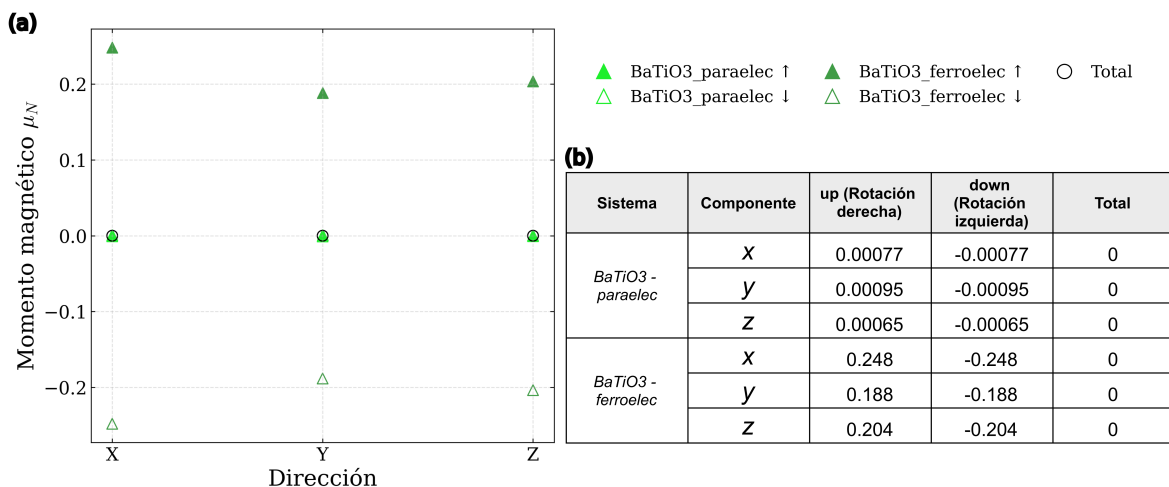
modos que presentan momento angular, esta representación sigue siendo parcial, ya que no ofrece una visión completa sobre toda la zona de Brillouin. Por esta razón de nuevo se calcula el pamDOS, mostrado en la Fig. 8. A diferencia del caso paraeléctrico, ahora aparece una población finita de estados con momento angular en las tres direcciones. Aunque esta población es relativamente pequeña en comparación con el DOS total, su presencia es suficiente para generar un momento magnético fonónico distinto de cero.

Figura 8. Contraste del DOS vs pamDOS en las tres direcciones para el $BaTiO_3$ - ferroeléctrico. Las línea continua correspondiente a estados levógiros y la línea discontinua para estados dextrógiros.



Para las dos fases del $BaTiO_3$ se calcularon los pesos por especie. Los resultados correspondientes se presentan en el Anexo 3. Por otro lado, se emplearon las cargas DDEC6 los valores calculados para las dos fases se encuentran en la Fig 15. A partir de estos valores se estima el momento magnético inducido mediante la expresión propuesta en este trabajo de investigación (ecuación 33). Los resultados muestran que en la tetragonal existe un momento magnético distinto de cero para cada componente del orden ≈ 0.24 magnetones nucleares. En contraste, aunque en la fase cúbica también aparece un momento magnético, este se atribuye al error computacional y resulta tres órdenes de magnitud menor que en la fase tetragonal. Dada la tolerancia empleada en los cálculos, dicho valor puede considerarse efectivamente cero. Estos resultados confirman que la implementación realizada es consistente con la teoría desarrollada.

Figura 9. Estimación del momento magnético en el BaTiO3:(a) Comparación del momento magnético estimado en las dos fases (b) Tabla 1. Valores del momento magnético con NECs DDC6.



3.3. Estimación del momento magnético en la familia MSi_2 , $M = V, Nb, y Ta$ (SG. 180 y SG.181)

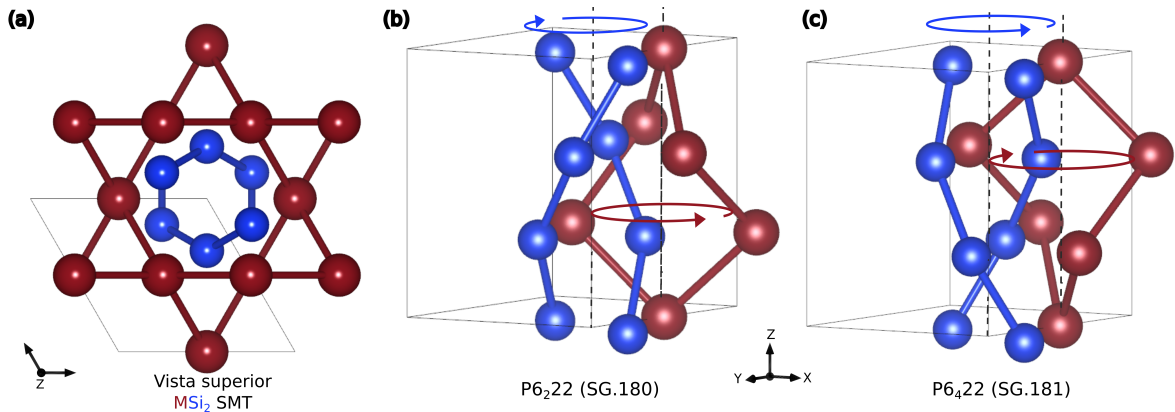
Como prototipo para los cálculos en materiales quirales, se emplea la familia de compuestos conocida como siliciuros, donde el silicio se combina con un elemento generalmente más electropositivo. Entre ellos, los siliciuros de metales de transición (SMT) resultan particularmente relevantes debido a sus aplicaciones en dispositivos microelectrónicos.⁷⁴ Como su nombre lo indica el elemento que acompaña el silicio es un metal de transición. Propiedades como el calor específico, el transporte, así como las características magnéticas y ópticas de estos materiales han sido ampliamente estudiadas.⁷⁵ Los SMT principalmente cristalizan en estructuras hexagonales $P6_222$ y $P6_422$ (SG. 180 y

⁷⁴ F. Nava et al. "Electrical and optical properties of silicide single crystals and thin films". En: *Materials Science Reports* 9.4 (1993), págs. 141-200. DOI: [https://doi.org/10.1016/0920-2307\(93\)90007-2](https://doi.org/10.1016/0920-2307(93)90007-2).

⁷⁵ G. Guizzetti et al. "Optical and electrical characterization of VSi2 and NbSi2 single crystals". En: *Applied Surface Science* 73 (1993), págs. 237-242. DOI: [https://doi.org/10.1016/0169-4332\(93\)90172-8](https://doi.org/10.1016/0169-4332(93)90172-8).

181), con nueve átomos por celda unitaria. Estos compuestos suelen describirse como un conjunto de mono capas MSi_2 con un apilamiento tipo ABCABC... a lo largo del eje hexagonal c , lo que da lugar a cadenas tanto de silicio como de los metales de transición.

Figura 10. Familia MSi_2 SMT: (a) Vista superior de celda unitaria. (b), (c) Cadena formada por los silicios y MT en el SG. 180. y SG. 181 respectivamente.

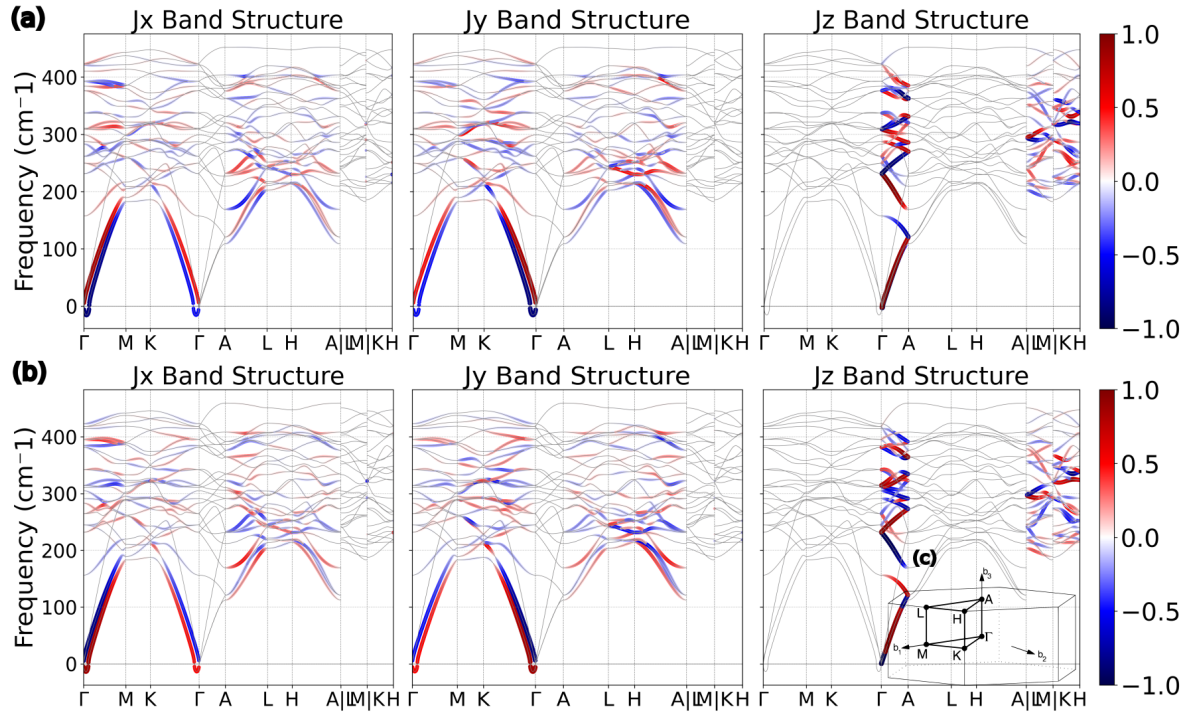


3.3.1. Cálculos: Momento angular fonónico, pamDOS y momento magnético fonónico

Como se mencionó en capítulos anteriores, en los materiales quirales el momento magnético fonónico es naturalmente distinto de cero debido a las condiciones de simetría. En esta sección se presentan los resultados obtenidos para el VSi_2 en los grupos espaciales 180 y 181. En el Anexo 4 se pueden consultar los resultados correspondientes a los sistemas $NbSi_2$ y $TaSi_2$. Por otro lado, en el Anexo 3 se presentan los cálculos asociados a la contribución de cada especie atómica.

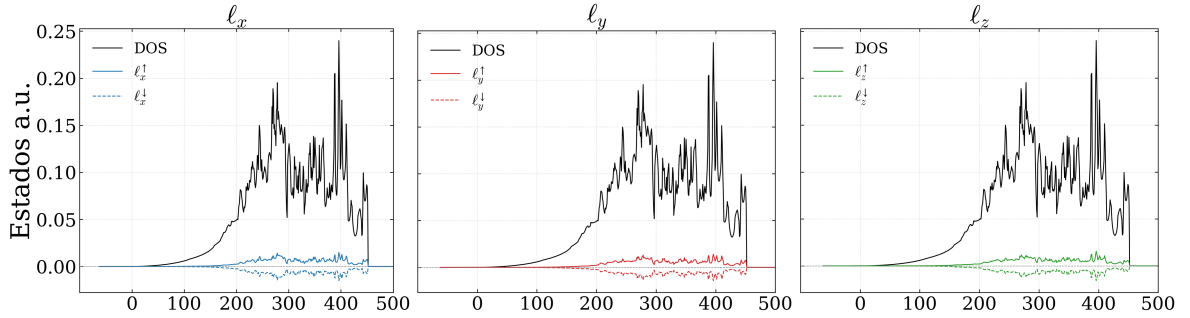
Al proyectar el momento angular sobre las bandas se observa nuevamente que, para ambos grupos espaciales, existen modos con momento angular distinto de cero. En este caso, la combinación de modos con momento angular es considerablemente compleja, y únicamente en los segmentos $\Gamma - Z$, $L - M$ y $K - H$ se identifica un momento angular bien definido en la dirección z (Fig. 11).

Figura 11. Relación de dispersión resuelta por PAM en el VSi_2 : (a) Para SG. 180. (b) Para SG. 181. (c) Primera zona de Brillouin, líneas y puntos de alta simetría.



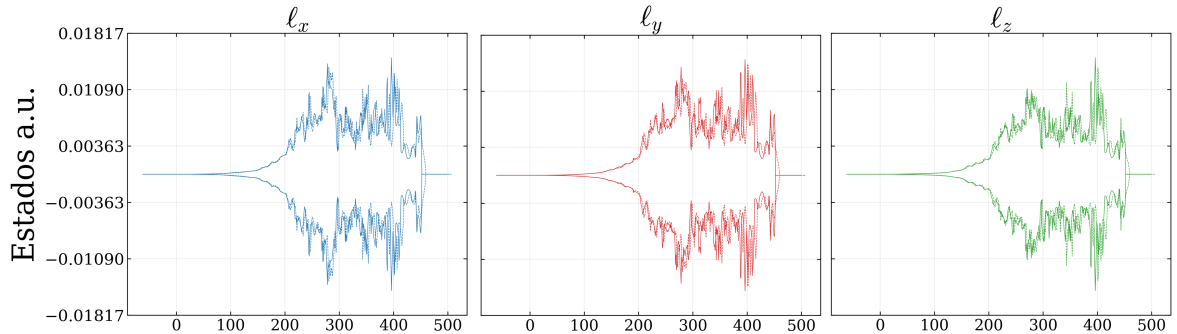
Además, como se aprecia en la Fig. 12, el pamDOS revela cómo se pueblan los estados con momento angular. Si se examinan con detalle las relaciones de dispersión de los grupos espaciales 180 y 181 (Fig. 11a y 11b), se observa que el sentido de giro del momento angular se invierte entre ambos grupos. Esto se evidencia claramente en el segmento $\Gamma - M$, particularmente en las dos primeras bandas. Este comportamiento sugiere que la manera en que se están poblando los estados con momento angular podría diferir entre los dos grupos espaciales.

Figura 12. Contraste del DOS vs pamDOS en las tres direcciones para el VSi_2 - SG. 180. Las línea continua correspondiente a estados levógiros y la línea discontinua para estados dextrógiros.



Sin embargo, al comparar el pamDOS calculado para los dos grupos espaciales Fig. 13, se observa que son prácticamente idénticos. Esto implica que, aunque el sentido de rotación de los fonones se invierte entre los grupos espaciales, la forma en que se pueblan los estados con momento angular es esencialmente la misma, independientemente del grupo espacial considerado confirmando la naturaleza enantiomirfica de los grupos 180 y 181. Si bien el pamDOS continúa siendo relativamente pequeño en comparación con el número total de estados fonónicos disponibles que podrían portar momento angular, esta población resulta suficiente para inducir un momento magnético fonónico distinto de cero.

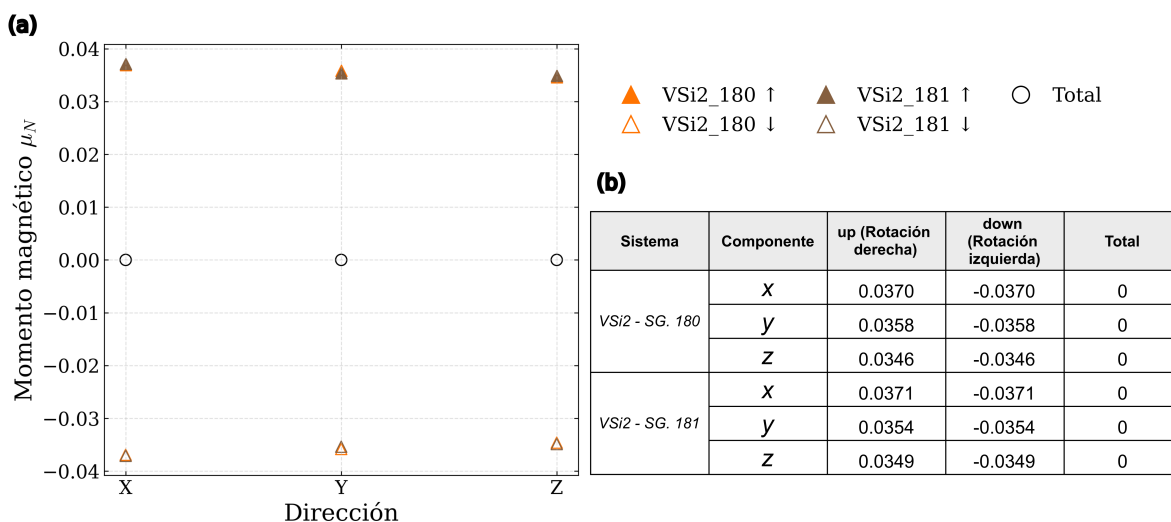
Figura 13. Comparación del pamDOS en las tres direcciones para el VSi_2 : SG. 180 en línea continua y SG. 181 en línea punteada



En conjunto, considerando que tanto las NACs como los pesos por especie son idénticos en ambos grupos espaciales Fig15, y que a pesar del cambio de quiralidad —que invierte el sentido de rotación

de los fonones— el pamDOS permanece prácticamente invariable, esto conduce a que el momento magnético fonónico debe ser casi igual entre pares enantiómeros. En la Tabla 2 se muestran los valores calculados para cada grupo espacial, donde se aprecia que solo difieren a partir de la cuarta cifra decimal.

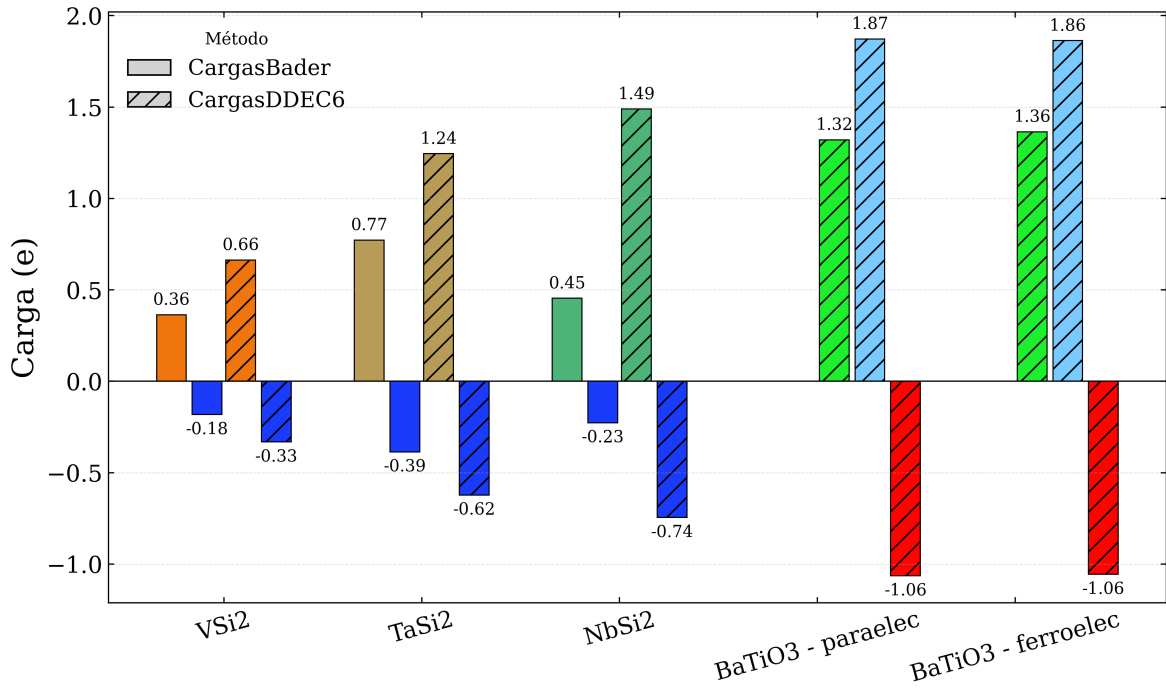
Figura 14. Estimación del momento magnético en el VSi_2 :(a) Comparación del momento magnético estimado en los SG. 180 y 181 (b) Tabla 2. Valores del momento magnético con NECs y DDC6.



Los resultados tanto para las pruebas en las BTO (SG.99) como para los SMT, muestran que los estados con rotaciones dextrógiras y levógiras están poblados de forma prácticamente equivalente en las tres direcciones. Este resultado es consecuente con el análisis que se hace en el capítulo 2 acerca del momento angular en presencia de la simetría \hat{T} . Sin embargo lo anterior implica que, al sumar la contribución de todos los estados en cualquier rango de frecuencias, el momento magnético total se anula.

Este comportamiento es similar al paramagnetismo de Pauli, donde a campo cero los estados de espín están igualmente ocupados y la magnetización neta desaparece. No obstante, al igual que en el caso del paramagnetismo de Pauli, esta cancelación no significa que el momento magnético microscópico sea nulo, sino que el fenómeno se anula únicamente como resultado global de la simetría en la ocupación de los estados.

Figura 15. NAC obtenidas mediante los métodos de partición electrónica: En los sistemas MTi_2 y $BaTiO_3$

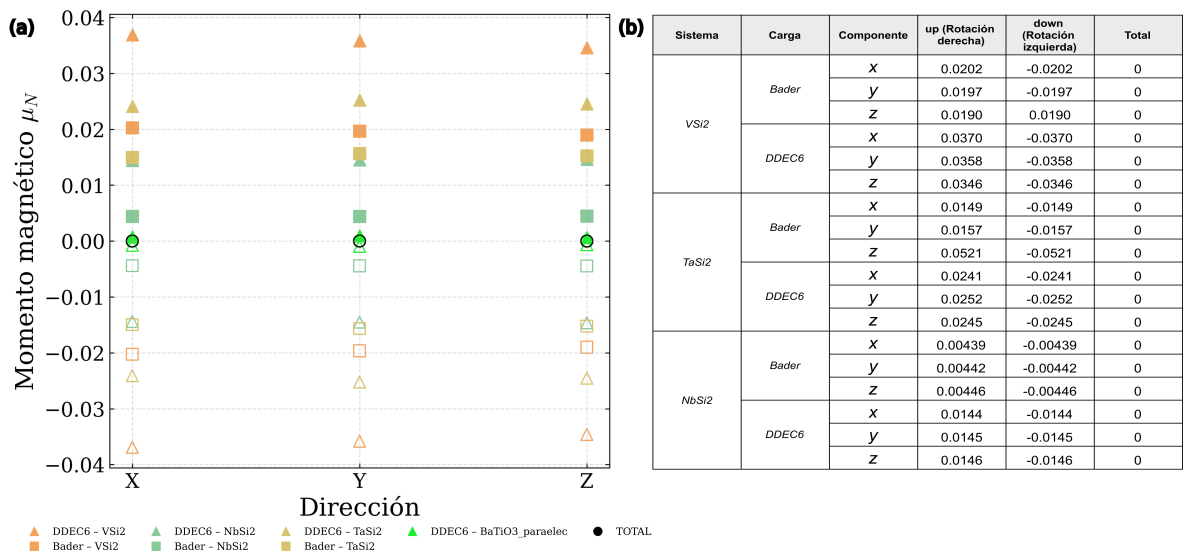


Por otra parte, los órdenes de magnitud aquí reportados se encuentran en el rango del magnetón nuclear. Dentro de la familia de compuestos quirales MSi_2 considerados para la estimación del momento magnético fonónico, el sistema VSi_2 presenta el valor más elevado. Asimismo, puede observarse que el momento magnético estimado es sensible al tipo de cargas empleado en el cálculo: en el caso de VSi_2 , el uso de cargas DDEC6 en lugar de cargas de Bader produce una diferencia cercana al doble, con valores aproximados de $\sim 0.037 \mu_N$ y $\sim 0.020 \mu_N$, respectivamente.

Para los compuestos $TaSi_2$ y $NbSi_2$, los momentos magnéticos obtenidos mediante las cargas DDEC6 fueron aproximadamente $0.025 \mu_N$ y $0.015 \mu_N$, respectivamente. Estas diferencias entre los momentos magnéticos dentro de la familia MSi_2 pueden atribuirse principalmente a dos factores. El primero es la masa de los átomos presentes en la celda unitaria. Aunque todos los compuestos comparten la misma composición estequiométrica (tres átomos de silicio y seis metales de transición), las masas atómicas de dichos metales difieren significativamente: $M_V \approx 50$, $M_{Nb} \approx 90$ y $M_{Ta} \approx 180$

(en unidades atómicas).⁷⁶

Figura 16. Estimación del momento magnético en la familia MSi_2 : (a) Comparación del momento magnético estimado en el SG. 180 (b) Tabla 3. Valores del momento magnético μ_N con NECs Bader y DDC6.



Esta diferencia de masas conlleva que los modos asociados a los átomos más pesados —como el Niobio y el Tántalo— contribuyan principalmente en la región de bajas frecuencias, mientras que el silicio concentra gran parte de su contribución en frecuencias más altas. En contraste, debido a la menor masa del Vanadio, sus contribuciones no están tan restringidas a frecuencias bajas, permitiendo una participación apreciable incluso en regiones de frecuencias intermedias y altas. El segundo factor es la diferencia en las cargas calculadas para el silicio (Ver Fig.15) en cada compuesto, siendo la del sistema VSi_2 la menor entre los tres, lo cual también influye en el valor final del momento magnético fonónico estimado.

⁷⁶ U. Gottlieb et al. "Some transport properties of single crystals of group Va transition metal disilicides". En: *Applied Surface Science* 53 (1991), págs. 247-253. DOI: [https://doi.org/10.1016/0169-4332\(91\)90272-L](https://doi.org/10.1016/0169-4332(91)90272-L).

3.4. Estimación del momento magnético bajo un campo magnético

En la sección anterior describimos el momento magnético fonónico en materiales quirales no magnéticos. Se observó que, si bien existe un momento magnético distinto de cero por componente, la suma total sobre las tres direcciones se anula. En el Capítulo 2, además, mostramos que este momento magnético surge como consecuencia de la ausencia de simetría de inversión espacial. Por otro lado, mencionamos que puede existir otra contribución al momento angular fonónico cuando la simetría de inversión temporal está rota. No obstante, los códigos y las implementaciones utilizadas hasta el momento resultan insuficientes para describir este escenario.

Por esta razón, en esta sección se propone un modelo que permita explorar el comportamiento fonónico cuando se rompe la simetría de inversión temporal. Para ello, se toma uno de los sistemas quirales estudiados anteriormente y se le aplica un campo magnético externo, lo cual rompe explícitamente dicha simetría. Este enfoque proporciona un primer paso hacia la formulación de un marco conceptual que permita describir el momento magnético fonónico en estos casos.

3.4.1. Acoplamiento de Zeeman y desdoblamiento del pamDOS

Al aplicar un campo magnético externo, el momento magnético fonónico interactúa con el campo a través del acoplamiento de Zeeman.⁷⁷ Esta interacción puede describirse mediante un Hamiltoniano de la forma

$$H_{\text{int}} = -\boldsymbol{\mu}_{\text{ph}} \cdot \mathbf{B}, \quad (34)$$

donde $\boldsymbol{\mu}_{\text{ph}}$ es el momento magnético fonónico y \mathbf{B} el campo magnético aplicado.

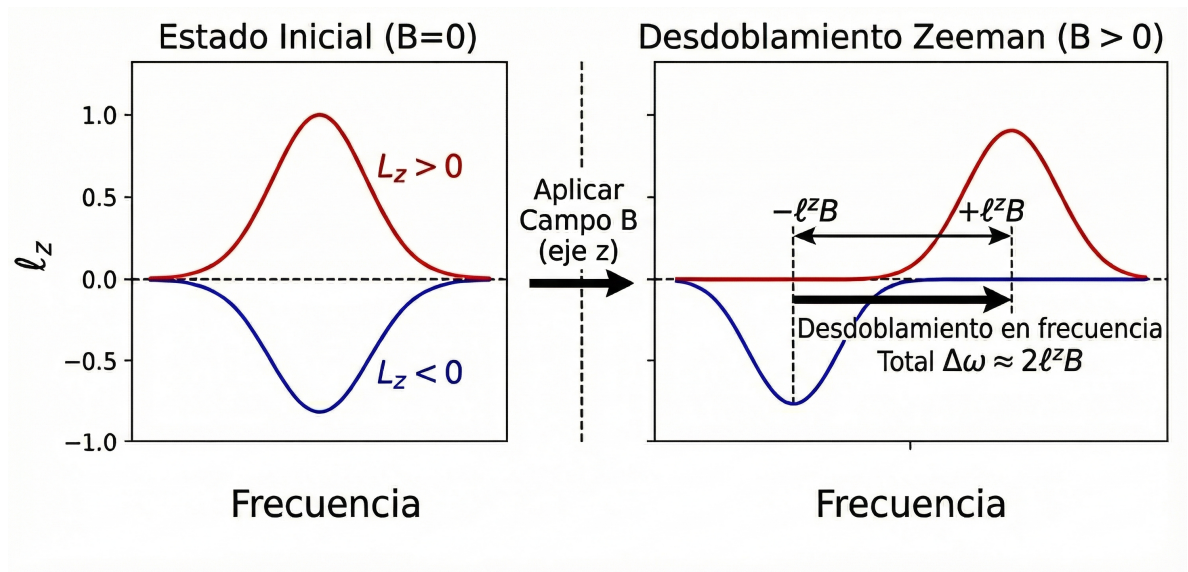
Si se asume que el momento magnético fonónico es proporcional al momento angular fonónico, $\boldsymbol{\mu}_{\text{ph}} \sim \gamma \boldsymbol{\ell}$, y se considera un campo magnético aplicado en la dirección z , $\mathbf{B} = B\hat{z}$, se obtiene

⁷⁷ Juraschek et al., ver n. 15.

$$\begin{aligned}
 H_{\text{int}} &= -\gamma (\boldsymbol{\ell} \cdot \mathbf{B}) \\
 &= -\gamma (\ell^x \hat{x} + \ell^y \hat{y} + \ell^z \hat{z}) \cdot (B \hat{z}) \\
 &= -\gamma \ell^z B.
 \end{aligned}
 \tag{35}$$

Esta expresión muestra que, en principio, únicamente los estados fonónicos con momento angular en la dirección z se ven afectados por el campo magnético aplicado. En consecuencia, solo la componente z del pamDOS experimenta un desdoblamiento en frecuencia, como se ilustra esquemáticamente en la Fig. 17.

Figura 17. Figura esquemática que ilustra el comportamiento del pamDOS en presencia de un campo magnético externo aplicado.



3.4.2. Definición del momento magnético fonónico bajo campo magnético

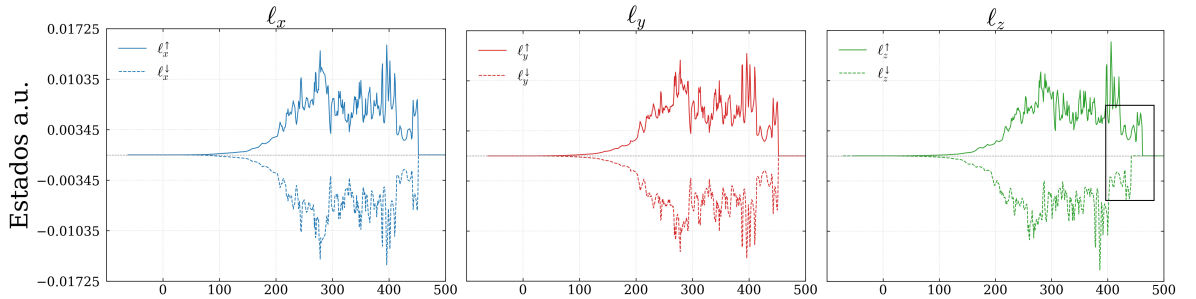
Como consecuencia del desdoblamiento en frecuencia del pamDOS, la definición del momento magnético fonónico se ve modificada. En este contexto, el momento magnético inducido en la dirección z puede expresarse como

$$M_{ph}^z = \gamma \int \left[\ell_{i\sigma}^{\uparrow z}(\omega + \Delta) - \ell_{i\sigma}^{\downarrow z}(\omega - \Delta) \right] d\omega, \quad (36)$$

donde Δ es el desdoblamiento en frecuencia, el cual se espera que sea del orden de $\Delta \sim \ell^z B$. Esta metodología es ampliamente utilizada tanto en estudios teóricos como experimentales para la estimación del momento magnético fonónico.⁷⁸ En la literatura se han reportado valores de Δ que van desde 10^{-4} hasta 10 cm^{-1} , dependiendo del material y de la magnitud del campo magnético aplicado.⁷⁹

Para ilustrar este modelo se emplean los resultados obtenidos para el sistema VSi_2 en el grupo espacial 180. Sobre este sistema se aplica un desplazamiento rígido del pamDOS en la dirección z máximo equivalente a 10 cm^{-1} , congruente con lo reportado en la literatura. El efecto de dicho desplazamiento se muestra en la Fig. 18.

Figura 18. El campo magnético externo aplicado en la dirección z induce un desdoblamiento en frecuencia de la componente z del pamDOS, mientras que las componentes x e y permanecen inalteradas.



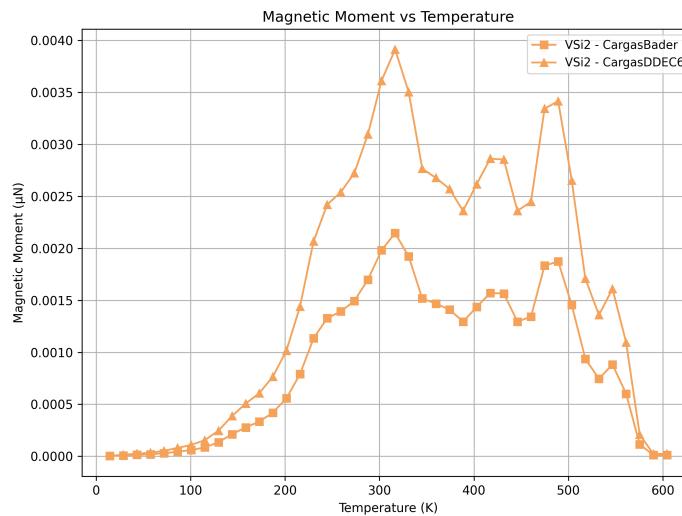
Para interpretar estos resultados resulta útil recurrir nuevamente a la teoría del magnetismo en sistemas electrónicos, en particular al paramagnetismo de Pauli. En dicho caso, la aplicación de un campo magnético desdobra la densidad de estados resuelta por espín y, debido a la existencia del nivel de Fermi, se genera una ocupación asimétrica que conduce a un momento magnético neto distinto de cero.

⁷⁸ Chaudhary et al., ver n. 20.

⁷⁹ Juraschek y Spaldin, ver n. 20.

En contraste, los fonones son excitaciones bosónicas y no existe un nivel de energía análogo al nivel de Fermi que limite la ocupación de los estados. En principio, todos los estados fonónicos pueden poblarse y, además, el aumento de la temperatura activa nuevos modos. Como consecuencia, aun cuando los estados con momento angular en la dirección z experimenten un desplazamiento en frecuencia (Fig. 18), la evaluación de la expresión 36 sobre todo el rango de frecuencias conduce, al igual que en el caso de campo magnético nulo, a un momento magnético fonónico neto igual a cero.

Figura 19. Momento magnético fonónico calculado para el VSi_2 en función de la temperatura.



No obstante, la temperatura desempeña un papel fundamental, ya que determina qué estados fonónicos se activan progresivamente. Como consecuencia del desdoblamiento inducido por el campo magnético, los estados desplazados hacia energías más bajas se ven energéticamente favorecidos. Esto conduce a la aparición de un momento magnético fonónico distinto de cero a temperaturas finitas, a medida que dichos estados comienzan a activarse. Este comportamiento se muestra en la Fig. 19.

La integración de la ecuación 36 se realiza de manera acumulativa por intervalos de frecuencia, donde cada segmento de 10 cm^{-1} equivale aproximadamente a un incremento de 15 K en temperatura. Los cálculos se llevaron a cabo utilizando tanto cargas de Bader como cargas DDEC. En particular, empleando las cargas DDEC, se obtiene un valor máximo del momento magnético fonónico de aproximadamente $0.00394 \mu_N$ a una temperatura de 316.53 K.

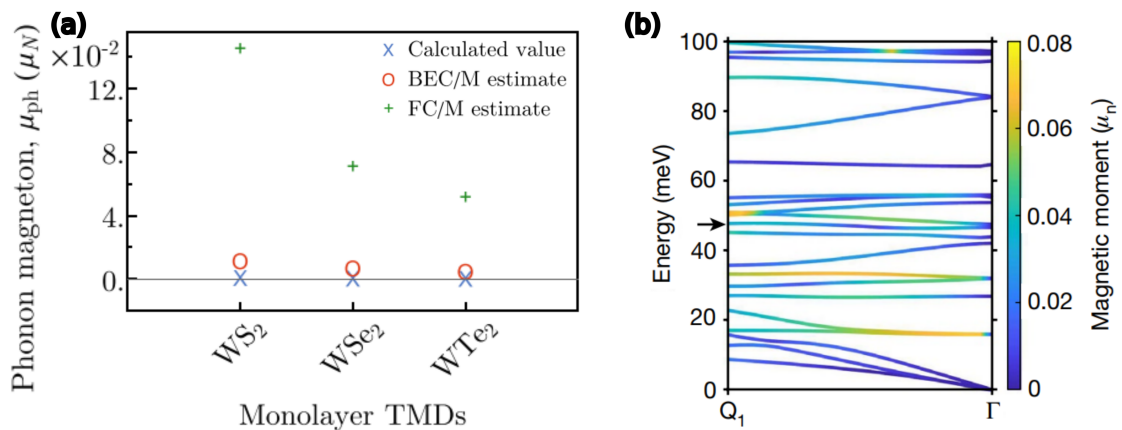
Sin embargo, al extender la integración a todo el espectro de frecuencias, las contribuciones pro-

venientes de estados con sentidos de rotación opuestos se compensan progresivamente. Como resultado, el momento magnético fonónico neto vuelve a anularse aproximadamente a 590 K.

3.5. Contraste con modelos teóricos y resultados previos

En el trabajo de Juraschek y Spaldin,⁸⁰ el momento magnético fonónico en materiales iónicos fue estimado mediante cálculos de primeros principios basados en DFT. En su formulación original, los fonones responsables del momento magnético no son intrínsecos al material, sino que se induce mediante pulsos láser en el infrarrojo medio, los cuales excitan fonones con momento angular bien definido. Posteriormente, los autores extienden y modifican este enfoque para el caso de materiales quirales bidimensionales, donde los fonones quirales sí surgen de manera intrínseca como ya hemos mencionado en este trabajo. Bajo esta aproximación, se reportan momentos magnéticos fonónicos del orden de $10^{-4} \mu_N$ para sistemas quirales 2D Fig. 19a.

Figura 20. Momento magnético reportado: (a) Dicalcogenuros de metales de transición monocapa utilizando las cargas efectivas de Born (BEC) y las cargas formales (FC)⁸¹ (b) Estructura de bandas de fonones coloreada según la magnitud del momento magnético de los fonones.⁸²



Siguiendo una línea metodológica conceptualmente similar, pero extendida a sistemas tridimensionales, se han realizado cálculos del momento magnético fonónico en materiales quirales en bulto,

⁸⁰ Juraschek y Spaldin, ver n. 20.

como el cuarzo quiral (α -SiO₂).⁸³ En este caso, los vectores de polarización y las frecuencias fonónicas también se obtienen a partir de cálculos de primeros principios, manteniendo la base teórica introducida por Juraschek y Spaldin. No obstante, el análisis se restringe a un segmento de la zona de Brillouin, las estimaciones obtenidas indican momentos magnéticos fonónicos que pueden alcanzar valores de hasta $0.08 \mu_N$ Fig. 11b.

En el presente trabajo se reportan momentos magnéticos fonónicos en el rango de $0.004 \mu_N$ a $0.03 \mu_N$ para fonones quirales en materiales quirales. Estas magnitudes son, en principio, consistentes con los órdenes de magnitud obtenidos en los trabajos teóricos previamente mencionados. Sin embargo, existe una diferencia fundamental en el tratamiento de los fonones quirales como excitaciones colectivas definidas sobre toda la zona de Brillouin. Este enfoque permite demostrar que, aunque el momento magnético fonónico existe a nivel de componentes individuales, la contribución total se anula como consecuencia de la simetría de inversión temporal. Incluso al considerar un modelo simplificado en el que dicha simetría se rompe explícitamente, el momento magnético máximo obtenido es del orden de $0.00394 \mu_N$.

Por otro lado, estudios experimentales sobre magnetismo fonónico han reportado momentos magnéticos del orden del magnetón de Bohr. Ejemplos notables incluyen el haluro de tierras raras CeF_3 , con valores de $7 \mu_B$,⁸⁴ el semimetal de Dirac Cd_3As_2 , con $2.7 \mu_B$,⁸⁵ y el trihaluro de tierras raras $CeCl_3$, con valores del orden de $1.4 \mu_B$.⁸⁶ Estas magnitudes superan ampliamente las reportadas tanto en los trabajos teóricos previamente discutidos como en el presente estudio, especialmente si se tiene en cuenta la relación entre el magnetón de Bohr y el magnetón nuclear, $\mu_B \approx 10^3 \mu_N$.

Aunque el origen microscópico de estos momentos magnéticos fonónicos gigantes aún no se comprende por completo, se ha propuesto que emergen de interacciones complejas entre los momentos

⁸³ Hiroki Ueda et al. "Chiral phonons in quartz probed by X-rays". En: *Nature* 618.7967 (2023), págs. 946-950. DOI: 10.1038/s41586-023-06016-5.

⁸⁴ Luo et al., ver n. 21.

⁸⁵ Cheng et al., "A Large Effective Phonon Magnetic Moment in a Dirac Semimetal", ver n. 21.

⁸⁶ Juraschek, Neuman y Narang, ver n. 21.

angulares iónicos y electrónicos.⁸⁷ En este contexto, los órdenes de magnitud observados no pueden explicarse mediante un modelo simple en el que el momento magnético se genere exclusivamente a partir del movimiento circular de cargas asociadas a los fonones quirales, como el considerado en este trabajo. Esta discrepancia pone de manifiesto que los mecanismos responsables del magnetismo fonónico observado experimentalmente involucran procesos más ricos, que van más allá de una descripción puramente iónica y requieren la consideración explícita del acoplamiento electrón–fonón y de efectos cuánticos colectivos.

⁸⁷ Juraschek, Neuman y Narang, ver n. 21; Yafei Ren et al. “Phonon Magnetic Moment from Electronic Topological Magnetization”. En: *Phys. Rev. Lett.* 127 (18 2021), pág. 186403. DOI: 10.1103/PhysRevLett.127.186403.

4. RECOMENDACIONES Y TRABAJO FUTURO

Los cálculos realizados del pamDOS para la familia de compuestos quirales MSi_2 permiten identificar el conjunto total de estados fonónicos que poseen momento angular. No obstante, para obtener información más detallada acerca de qué átomos contribuyen específicamente a la población de estados con momento angular, resulta necesario realizar una proyección adicional resuelta por especie atómica, de manera análoga a lo que se hace en el caso del pDOS.⁸⁸ Esto permitiría llevar a cabo una estimación del momento magnético fonónico por celda por átomo. La implementación de este análisis requeriría el desarrollo de una densidad de estados parcial resuelta por momento angular.

Por otro lado, se ha puesto de manifiesto la necesidad de incorporar, en la ecuación que permite determinar los vectores de polarización y las frecuencias fonónicas, una matriz adicional que tenga en cuenta la ausencia de la simetría de inversión temporal.⁸⁹ Si bien en este trabajo se propuso un modelo sencillo que permite describir este efecto en primera aproximación, una caracterización precisa del magnetismo fonónico exige la implementación explícita de dicha matriz en la resolución exacta de la ecuación de movimiento de los fonones.

Finalmente, los órdenes de magnitud estimados para el momento magnético fonónico resultan consistentes con el movimiento de cargas inducido por los fonones quirales.⁹⁰ Sin embargo, la discrepancia observada con algunos resultados reportados en la literatura sugiere que aún es necesario profundizar en la comprensión de los mecanismos físicos subyacentes al magnetismo fonónico. En particular, las metodologías convencionales — basadas en la resolución de ecuaciones de movimiento que involucran constantes de fuerza interatómicas — parecen ser insuficientes para capturar de manera completa todas las posibles interacciones entre los fonones quirales y el sistema electrónico.⁹¹

⁸⁸ Togo, ver n. 26.

⁸⁹ Ren et al., “Adiabatic Dynamics of Coupled Spins and Phonons in Magnetic Insulators”, ver n. 27.

⁹⁰ Ueda et al., “Chiral phonons in quartz probed by X-rays”, ver n. 83.

⁹¹ Zhang et al., “Gate-Tunable Phonon Magnetic Moment in Bilayer Graphene”, ver n. 20; Ren et al., “Phonon Magnetic Moment from Electronic Topological Magnetization”, ver n. 87.

5. CONCLUSIONES

En este trabajo de investigación se desarrolló una metodología teórica para la estimación del momento magnético inducido por fonones quirales en sistemas cristalinos quirales. Esta metodología permitió establecer aspectos fundamentales que, hasta el momento, no habían sido considerados de manera explícita en la literatura. En particular, se abordó de forma sistemática el carácter deslocalizado de los momentos magnéticos inducidos por estos modos vibracionales, lo cual tiene implicaciones directas en su interpretación física y en la forma adecuada de evaluar su contribución total.

Una vez establecidas las relaciones que gobiernan el momento angular fonónico en estos sistemas, se mostró que los fonones quirales emergen de manera natural. Asimismo, se evidenció la necesidad de introducir una matriz adicional en la resolución de la ecuación de movimiento cuando se rompe la simetría de inversión temporal, con el fin de describir correctamente la modificación de los vectores de polarización y las frecuencias asociadas.

Esta metodología se aplicó a la familia MSi_2 en los grupos espaciales quirales 180 y 181. Se calculó el momento angular fonónico y la densidad de estados resuelta por momento angular, encontrándose que entre estos pares quirales existe una inversión en el sentido de rotación. No obstante, se observó que la población de fonones con momento angular en cada dirección es idéntica, lo que conduce a un momento magnético total igual en magnitud. Al comparar el pamDOS con la densidad de estados total, se pudo constatar que la población de estados con momento angular es relativamente pequeña en relación con el número total de estados disponibles; sin embargo, resulta suficiente para inducir un momento magnético fonónico.

El pamDOS muestra adicionalmente que, si bien existe un momento magnético no nulo por componente en los materiales quirales, la contribución total se anula al considerar todo el espectro de frecuencias. Además, mediante un modelo simplificado se encontró que, incluso al romper la simetría de inversión temporal, el momento magnético total continúa siendo nulo. Consideramos que los órdenes de magnitud estimados son consistentes con la física subyacente al momento magnético inducido.

Si bien persisten discrepancias con los órdenes de magnitud reportados en algunos materiales, estas no pueden explicarse mediante un modelo simple en el que el momento magnético se genere exclusivamente a partir del movimiento circular de cargas asociadas a los fonones quirales, como el considerado en este trabajo. Tales discrepancias apuntan a mecanismos que van más allá de una descripción puramente iónica y que requieren la consideración explícita del acoplamiento elec-

trón–fonón y de efectos cuánticos colectivos. Aun así, este estudio aporta mayor claridad al campo emergente del magnetismo fonónico.

Vale mencionar que los resultados de este trabajo fueron presentados en la modalidad póster en el congreso internacional E-MRS 2025 Spring Meeting & Exhibit bajo el título PHONON'S MAGNETIC MOMENT IN NON-MAGNETIC CHIRAL MATERIALS: A THEORETICAL ESTIMATION.

BIBLIOGRAFÍA

Accorinti, Hernán Lucas et al. "The Case of Phonons: Explanatory or Ontological Priority". En: *Current Debates in Philosophy of Science: In Honor of Roberto Torretti*. Ed. por Cristián Soto. Cham: Springer International Publishing, 2023, págs. 419-440. DOI: 10.1007/978-3-031-32375-1_16 (vid. pág. 36).

B., Brayan. *phonopy-1: Modified version with pam_ldos_integration branch*. Ver. pam_ldos_integration Custom branch for integration based on the original Phonopy project. GitHub. 2025. URL: https://github.com/brayanb1701/phonopy-1/tree/pam_ldos_integration (visitado 27-10-2025) (vid. pág. 40).

Bader, R.F.W. *Atoms in Molecules: A Quantum Theory*. International Ser. of Monogr. on Chem. Clarendon Press, 1994 (vid. pág. 30).

Bardeen, John. "Electron-phonon interactions and superconductivity". En: *Science* 181.4106 (1973), págs. 1209-1214. DOI: <https://doi.org/10.1126/science.181.4106.1209> (vid. págs. 17, 36).

Barnett, S. J. "Magnetization by Rotation". En: *Phys. Rev.* 6 (4 1915), págs. 239-270. DOI: 10.1103/PhysRev.6.239 (vid. pág. 19).

Blundell, S. *Magnetism in Condensed Matter*. Oxford Master Series in Condensed Matter Physics. OUP Oxford, 2001 (vid. pág. 27).

Böer, Karl W. y Udo W. Pohl. "Photon-Phonon Interaction". En: *Semiconductor Physics*. Cham: Springer International Publishing, 2016, págs. 1-36. DOI: 10.1007/978-3-319-06540-3_11-1 (vid. pág. 36).

Bonini, John et al. "Frequency Splitting of Chiral Phonons from Broken Time-Reversal Symmetry in CrI_3 ". En: *Phys. Rev. Lett.* 130 (8 2023), pág. 086701. DOI: 10.1103/PhysRevLett.130.086701 (vid. pág. 34).

Champagne, Benoit et al. "Assessment of conventional density functional schemes for computing the polarizabilities and hyperpolarizabilities of conjugated oligo-

- mers: An ab initio investigation of polyacetylene chains”. En: *The Journal of Chemical Physics* 109.23 (dic. de 1998), págs. 10489-10498. DOI: 10.1063/1.477731 (vid. pág. 28).
- Chaudhary, Swati et al. “Giant effective magnetic moments of chiral phonons from orbit-lattice coupling”. En: *Phys. Rev. B* 110 (9 2024), pág. 094401. DOI: 10.1103/PhysRevB.110.094401 (vid. págs. 19, 37, 57).
- Cheng, Bing et al. “A Large Effective Phonon Magnetic Moment in a Dirac Semiconductor”. En: *Nano Letters* 20.8 (2020). PMID: 32633978, págs. 5991-5996. DOI: 10.1021/acs.nanolett.0c01983 (vid. págs. 19, 60).
- Cheng, Weiming et al. “Magnetic moments in SmCo 5 and SmCo 5-xCux films”. En: *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism* 25 (ago. de 2012). DOI: 10.1007/s10948-012-1530-4 (vid. pág. 28).
- Choudhuri, Indrani y Donald G. Truhlar. “Calculating and Characterizing the Charge Distributions in Solids”. En: *Journal of Chemical Theory and Computation* 16.9 (2020), págs. 5884-5892. DOI: 10.1021/acs.jctc.0c00440 (vid. pág. 29).
- Coey, J.M.D. y Frédéric Mazaleyrat. *History of magnetism*. Elsevier, 2023. DOI: 10.1016/B978-0-323-90800-9.00155-4 (vid. pág. 18).
- Coh, Sinisa. “Classification of materials with phonon angular momentum and microscopic origin of angular momentum”. En: *Phys. Rev. B* 108 (13 2023), pág. 134307. DOI: 10.1103/PhysRevB.108.134307 (vid. págs. 24, 34).
- Crangle, John. *Solid-state magnetism / John Crangle*. eng. New York: Springer New York, NY, 1991. DOI: <https://doi.org/10.1007/978-1-4615-3920-9> (vid. pág. 27).
- Cui, Yin et al. “The Structure and Magnetic Moment Study of Fe–Si–Al by First-Principles Calculation”. En: *IEEE Transactions on Magnetics* 51.11 (2015), págs. 1-4. DOI: 10.1109/TMAG.2015.2434940 (vid. pág. 28).

- Debye, Peter. “Zur theorie der spezifischen wärmen”. En: *Annalen der Physik* 344.14 (1912), págs. 789-839 (vid. pág. 20).
- Dove, Martin T. *Introduction to lattice dynamics*. Vol. 4. Cambridge Topics in Mineral Physics and Chemistry. Cambridge, United Kingdom: Cambridge University Press, nov. de 1993, págs. xvii + 258. DOI: <https://doi.org/10.1017/CB09780511619885> (vid. págs. 16, 37).
- Eckold, G. “Phonons”. En: *International Tables for Crystallography Volume D: Physical properties of crystals*. Ed. por A. Authier. Dordrecht: Springer Netherlands, 2003, págs. 266-293. DOI: 10.1107/97809553602060000638 (vid. pág. 16).
- Einstein, A y WJ De Haas. “Experimenteller Nachweis der Ampèreschen Molekularströme, 19 Feb 1915”. En: *Deutsche Physikalische Gesellschaft* (1915) (vid. pág. 19).
- Fecher, Gerhard H., Jürgen Kübler y Claudia Felser. “Chirality in the Solid State: Chiral Crystal Structures in Chiral and Achiral Space Groups”. En: *Materials* 15.17 (2022). DOI: 10.3390/ma15175812 (vid. pág. 77).
- Frenkel', Viktor Ya. “On the history of the Einstein–de Haas effect”. En: *Soviet Physics Uspekhi* 22.7 (1979), pág. 580. DOI: 10.1070/PU1979v022n07ABEH005587 (vid. pág. 19).
- Fuess, H et al. “Complete Printed Set of International Tables for Crystallography”. En: *Complete Printed Set of International Tables for Crystallography* (2007). DOI: <https://doi.org/10.1107/97809553602060000001> (vid. pág. 16).
- Garanin, D. A. y E. M. Chudnovsky. “Angular momentum in spin-phonon processes”. En: *Phys. Rev. B* 92 (2 2015), pág. 024421. DOI: 10.1103/PhysRevB.92.024421 (vid. pág. 18).
- Garcia-Castro, A. C. et al. “Geometric ferroelectricity in fluoroperovskites”. En: *Phys. Rev. B* 89 (10 2014), pág. 104107. DOI: 10.1103/PhysRevB.89.104107 (vid. pág. 43).

- Getzlaff, M. *Fundamentals of Magnetism*. Springer Berlin Heidelberg, 2007. DOI: <https://doi.org/10.1007/978-3-540-31152-2> (vid. pág. 27).
- Gottlieb, U. et al. "Some transport properties of single crystals of group Va transition metal disilicides". En: *Applied Surface Science* 53 (1991), págs. 247-253. DOI: [https://doi.org/10.1016/0169-4332\(91\)90272-L](https://doi.org/10.1016/0169-4332(91)90272-L) (vid. pág. 54).
- Grosso, G. y G.P. Parravicini. *Solid State Physics*. Academic Press, 2014. DOI: <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-385030-0.00019-0> (vid. pág. 22).
- Guizzetti, G. et al. "Optical and electrical characterization of VSi₂ and NbSi₂ single crystals". En: *Applied Surface Science* 73 (1993), págs. 237-242. DOI: [https://doi.org/10.1016/0169-4332\(93\)90172-8](https://doi.org/10.1016/0169-4332(93)90172-8) (vid. pág. 48).
- Hafner, J. y G. Kresse. "The Vienna AB-Initio Simulation Program VASP: An Efficient and Versatile Tool for Studying the Structural, Dynamic, and Electronic Properties of Materials". En: *Properties of Complex Inorganic Solids*. 1997, págs. 69-82. DOI: [10.1007/978-1-4615-5943-6_10](https://doi.org/10.1007/978-1-4615-5943-6_10) (vid. págs. 21, 39, 42).
- Hall, Edwin H et al. "On a new action of the magnet on electric currents". En: *American Journal of Mathematics* 2.3 (1879), págs. 287-292. DOI: <https://doi.org/10.2307/2369245> (vid. pág. 17).
- Henkelman Group Center for Computational Materials, UT Austin. *Code: Bader Charge Analysis*. 2025. URL: <https://theory.cm.utexas.edu/henkelman/code/bader/> (visitado 27-08-2025) (vid. págs. 31, 41).
- Juraschek, Dominik M., Tomáš Neuman y Prineha Narang. "Giant effective magnetic fields from optically driven chiral phonons in 4f paramagnets". En: *Phys. Rev. Res.* 4 (1 2022), pág. 013129. DOI: [10.1103/PhysRevResearch.4.013129](https://doi.org/10.1103/PhysRevResearch.4.013129) (vid. págs. 19, 60, 61).
- Juraschek, Dominik M. y Nicola A. Spaldin. "Orbital magnetic moments of phonons". En: *Phys. Rev. Mater.* 3 (6 2019), pág. 064405. DOI: [10.1103/PhysRevMaterials.3.064405](https://doi.org/10.1103/PhysRevMaterials.3.064405) (vid. págs. 19, 37, 57, 59).

- Juraschek, Dominik M. et al. "Chiral phonons". En: *Nature Physics* 21.10 (2025), págs. 1532-1540. DOI: 10.1038/s41567-025-03001-9 (vid. págs. 18, 55).
- Karplus, Robert y JM Luttinger. "Hall effect in ferromagnetics". En: *Physical Review* 95.5 (1954), pág. 1154. DOI: 10.1103/PhysRev.95.1154 (vid. pág. 17).
- Kaxiras, Efthimios. *Atomic and Electronic Structure of Solids*. Cambridge University Press, 2010. DOI: 10.1017/CB09780511755545 (vid. págs. 16, 37).
- Kelvin, W.T.B. *The Molecular Tactics of a Crystal*. Boyle lecture. Clarendon Press, 1894 (vid. pág. 32).
- Kittel, C. *Introduction to Solid State Physics*. Wiley, 2004 (vid. págs. 16, 34).
- Lechtken, Anne et al. "Comparative study of the structures of copper, silver, and gold icosamers: Influence of metal type and charge state". En: *The Journal of Chemical Physics* 129.15 (oct. de 2008), pág. 154304. DOI: 10.1063/1.2992073 (vid. pág. 29).
- Limas, Nidia Gabaldon y Thomas A. Manz. "Introducing DDEC6 atomic population analysis: part 4. Efficient parallel computation of net atomic charges, atomic spin moments, bond orders, and more". En: *RSC Adv.* 8 (5 2018), págs. 2678-2707. DOI: 10.1039/C7RA11829E (vid. pág. 31).
- Lines, M. E. y A. M. Glass. *Principles and Applications of Ferroelectrics and Related Materials*. Oxford University Press, feb. de 2001. DOI: 10.1093/acprof:oso/9780198507789.001.0001 (vid. pág. 43).
- Luo, Jiaming et al. "Large effective magnetic fields from chiral phonons in rare-earth halides". En: *Science* 382.6671 (2023), págs. 698-702. DOI: 10.1126/science.adi9601 (vid. págs. 19, 60).
- Maldovan, Martin. "Sound and heat revolutions in phononics". En: *Nature* 503.7475 (2013), págs. 209-217. DOI: <https://doi.org/10.1038/nature12608> (vid. págs. 17, 36).

- Manz, Thomas A. y David S. Sholl. “Chemically Meaningful Atomic Charges That Reproduce the Electrostatic Potential in Periodic and Nonperiodic Materials”. En: *Journal of Chemical Theory and Computation* 6.8 (2010), págs. 2455-2468. DOI: 10.1021/ct100125x (vid. págs. 29, 31).
- McHenry, Michael E. “Magnetic Moment and Magnetization”. En: *Characterization of Materials*. John Wiley & Sons, Ltd, 2002. DOI: <https://doi.org/10.1002/0471266965.com042> (vid. pág. 27).
- Mead, C. Alden y Donald G. Truhlar. “On the determination of Born–Oppenheimer nuclear motion wave functions including complications due to conical intersections and identical nuclei”. En: *The Journal of Chemical Physics* 70.5 (mar. de 1979), págs. 2284-2296. DOI: 10.1063/1.437734 (vid. pág. 74).
- Megaw, H. D. “Origin of ferroelectricity in barium titanate and other perovskite-type crystals”. En: *Acta Crystallographica* 5.6 (1952), págs. 739-749. DOI: <https://doi.org/10.1107/S0365110X52002069> (vid. pág. 43).
- Mohn, P. *Magnetism in the Solid State: An Introduction*. Springer Series in Solid-State Sciences. Springer Berlin Heidelberg, 2002. DOI: <https://doi.org/10.1007/3-540-30981-0> (vid. pág. 27).
- Moseni, Kevin, Richard B. Wilson y Sinisa Coh. “Electric field control of phonon angular momentum in perovskite BaTiO_3 ”. En: *Phys. Rev. Mater.* 6 (10 2022), pág. 104410. DOI: 10.1103/PhysRevMaterials.6.104410 (vid. pág. 44).
- Nava, F. et al. “Electrical and optical properties of silicide single crystals and thin films”. En: *Materials Science Reports* 9.4 (1993), págs. 141-200. DOI: [https://doi.org/10.1016/0920-2307\(93\)90007-2](https://doi.org/10.1016/0920-2307(93)90007-2) (vid. pág. 48).
- Payne, M. C. et al. “Iterative minimization techniques for ab initio total-energy calculations: molecular dynamics and conjugate gradients”. En: *Rev. Mod. Phys.* 64 (4 1992), págs. 1045-1097. DOI: 10.1103/RevModPhys.64.1045 (vid. pág. 21).

- Perdew, John P. et al. “Restoring the Density-Gradient Expansion for Exchange in Solids and Surfaces”. En: *Phys. Rev. Lett.* 100 (13 2008), pág. 136406. DOI: 10.1103/PhysRevLett.100.136406 (vid. pág. 42).
- Pénicaud, M. et al. “Calculated electronic band structure and magnetic moments of ferrites”. En: *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 103.1 (1992), págs. 212-220. DOI: [https://doi.org/10.1016/0304-8853\(92\)90255-M](https://doi.org/10.1016/0304-8853(92)90255-M) (vid. pág. 28).
- Reid, John S. “Phonon gas”. En: *Physics Education* 11.5 (1976), pág. 348. DOI: 10.1088/0031-9120/11/5/007 (vid. pág. 37).
- Ren, Shang et al. “Adiabatic Dynamics of Coupled Spins and Phonons in Magnetic Insulators”. En: *Phys. Rev. X* 14 (1 2024), pág. 011041. DOI: 10.1103/PhysRevX.14.011041 (vid. págs. 21, 62, 76).
- Ren, Yafei et al. “Phonon Magnetic Moment from Electronic Topological Magnetization”. En: *Phys. Rev. Lett.* 127 (18 2021), pág. 186403. DOI: 10.1103/PhysRevLett.127.186403 (vid. págs. 61, 62).
- Romero, Aldo H. et al. “ABINIT: Overview and focus on selected capabilities”. En: *The Journal of Chemical Physics* 152.12 (mar. de 2020), pág. 124102. DOI: 10.1063/1.5144261 (vid. pág. 21).
- Sheng, L., D. N. Sheng y C. S. Ting. “Theory of the Phonon Hall Effect in Paramagnetic Dielectrics”. En: *Phys. Rev. Lett.* 96 (15 2006), pág. 155901. DOI: 10.1103/PhysRevLett.96.155901 (vid. pág. 18).
- Srivastava, G.P. *The Physics of Phonons*. Taylor & Francis, 1990 (vid. pág. 33).
- Sterrerr, Martin et al. “Control of the Charge State of Metal Atoms on Thin MgO Films”. En: *Phys. Rev. Lett.* 98 (9 2007), pág. 096107. DOI: 10.1103/PhysRevLett.98.096107 (vid. pág. 29).
- Strohm, C., G. L. J. A. Rikken y P. Wyder. “Phenomenological Evidence for the Phonon Hall Effect”. En: *Phys. Rev. Lett.* 95 (15 2005), pág. 155901. DOI: 10.1103/PhysRevLett.95.155901 (vid. pág. 17).

- Tang, W, E Sanville y G Henkelman. “A grid-based Bader analysis algorithm without lattice bias”. En: *Journal of Physics: Condensed Matter* 21.8 (2009), pág. 084204. DOI: 10.1088/0953-8984/21/8/084204 (vid. pág. 30).
- ThomasAmanz / Project DDEC. *Program Computing DDEC Atomic Charges — SourceForge Files*. 2025. URL: <https://sourceforge.net/projects/ddec/files/> (visitado 14-10-2025) (vid. págs. 31, 41).
- Togo, Atsushi. “First-principles Phonon Calculations with Phonopy and Phono3py”. En: *Journal of the Physical Society of Japan* 92.1 (2023), pág. 012001. DOI: 10.7566/JPSJ.92.012001 (vid. págs. 21, 34, 39, 43, 62).
- Ueda, Hiroki et al. “Chiral phonons in polar LiNbO₃”. En: *Nature Communications* 17.1 (2025), pág. 212. DOI: 10.1038/s41467-025-66911-5 (vid. pág. 44).
- Ueda, Hiroki et al. “Chiral phonons in quartz probed by X-rays”. En: *Nature* 618.7967 (2023), págs. 946-950. DOI: 10.1038/s41586-023-06016-5 (vid. págs. 60, 62).
- Vali, R. “Phonons and heat capacity of LaAlO₃”. En: *Computational Materials Science* 44.2 (2008), págs. 779-782. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.commatsci.2008.05.029> (vid. pág. 17).
- Vasileiadis, Thomas et al. “Progress and perspectives on phononic crystals”. En: *Journal of Applied Physics* 129.16 (abr. de 2021), pág. 160901. DOI: 10.1063/5.0042337 (vid. pág. 17).
- Wang, Jian-Sheng y Lifa Zhang. “Phonon Hall thermal conductivity from the Green-Kubo formula”. En: *Phys. Rev. B* 80 (1 2009), pág. 012301. DOI: 10.1103/PhysRevB.80.012301 (vid. pág. 18).
- William Thomson, B.K. y W. Thomson. *Baltimore Lectures on Molecular Dynamics and the Wave Theory of Light*. Cambridge Library Collection - Physical Sciences. Cambridge University Press, 2010 (vid. pág. 32).

- Yu, Min y Dallas R. Trinkle. “Accurate and efficient algorithm for Bader charge integration”. En: *The Journal of Chemical Physics* 134.6 (feb. de 2011), pág. 064111. DOI: 10.1063/1.3553716 (vid. pág. 30).
- Zhang, Jingtong et al. “Structural phase transitions and dielectric properties of BaTiO₃ from a second-principles method”. En: *Phys. Rev. B* 108 (13 2023), pág. 134117. DOI: 10.1103/PhysRevB.108.134117 (vid. pág. 44).
- Zhang, Lifa. “Berry curvature and various thermal Hall effects”. En: *New Journal of Physics* 18.10 (2016), pág. 103039. DOI: 10.1088/1367-2630/18/10/103039 (vid. pág. 18).
- Zhang, Lifa y Qian Niu. “Angular Momentum of Phonons and the Einstein–de Haas Effect”. En: *Phys. Rev. Lett.* 112 (8 2014), pág. 085503. DOI: 10.1103/PhysRevLett.112.085503 (vid. págs. 18, 24-26).
- “Chiral Phonons at High-Symmetry Points in Monolayer Hexagonal Lattices”. En: *Phys. Rev. Lett.* 115 (11 2015), pág. 115502. DOI: 10.1103/PhysRevLett.115.115502 (vid. pág. 18).
- Zhang, Lifa et al. “Topological nature of the phonon Hall effect”. En: *Physical review letters* 105.22 (2010), pág. 225901. DOI: 10.1103/PhysRevLett.105.225901 (vid. pág. 18).
- Zhang, Xiao-Wei et al. “Gate-Tunable Phonon Magnetic Moment in Bilayer Graphene”. En: *Phys. Rev. Lett.* 130 (22 2023), pág. 226302. DOI: 10.1103/PhysRevLett.130.226302 (vid. págs. 19, 37, 62).
- Zhu, Hanyu et al. “Observation of chiral phonons”. En: *Science* 359.6375 (2018), págs. 579-582. DOI: 10.1126/science.aar2711. eprint: <https://www.science.org/doi/pdf/10.1126/science.aar2711> (vid. pág. 18).

ANEXOS

Anexo A. Hamiltoniano efectivo de los fonones

En este anexo se da un análisis más detallado de la derivación del Hamiltoniano efectivo de los fonones. Este Hamiltoniano fue propuesto por primera vez por Mead y Truhlar.⁹²

Según la aproximación de BOA, los electrones permanecen en su estado fundamental instantáneo en un momento dado con los núcleos en una posición fija. Cuando los átomos vibran alrededor de su posición de equilibrio el estado fundamental electrónico evoluciona adiabáticamente y acumula una fase geométrica, que a su vez puede modificar la dinámica de los fonones. Esto se traduce en un Hamiltoniano efectivo para los fonones procederemos a calcular el valor esperado $\langle \Psi | \hat{H}_T | \Psi \rangle$, teniendo en cuenta lo anterior

$$\begin{aligned} \langle \hat{H}_T \rangle &= \int d\mathbf{R} d\mathbf{r} \Psi^*(\mathbf{r}, \mathbf{R}) \hat{H}_T \Psi(\mathbf{r}, \mathbf{R}) \\ &= \int d\mathbf{R} d\mathbf{r} \chi^*(\mathbf{R}) \Phi^*(\mathbf{r}; \mathbf{R}) \hat{H}_T \chi(\mathbf{R}) \Phi(\mathbf{r}; \mathbf{R}) \\ &= \int d\mathbf{R} \chi^*(\mathbf{R}) \hat{H}_{\text{eff}} \chi(\mathbf{R}). \end{aligned} \quad (\text{A1})$$

Por lo tanto esto nos permite encontrar el Hamiltoniano efectivo. Para este propósito y para facilidad en los cálculo dividiremos el problema

$$\hat{H}_T = \hat{H}_N + \hat{H}_e, \quad (\text{A2})$$

donde

$$\begin{aligned} \hat{H}_N &= T_N(\mathbf{R}), \\ \hat{H}_e &= T_e(\mathbf{r}) + V(\mathbf{r}; \mathbf{R}). \end{aligned} \quad (\text{A3})$$

primero calculamos para la parte electrónica

⁹² C. Alden Mead y Donald G. Truhlar. "On the determination of Born–Oppenheimer nuclear motion wave functions including complications due to conical intersections and identical nuclei". En: *The Journal of Chemical Physics* 70.5 (mar. de 1979), págs. 2284-2296. DOI: 10.1063/1.437734.

$$\begin{aligned}
\langle \hat{H}_e \rangle &= \int \int d\mathbf{R} d\mathbf{r} \chi^*(\mathbf{R}) \Phi^*(\mathbf{r}; \mathbf{R}) \hat{H}_e \chi(\mathbf{R}) \Phi(\mathbf{r}; \mathbf{R}) \\
&= \int d\mathbf{R} \chi^*(\mathbf{R}) \left[\int d\mathbf{r} \Phi^*(\mathbf{r}; \mathbf{R}) \hat{H}_e \chi(\mathbf{R}) \Phi(\mathbf{r}; \mathbf{R}) \right] \chi(\mathbf{R}) \\
&= \int d\mathbf{R} \chi^*(\mathbf{R}) \epsilon(\mathbf{R}) \chi(\mathbf{R}),
\end{aligned} \tag{A4}$$

ahora la aparte que corresponde a la parte nuclear, sabiendo que \hat{P}_i aplica sobre las coordenadas nucleares \mathbf{R}

$$\begin{aligned}
\left\langle \frac{\hat{P}_i^2}{2m_i} \right\rangle &= \frac{1}{2m_i} \int d\mathbf{R} d\mathbf{r} \left[\chi^*(\mathbf{R}) \Phi^*(\mathbf{r}; \mathbf{R}) \hat{P}_i \hat{P}_i \chi(\mathbf{R}) \Phi(\mathbf{r}; \mathbf{R}) \right] \\
&= \frac{1}{2m_i} \int d\mathbf{R} d\mathbf{r} \left[\chi^*(\mathbf{R}) \left(\Phi^*(\mathbf{r}; \mathbf{R}) \hat{P}_i \right) + \left(\chi^*(\mathbf{R}) \hat{P}_i \right) \Phi^*(\mathbf{r}; \mathbf{R}) \right] \cdot \\
&\quad \left[\left(\hat{P}_i \chi(\mathbf{R}) \right) \Phi(\mathbf{r}; \mathbf{R}) + \chi(\mathbf{R}) \left(\hat{P}_i \Phi(\mathbf{r}; \mathbf{R}) \right) \right],
\end{aligned} \tag{A5}$$

luego repartiendo términos y organizando

$$\begin{aligned}
&= \frac{1}{2m_i} \int d\mathbf{R} \chi^*(\mathbf{R}) \hat{P}_i \hat{P}_i \chi(\mathbf{R}) \int d\mathbf{r} \Phi^*(\mathbf{r}; \mathbf{R}) \Phi(\mathbf{r}; \mathbf{R}) \\
&+ \int d\mathbf{R} \chi^*(\mathbf{R}) \chi(\mathbf{R}) \int d\mathbf{r} \Phi^*(\mathbf{r}; \mathbf{R}) \hat{P}_i \hat{P}_i \Phi(\mathbf{r}; \mathbf{R}) \\
&+ \int d\mathbf{R} \chi^*(\mathbf{R}) \hat{P}_i \chi(\mathbf{R}) \int d\mathbf{r} \Phi^*(\mathbf{r}; \mathbf{R}) \hat{P}_i \Phi(\mathbf{r}; \mathbf{R}) \\
&+ \int d\mathbf{R} \chi^*(\mathbf{R}) \hat{P}_i \chi(\mathbf{R}) \int d\mathbf{r} \Phi^*(\mathbf{r}; \mathbf{R}) \hat{P}_i \Phi(\mathbf{r}; \mathbf{R}),
\end{aligned} \tag{A6}$$

podemos reescribir la ecuación anterior de manera conveniente

$$= \frac{1}{2m_i} \int d\mathbf{R} \chi^*(\mathbf{R}) \left[\hat{P}_i^2 \chi(\mathbf{R}) - 2\hat{P}_i \chi(\mathbf{R}) A_i(\mathbf{R}) + \hbar^2 \chi(\mathbf{R}) \int d\mathbf{r} \nabla_{\mathbf{R}i} \Phi^*(\mathbf{r}; \mathbf{R}) \nabla_{\mathbf{R}i} \Phi(\mathbf{r}; \mathbf{R}) \right] \tag{A7}$$

donde

$$A_i(\mathbf{R}) = i\hbar \int d\mathbf{r} \Phi^*(\mathbf{r}; \mathbf{R}) \nabla_{\mathbf{R}i} \Phi(\mathbf{r}; \mathbf{R}) = - \int d\mathbf{r} \Phi^*(\mathbf{r}; \mathbf{R}) \hat{P}_i \Phi(\mathbf{r}; \mathbf{R}). \tag{A8}$$

Donde $A_i(\mathbf{R})$ es el potencial de Berry con respecto a los desplazamientos atómicos. Finalmente obtenemos

$$\left\langle \frac{\hat{\mathbf{P}}_i^2}{2m_i} \right\rangle = \int d\mathbf{R} \chi^*(\mathbf{R}) \left[\sum_i \frac{(\hat{\mathbf{P}}_i - A_i(\mathbf{R}))^2}{2m_i} + \xi_I(\mathbf{R}) \right] \chi(\mathbf{R}), \quad (\text{A9})$$

donde

$$\xi_i(\mathbf{R}) = \sum_i \left[\frac{\hbar^2}{2m_i} \langle \nabla_{\mathbf{R}i} \Phi(\mathbf{r}; \mathbf{R}) | \nabla_{\mathbf{R}i} \Phi(\mathbf{r}; \mathbf{R}) \rangle - \frac{A_i^2(\mathbf{R})}{2m_i} \right]. \quad (\text{A10})$$

Entonces resulta de la ecuación A1

$$\begin{aligned} \langle \hat{H}_T \rangle &= \left\langle \sum_i \frac{\hat{\mathbf{P}}_i^2}{2m_i} + \hat{H}_e \right\rangle \\ &= \int d\mathbf{R} \chi^*(\mathbf{R}) \left[\sum_i \frac{(\hat{\mathbf{P}}_i - A_i(\mathbf{R}))^2}{2m_i} + \epsilon(\mathbf{R}) + \xi_i(\mathbf{R}) \right] \chi(\mathbf{R}), \end{aligned} \quad (\text{A11})$$

el término $\xi_i(\mathbf{R})$ se puede reescribir

$$\begin{aligned} \xi_i(\mathbf{R}) &= \langle \nabla_{\mathbf{R}i} \Phi(\mathbf{r}; \mathbf{R}) | Q | \nabla_{\mathbf{R}i} \Phi(\mathbf{r}; \mathbf{R}) \rangle, \\ Q &= 1 - |\Phi(\mathbf{r}; \mathbf{R})\rangle \langle \Phi(\mathbf{r}; \mathbf{R})|. \end{aligned} \quad (\text{A12})$$

Ya que $\xi_i(\mathbf{R}) \ll \epsilon(\mathbf{R})$ y además no rompe la simetría de inversión temporal, entonces podemos despreciar ese término.⁹³ Así el Hamiltoniano efectivo para los fonones es

$$\hat{H}_{eff} = \sum_i \frac{(\hat{\mathbf{P}}_i - A_i(\mathbf{R}))^2}{2m_i} + \epsilon(\mathbf{R}), \quad (\text{A13})$$

el cual es el mismo que aparece en el texto principal en la ecuación 6.

⁹³ Ren et al., "Adiabatic Dynamics of Coupled Spins and Phonons in Magnetic Insulators", ver n. 27.

Anexo B. Grupos espaciales quirales

En general, para un objeto como una molécula o un cristal, existe un elemento de simetría al cual se asocia un conjunto de operaciones que lo dejan inalterado. Este conjunto se denomina grupo puntual de simetría. En el caso de los cristales tridimensionales, su estructura puede describirse mediante la combinación de un número finito de operaciones de simetría y traslaciones sobre la celda unitaria. De acuerdo con el teorema de restricción cristalográfica y uno de los teoremas de Bieberbach, el número de grupos puntuales de simetría posibles se reduce de una infinidad a únicamente 32. A su vez, las traslaciones compatibles con estos grupos puntuales corresponden a solo 14 tipos de redes conocidas como redes de Bravais. La combinación entre las traslaciones de la celda unitaria y los 32 grupos puntuales (compuestos por operaciones de simetría propias e impropias) da lugar a un total de 230 grupos espaciales, los cuales describen todas las simetrías cristalinas posibles.

La quiralidad en un sistema cristalográfico está directamente relacionada con la simetría de su grupo espacial. Un cristal se considera quiral si su grupo espacial contiene únicamente operaciones de simetría propias, es decir, rotaciones y traslaciones, y carece de operaciones impropias como reflexiones, inversión central o roto inversiones.⁹⁴ Los 230 grupos espaciales pueden dividirse en tres categorías. La primera incluye 165 grupos espaciales que contienen al menos una operación impropia; en consecuencia, los cristales que pertenecen a estos grupos son necesariamente aquirales. La segunda categoría comprende 22 grupos espaciales que contienen operaciones de tornillo (con excepción del eje 2_1). Finalmente, la tercera categoría corresponde a 43 grupos espaciales en los que, aunque la celda unitaria no sea quiral, los cristales que se construyen a partir de ella presentan quiralidad.

La combinación de las dos últimas categorías se conoce como los grupos de Sohncke. Si bien estos grupos cristalizan en estructuras quirales, un análisis más detallado revela que los 43 grupos de la tercera categoría se transforman en sí mismos bajo inversión de las posiciones atómicas, lo que demuestra que en realidad son aquirales. En consecuencia, se concluye que únicamente los 22 grupos espaciales de la segunda categoría son verdaderamente quirales (Tabla 4). Estos aparecen en 11 pares enantiomórficos, donde la primera configuración de cada par se denomina diestra y la segunda, zurda.

⁹⁴ Gerhard H. Fecher, Jürgen Kübler y Claudia Felser. "Chirality in the Solid State: Chiral Crystal Structures in Chiral and Achiral Space Groups". En: *Materials* 15.17 (2022). DOI: 10.3390/ma15175812.

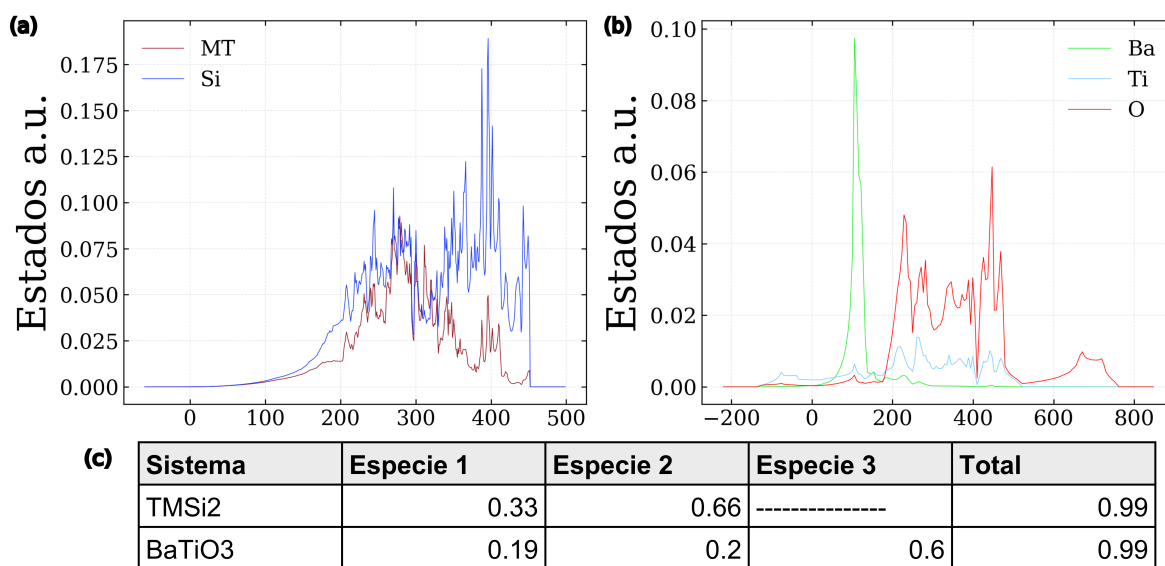
Tabla 4. Grupos espaciales quirales.

Sistema crista- lino	Clase crista- lina	Grupo puntual	Símbolo I. abreviado	# Grupo espacial
Tetragonal	4	C_4	$P4_1$ $P4_3$	76, 78
	442	D_4	$P4_122$ $P4_322$	91, 95
			$P4_12_12$ $P4_32_12$	92, 96
Trigonal	3	C_3	$P3_1$ $P3_2$	144, 145
	32	D_3	$P3_112$ $P3_212$	151, 153
			$P3_121$ $P3_221$	152, 154
Hexagonal	6	C_6	$P6_1$ $P6_5$	169, 170
	662	D_6	$P6_2$ $P6_4$	171, 172
			$P6_122$ $P6_522$	178, 179
			$P6_222$ $P6_422$	180, 181
Cúbico	432	O	$P4_332$ $P4_132$	212, 213

Anexo C. Pesos por especie atómica

La densidad de estados parcial correspondiente a los sistemas analizados se muestra en las figuras 5a- b. Los pesos asignados no dependen del grupo espacial, sino del número de átomos por especie. Por esta razón, dichos pesos se emplean de manera consistente para ambos grupos espaciales en los sistemas $MTSi_2$ y $BaTiO_3$ en los cálculos presentados en el texto principal. La tabla 5 se muestran los pesos calculados por especie.

Figura 21. (a), (b) Densidad de estados parcial para los sistemas $MTSi_2$ y $BaTiO_3$ respectivamente. (c) Tabla 5. Pesos asignados para los sistemas



Anexo D. Material complementario para los sistemas $MTSi_2$

Figura 22. Relación de dispersión resuelta por PAM en el $TaSi_2$ SG. 180

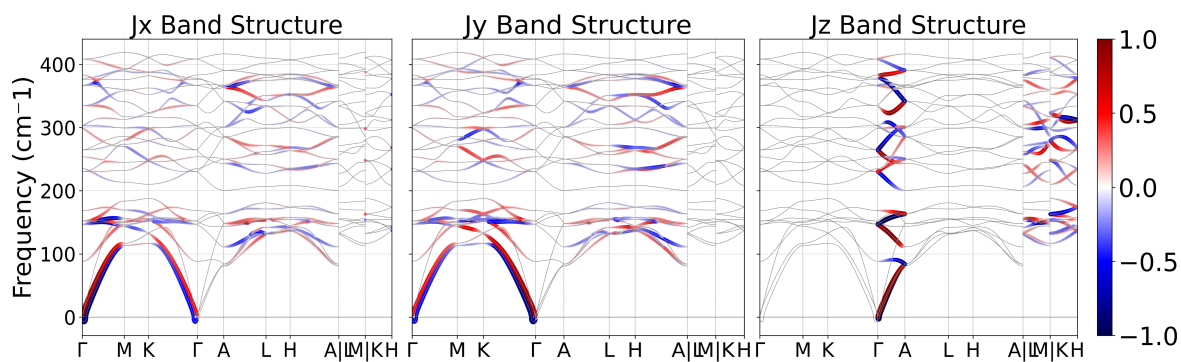


Figura 23. Relación de dispersión resuelta por PAM en el $NbSi_2$ SG. 180

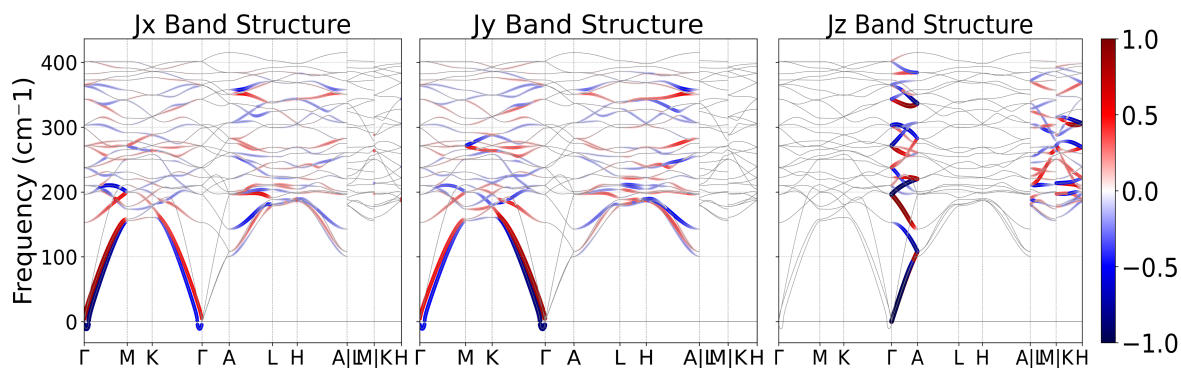


Figura 24. Contraste del pamDOS en la Familia MSi_2 SG. 180 y el $BaTiO_3$ SG. 221

