



UNIVERSIDADE FEDERAL DE PERNAMBUCO
DEPARTAMENTO DE FÍSICA – CCEN
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA

DISSERTAÇÃO DE MESTRADO

VIDRO DE SPIN ISING NO LIMIAR DA PERCOLAÇÃO: COMPORTAMENTO DINÂMICO E HISTERESE

por

Karlla Adriana Pereira de Lima

Dissertação apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Física do Departamento de Física da Universidade Federal de Pernambuco como parte dos requisitos para obtenção do título de Mestre em Física.

Banca Examinadora:

Prof. Maurício Domingues Coutinho Filho (Orientador-UFPE)
Prof. Ernesto Carneiro Pessoa Raposo (Co-orientador – DF-UFPE)
Prof. Frederico Cavalcanti Montenegro (DF - UFPE)
Prof. Paulo Roberto de A. Campos (DF – UFRPE)

Recife - PE, Brasil
Agosto - 2006

Lima, Karlla Adriana Pereira de

Vidro de spin ising no limiar da percolação:
comportamento dinâmico e histerese / Karlla Adriana Pereira
de Lima. – Recife : O autor, 2006.

xii, 84 folhas : il., fig.

Dissertação (mestrado) Universidade Federal de
Pernambuco. CCEN. Física, 2006.

Inclui bibliografia.

1. Física estatística. 2. Vidros de spin. 3. Dinâmica. 4.
Antiferromagnetos desordenados. 5. Simulação Monte Carlo. I.
Título.

530.13

CDD (22.ed.)

FQ2006-0021



Universidade Federal de Pernambuco
Departamento de Física – CCEN
Programa de Pós-Graduação em Física
Cidade Universitária - 50670-901 Recife PE Brasil
Fone (+55 81) 2126-8449/2126-8450 - Fax (+55 81) 3271-0359
<http://www.df.ufpe.br/pg> e-mail: posgrad@df.ufpe.br

Parecer da Banca Examinadora de Defesa de Dissertação de Mestrado

Karlla Adriana Pereira de Lima

VIDRO DE SPIN ISING NO LIMAR DA PERCOLAÇÃO: COMPORTAMENTO DINÂMICO E HISTERESE

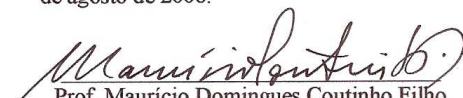
A Banca Examinadora composta pelos Professores Maurício Domingues Coutinho Filho (Presidente e Orientador), Ernesto Carneiro Pessoa Raposo (Co-orientador), Frederico Cavalcanti Montenegro, todos da Universidade Federal de Pernambuco e Paulo Roberto de Araújo Campos, do Departamento de Física da Universidade Federal Rural de Pernambuco, consideram a candidata:

() Aprovada com Distinção

(☒) Aprovada

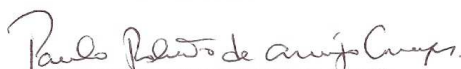
() Reprovada

Secretaria do Programa de Pós-Graduação em Física do Departamento de Física do Centro de Ciências Exatas e da Natureza da Universidade Federal de Pernambuco em trinta e um de agosto de 2006.


Prof. Maurício Domingues Coutinho Filho
Presidente e Orientador


Prof. Ernesto Carneiro Pessoa Raposo
Co-orientador


Prof. Frederico Cavalcanti Montenegro


Prof. Paulo Roberto de Araújo Campos

Dedico esta dissertação aos meus pais, Antônio
e Antônio, e irmãos, Bruno e Cínthya.

AGRADECIMENTOS

Espero nestes agradecimentos ser justa, coerente e não me esquecer pelo menos das pessoas que mais me ajudaram nesta fase de aprendizado tão difícil.

Em primeiro lugar agradeço ao meu orientador, o Prof. Maurício Coutinho, pela confiança, orientação e trabalho tão motivante.

Agradeço ao meu co-orientador, Prof. Ernesto Raposo, pela excelente co-orientação, que mesmo nos meus momentos de maior desespero ele esteve sempre calmo e paciente.

Ao Renê Montenegro obrigada pela atenção e pelas discussões diversas que tivemos, que sem dúvida contribuíram para o enriquecimento deste trabalho.

Aos meus colegas e amigos do DF. Em especial quero destacar meus amigos Augusto, Patrícia, Pedro Hugo, Danievertton, Leonardo Gollo, Leonardo Viana, Eroni, Lincoln, Reginho, Antônio Mário, Serginho, Jairo, Juliana, Eglânio, Diogo, Sandroildo e Fernandos, pelos bons momentos que me proporcionaram durante estes dois anos de mestrado.

Às minhas famílias de Goiânia, de Belo Jardim e de Recife, só tenho a agradecer pela formação moral, incentivo, confiança e amor que venho recebido desde o meu nascimento.

Aos meus amigos e Prof. da UFG agradeço pela ajuda e carinho mesmo à distância, em especial aos Prof. Basílio Baseia, Salviano Leão, Márcio Adriano e Marcos Castro.

Aos meus amigos Bruno Escher, Ardiley Tavares, Paulo Weber, Marcelo Cursino, Simone Souza, Haliny Mendes e Ana Paula Alves, obrigada por tudo ao longo destes anos.

Ao meu amigo Marcelo Blanco, agradeço por todas as palavras e atitudes que me fizeram crescer como pessoa nestes últimos meses e me ajudaram muito nesta fase final do trabalho.

Aos bons funcionários do DF e CCEN deixo também meus sinceros agradecimentos.

Ao CNPq pelo apoio financeiro.

Resumo

Neste trabalho são apresentados os resultados da dinâmica do sistema $\text{Fe}_x\text{Zn}_{1-x}\text{F}_2$ em sua fase vidro de spin próximo da percolação, a $x = 0.25 \simeq x_p = 0.24$, por meio do estudo da autocorrelação temporal de spins via simulação Monte Carlo. Foram realizados vários tipos de protocolos a fim de verificar a dependência da relaxação com o campo magnético, H e o tempo de espera (tempo de aplicação do campo), t_w , sendo estes: resfriamento a campo nulo (*Zero Field Cooling* - ZFC) nos regimes *lento* e *quenched*; e o resfriamento com campo magnético aplicado (*Field Cooling* - FC). Em cada caso o sistema foi estudado nos regimes de campos magnéticos baixos, intermediários e altos, com respeito à energia de troca dominante entre os spins. Além disso reproduziu-se a curva de histerese para tal composto a $T = 0.12\text{K}$, na qual há o surgimento de degraus, ou platôs, bem definidos para certos intervalos de campo, sendo em seguida realizado um estudo da relaxação também para esta região. A dinâmica da função de autocorrelação de spins, $C(t, t_w)$, após procedimento ZFC *quenched* mostrou resultados em acordo com o cenário de crescimento e relaxação de domínios via ativação térmica, no regime de campos baixos e intermediários, $H \lesssim 5\text{T}$. Em particular, no regime $H \lesssim 2\text{T}$ foram obtidos ótimos colapsos dos dados de $C(t, t_w)$ para $t_w = 10, 10^2, 10^3$ e 10^4 , a $T = 5.1\text{K}$, utilizando ambas as hipóteses de escala aditiva e multiplicativa em processos de ativação sobre barreiras logarítmicas de energia, características da proximidade da percolação, $x \simeq x_p$. Por outro lado, para $2\text{T} \lesssim H \lesssim 5\text{T}$ somente a hipótese aditiva é compatível com bons colapsos dos dados, enquanto que para $H \gtrsim 5\text{T}$ nenhum tipo de colapso foi obtido, podendo sugerir, que a presença de campos magnéticos intensos afeta de forma significativa a natureza da fase magnética desordenada do sistema a $x = 0.25$.

Palavras-chave: Vidros de Spin, Dinâmica, Antiferromagnetos Desordenados, Simulação Monte Carlo.

Abstract

In this work we present results on the dynamics of the system $\text{Fe}_x\text{Zn}_{1-x}\text{F}_2$ in its spin glass phase close to the percolation threshold, $x = 0.25 \simeq x_p = 0.24$, through the Monte Carlo study of the temporal autocorrelation function. We performed several numerical protocols in order to verify the dependence of the relaxation on the magnetic field and waiting time t_w , such that: Zero-Field Cooling (ZFC), in the quenched and slow cooling regimes; and Field Cooling (FC). In each case the system was investigated in the low, intermediate and high field regimes, with respect to the dominant exchange energy between spins. Furthermore, we reproduced the hysteresis curve for the $x = 0.25$ system at $T = 0.12$ K, in which steps, or “plateaus”, arise for well-defined field intervals; relaxation studies in this region were performed as well. The dynamics of the spin autocorrelation function, $C(t, t_w)$, after a ZFC quench displays a good agreement with the scenario of growth and relaxation of domains via thermal activation in the low and intermediate field regimes, $H \leq 5$ T. In particular, for $H \leq 2$ T we obtained fine collapses of the $C(t, t_w)$ data for $t_w = 10, 10^2, 10^3$ and 10^4 , at $T = 1.5$ K, by using both additive and multiplicative scaling hypotheses for the activation processes over logarithmic energy barriers, as characteristic of the vicinity of percolation, $x \simeq x_p$. On the other hand, for $2 \text{ T} \simeq H \simeq 5 \text{ T}$ only the additive hypothesis provided good data collapse, whereas for $H > 5$ T no kind of collapse was found, which might suggest that the presence of high magnetic fields affects in a significative way the nature of the disordered phase at $x = 0.25$.

Keywords: Spin Glasses, Dynamics, Disordered Antiferromagnets, Monte Carlo Simulation.

Sumário

1	Introdução	2
2	Dinâmica dos Vidros de Spin Ising: Modelos e Crescimento de Domínios	4
2.1	Vidros de Spin: características fundamentais	4
2.2	Modelos teóricos	7
2.2.1	Modelo de Ising	7
2.2.2	Modelo de Edwards-Anderson (EA)	9
2.2.3	Modelo de Sherrington-Kirkpatrick (SK)	9
2.2.4	Modelo de <i>droplets</i>	10
2.3	Crescimento de domínios	12
2.4	Função de autocorrelação temporal	18
3	O Antiferromagneto Desordenado $\text{Fe}_x\text{Zn}_{1-x}\text{F}_2$	22
3.1	O Antiferromagneto FeF_2	22
3.2	O Antiferromagneto Desordenado $\text{Fe}_x\text{Zn}_{1-x}\text{F}_2$	26
3.3	A Fase Vidro de Spin no composto $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$	27
4	Monte Carlo	33

4.1	Introdução	33
4.2	O método Monte Carlo e a Mecânica Estatística	35
4.3	Implementação do método Monte Carlo ao sistema $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$	38
5	Vidro de Spin Ising no Limiar da Percolação: Comportamento Dinâmico e Histerese	42
5.1	Resfriamento ZFC - <i>Quenched</i>	43
5.1.1	Regime de campos baixos	45
5.1.2	Regime de campos intermediários	48
5.1.3	Regime de campos altos	55
5.2	Resfriamento ZFC - Lento	57
5.2.1	Regime de campos baixos	58
5.2.2	Regime de campos intermediários	60
5.3	Resfriamento FC	60
5.4	Histerese	64
5.4.1	Formação de platôs	65
5.4.2	Relaxação na região dos platôs	65
6	Conclusões e Perspectivas	75
	Referências Bibliográficas	79

Lista de Figuras

2.1	Em (a) é mostrada a dependência com o campo da magnetização termoremanente (TRM) e isotermoremanente (IRM) [13] no VS isolante $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$. Em (b) é mostrado o comportamento do calor específico magnético do composto VS CuMn, em função da temperatura para diversos valores de campo [2].	6
3.1	Esquema 3d de uma rede BCC. Na rede tetragonal de corpo centrado a aresta ao longo de um dos eixos tem tamanho distinto das arestas perpendiculares a ela.	23
3.2	Diagrama de fases H vs. T do FeF_2 , [38, 39, 40] mostrando as fronteiras das fases AF-SF(<i>spin flop</i>) e AF-PM, representadas pelas linhas cheias, e as linhas de estabilidade representadas pelas linhas tracejadas.	24
3.3	Representação do isolante FeF_2 , mostrando os tipos de interações de troca J_l entre os íons de Fe^{+2} de primeiros vizinhos [37]	25
3.4	Diagrama de fases do composto $\text{Fe}_x\text{Zn}_{1-x}\text{F}_2$ em função de T , H e x [13, 45, 46, 47].	27

3.5	Dependência com a temperatura da magnetização do composto $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$ nos procedimentos ZFC e FC, com aplicação de vários valores de campo magnético uniforme [49, 48].	29
3.6	Dependência com o campo da temperatura de irreversibilidade, $T_i(H)$, onde a linha sólida é um ajuste proveniente dos dados experimentais [13] e a linha pontilhada é a previsão teórica de Almeida-Thouless [24]	30
3.7	(a) Ciclo de histerese a $T = 5.1\text{K}$ e $T = 1.3\text{K}$ (b) Dependência do calor específico C_m com a temperatura a $H = 0$. Casos frustrado ($J_1/J_2 = -0.013$, $J_3/J_2 = 0.053$) e não frustrado ($J_1 = J_3 = 0$) estão indicados [8].	31
3.8	Resultado de simulação de Monte Carlo para o composto $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$, mostrando a dependência da magnetização remanente M_{Rem} com o campo H [9].	32
3.9	Linha de irreversibilidade induzida pelo campo para o sistema $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$, onde a linha cheia representa a linha de Almeida-Thouless [24] e a linha tracejada mostra a estimativa de Brito [9] via simulação Monte Carlo.	32
5.1	Dependência de $C(t, t_w)$ com t , para vários valores de campo no protocolo ZFC- <i>Quenched</i> com $t_w = 10^3$	44
5.2	Evolução temporal de $C(t, t_w)$ no regime de campos baixos, $H = 0.1, 0.2$ e a campo nulo, em $T = 0.4$ no protocolo ZFC- <i>Quenched</i> . . .	46
5.3	Ajuste do tipo $C(t, t_w) \propto t^{-x(T, H)}$, $t < t_w$, $x(T, H) \simeq 0.04$ a $T = 0.4$ (a), $H = 0.0$, e (b) $H = 0.4$, no protocolo ZFC- <i>Quenched</i>	47

- 5.4 Evolução temporal de $C(t, t_w)$ a $T = 0.4$ no regime de campos intermediários para $H = 0.5$ e 1.0 , e também a campo nulo no protocolo ZFC-*Quenched*. 49
- 5.5 Ajuste do tipo $C \propto t^{-\lambda(T, H, t_w)}$, $t \gg t_w$ com $T = 0.4$ e $H = 0.4$, no protocolo ZFC-*Quenched*. Veja os valores de $\lambda(T, H, t_w)$ na Fig. 5.6 . 50
- 5.6 Dependência de $\lambda(T, H, t_w)$ com (a) t_w e com (b) H . O aumento de λ para $H = 0.1$ e $H = 0.2$ em $t_w = 10^4$, deve-se á pequena quantidade de pontos (quatro) considerados no ajuste. 51
- 5.7 *Scaling* multiplicativo do tipo $C(t, t_w)t^{x(T, H)}$ vs. t/t_w para $T = 0.4$ (a) $H = 0.0$ e (b) $H = 0.2$, no protocolo ZFC-*Quenched*. 52
- 5.8 Tentativa de *scaling* multiplicativo do tipo $C(t, t_w)t^{x(T, H)}$ vs. t/t_w para $T = 0.4$ e $H = 0.5$ no protocolo ZFC-*Quenched*, mostrando um bom colapso somente na região de quase equilíbrio, $t \ll t_w$ 53
- 5.9 Tentativas de *scaling*: (a) multiplicativo do tipo $C(t, t_w)t^{x(T, H)}$ vs. t/t_w para $T = 0.4$ e $H = 2.2$, com $x(T, H) = 0.02$; (b) aditivo do tipo $C(t, t_w) - At^{-\alpha}$ vs. $\ln(t + t_w/t_w)$ para $T = 0.4$ e $H = 0.2$, com $A = 0.6$ e $\alpha = 0.01$ 54
- 5.10 *Scaling* aditivo do tipo $C(t, t_w) - At^{-\alpha}$ vs. $\ln(t + t_w/t_w)$ para $T = 0.4$, $H = 0.5$, $\alpha = 0.011$ e $A = 0.6$, no protocolo ZFC-*Quenched*. 55
- 5.11 Evolução temporal de $C(t, t_w)$ no regime de campos altos para alguns valores de campo, $H = 2.2$ e 2.4 , e o resultado a campo nulo, a $T = 0.4$, no protocolo ZFC-*Quenched*. Note a diferença de escalas no eixo vertical, indicando que na presença de campos intensos a forte dependência com t_w observada a $H = 0$ é consideravelmente reduzida. 56

5.12 Dependência de $C(t, t_w)$ com t , para vários valores de campo no regime de campos baixos no protocolo ZFC-Lento, a $T = 0.4$	59
5.13 Dependência de $C(t, t_w)$ com t , para vários valores de campo no protocolo ZFC-Lento, a $T = 0.4$	61
5.14 Dependência de $C(t, t_w)$ com t , para vários valores de campo no regime de campos intermediários no protocolo ZFC-Lento, a $T = 0.4$	62
5.15 Dependência de $C(t, t_w)$ com t , para vários valores de campo, $H = 0.2, 0.4$ e 1.0 , no protocolo FC, a $T = 0.4$	63
5.16 Dependência da magnetização M com H no composto $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$ em várias temperaturas [23].	64
5.17 Ciclo de histerese do sistema $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$, via simulação MC, onde observa-se a formação de degraus com magnetizações bem definidas. O detalhe mostra que não há alteração no valor da magnetização no intervalo de campo especificado [9].	66
5.18 Curvas de histerese para as temperaturas $T = 0.01, 0.28, 0.4$ e 0.6	67
5.19 Curva de histerese obtida a $T = 0.01$, mostrando as três etapas discutidas no texto.	68
5.20 Relaxação referente a todas as partes, mostrando de forma geral a dependência de $C(t, t_w)$ com t para os valores de campo estudados a $T = 0.01$ para $t_w = 10, 10^3$ e 10^5	71
5.21 Relaxação referente à parte I , mostrando a dependência de $C(t, t_w)$ com t para alguns valores de campo a $T = 0.01$. Os campos $H = 0.05$ e $H = 1.0$ encontram-se entre platôs	72

- 5.22 Relaxação referente à parte *II*, mostrando a dependência de $C(t, t_w)$ com t para alguns valores de campo a $T = 0.01$. Os campos $H = 0.05$ e $H = 1.0$ encontram-se entre platôs 73
- 5.23 Relaxação referente à parte *III*, mostrando a dependência de $C(t, t_w)$ com t para alguns valores de campo a $T = 0.01$. Os campos $H = 0.05$ e $H = 1.0$ encontram-se entre platôs 74

Capítulo 1

Introdução

Todos os fenômenos naturais tendem a alcançar um estado de equilíbrio. Alguns deles ocorrem de forma rápida, tomadas escalas de tempo observáveis, enquanto outros têm sua dinâmica extremamente lenta. Nesse contexto, os vidros de spins [1, 2], uma das fases observadas a baixas temperaturas de sistemas magnéticos, vêm despertando nestas últimas três décadas grande interesse na sua compreensão pois apresentam um comportamento dinâmico fortemente dependente da história da medida e relaxação muito lenta. Vários modelos teóricos [3, 4, 5, 6] surgiram para tentar elucidar os mecanismos que permitem a formação de tal fase, mas ainda não há um modelo único capaz de descrever todas as características apresentadas pelos materiais em sua fase vidro de spin. Nesse sentido, a simulação computacional apresenta-se como uma ferramenta alternativa no estudo de sistemas que apresentam forte dependência temporal, por alcançar regiões de difícil acesso nas realizações experimentais e permitir a checagem dos comportamentos previstos pelos modelos teóricos.

Neste trabalho, busca-se uma maior compreensão do comportamento dinâmico

do antiferromagneto desordenado $\text{Fe}_x\text{Zn}_{1-x}\text{F}_2$, em sua fase vidro de spin próxima da percolação, a $x = 0.25 \simeq x_p = 0.24$, através da simulação computacional baseada no método Monte Carlo. O trabalho está dividido em cinco capítulos. No Capítulo 2 é apresentada, de forma geral, a fase vidro de spin, com uma breve exposição dos modelos teóricos mais aceitos; em seguida são discutidas as características gerais da sua complexa dinâmica e por último discute-se o crescimento de domínios. O Capítulo 3 é destinado à apresentação do composto que será o objeto de estudo, $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$, onde é feita uma breve revisão dos trabalhos anteriores, experimentais [7] e teóricos [8, 9], que deram contribuições importantes à caracterização e ao entendimento das propriedades magnéticas do antiferromagneto desordenado $\text{Fe}_x\text{Zn}_{1-x}\text{F}_2$, principalmente em sua fase vidro de spin, bem como para as mais variadas concentrações x de íons magnéticos. No Capítulo 4, descreve-se em linhas gerais o método Monte Carlo, mostrando os conceitos principais, e como este é aplicado no estudo da dinâmica do sistema $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$. No Capítulo 5, apresentam-se os resultados obtidos, bem como realiza-se a sua discussão com base no crescimento e relaxação de domínios no limiar da percolação. No último capítulo estão as conclusões e as perspectivas de trabalhos futuros.

Capítulo 2

Dinâmica dos Vidros de Spin Ising: Modelos e Crescimento de Domínios

2.1 Vidros de Spin: características fundamentais

O estado vidro de spin (VS) é caracterizado por um tipo de ordem em que abaixo da temperatura de congelamento, T_f , os spins se “congelam” cooperativamente em direções aleatórias, ou seja, o sistema não apresenta ordem de longo alcance magnética convencional [10]. A verificação experimental da existência de tal estado necessita que as seguintes propriedades sejam satisfeitas [2, 11, 12]:

(1) Abaixo de T_f a magnetização (M) e a susceptibilidade dc (χ) são fortemente dependentes da história da medição. M e χ medidas após o resfriamento a campo nulo (*Zero Field Cooling*-ZFC) são diferentes das mesmas quantidades me-

didadas no procedimento de resfriamento com campo aplicado (*Field Cooling*-FC).

(2) A susceptibilidade *dc* começa a ter desvios da lei de Curie na fase paramagnética, para temperaturas acima de T_f .

(3) Abaixo de T_f ocorrem ciclos de histerese induzidos pelo campo magnético e dependentes da temperatura.

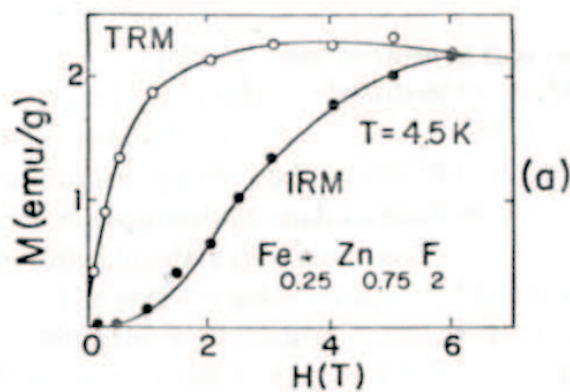
(4) Abaixo de T_f ocorrem remanências na magnetização: termoremanência (TRM), medida após o procedimento FC, e isothermoremanência (IRM), medida após ZFC. Ambas apresentam relaxação lenta (não-exponencial).

(5) A susceptibilidade *a.c.* (χ_{ac}) a baixa frequência e baixo campo exibe uma cúspide na temperatura T_f , a qual vai se tornando arredondado à medida que o campo é aumentado.

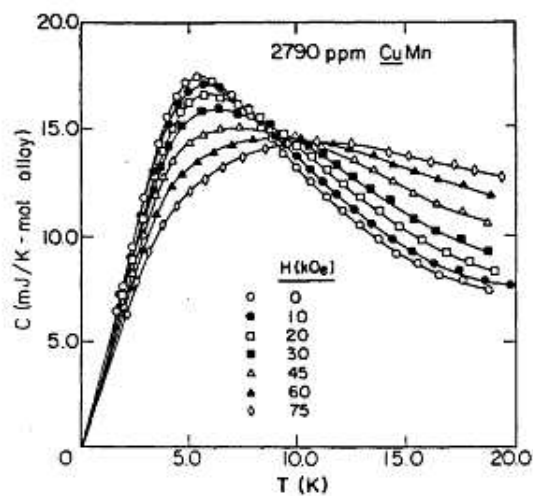
(6) Nenhuma anomalia forte aparece no calor específico próximo a T_f . Acima de T_f um máximo do tipo Schottky é observado.

(7) Abaixo de T_f não é observado nenhum espalhamento magnético Bragg, característico da ordem espacial regular de longo alcance, em experimentos de espalhamento de nêutrons.

Algumas propriedades citadas acima podem ser vistas na Fig. 2.1 para os VS isolantes $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$, cuja temperatura de congelamento a campo nulo é $T_f \approx 10\text{K}$, e metálico, CuMn .



(a)



(b)

Figura 2.1: Em (a) é mostrada a dependência com o campo da magnetização termoremanente (TRM) e isothermoremanente (IRM) [13] no VS isolante $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$. Em (b) é mostrado o comportamento do calor específico magnético do composto VS CuMn , em função da temperatura para diversos valores de campo [2].

2.2 Modelos teóricos

2.2.1 Modelo de Ising

O modelo de Ising [14] constitui o modelo teórico mais simples que descreve sistemas magnéticos. Como discutido a seguir, sua importância na presente dissertação deve-se ao fato de que o composto estudado, $\text{Fe}_x\text{Zn}_{1-x}\text{F}_2$, apresenta forte anisotropia de íon único, podendo ser descrito numa larga extensão de seu diagrama de fases [15] de acordo com o hamiltoniano Ising com diluição aleatória de sítios magnéticos (ver também Cap. 5). O hamiltoniano para um sistema Ising puro na presença de campo magnético uniforme é dado por:

$$\mathcal{H} = \sum_{i,j} J_{ij} S_i S_j + H \sum S_i , \quad (2.1)$$

onde J_{ij} representa o acoplamento entre o spin no sítio i , S_i , e o spin S_j , no sítio j , e H é o campo magnético externo aplicado ao sistema. Acrescentando-se desordem por diluição aleatória ao sistema, S_i deve ser substituído por $\varepsilon_i S_i$, de tal forma que o hamiltoniano Ising passa a assumir a forma

$$\mathcal{H} = \sum_{i,j} J_{ij} \varepsilon_i S_i \varepsilon_j S_j + H \sum \varepsilon_i S_i , \quad (2.2)$$

onde a variável ε_i representa a ocupação do sítio i podendo assumir os valores 0 ou 1. É importante destacar que $\overline{\varepsilon_i} = \overline{\varepsilon_j} = x$ define a concentração de íons magnéticos. Outras formas de introdução de desordem [16] consistem na inclusão de um termo do tipo $\sum_i h_i S_i$, onde o campo local h_i tem valor aleatório de acordo com uma distribuição $P(h_i)$ (usualmente gaussiana ou bimodal), ou via introdução de uma

distribuição aleatória $P(J_{ij})$ para os acoplamentos de troca (*exchange*). Para uma revisão sobre sistemas magnéticos desordenados veja Stinchcombe [17], Belanger e Young [18], Binder e Young [2]. Para uma revisão mais atual, envolvendo aspectos teóricos e experimentais, veja o volume editado por Young [19].

De acordo com as escolhas de x , J_{ij} , h_i e H o sistema $\text{Fe}_x\text{Zn}_{1-x}\text{F}_2$ pode exibir uma grande variedade de fases magnéticas, abaixo da temperatura crítica T_c , como mostrado a seguir. [$T > T_c$ a fase é Paramagnética (PM)].

Considerando-se $H = h_i = 0$ e

(a) $J_{ij} = J$ o sistema pode ser encontrado em duas fases magnéticas: Ferromagnética (F), com $J < 0$, e Antiferromagnética (AF) com $J > 0$;

(b) J_{ij} dado por uma distribuição de probabilidades $P(J_{ij})$, em geral gaussiana ou bimodal, o sistema passa a assumir o comportamento típico do Modelo de Ising com Interações de Troca Aleatórias (*Random Exchange Ising Model* - REIM).

Considerando-se $H = 0$ e $h_i \neq 0$, o sistema passa a assumir o comportamento típico do Modelo de Ising com Campo Aleatório (*Random Field Ising Model* - RFIM).

Fazendo-se, ainda, $h_i = 0$ e $H \neq 0$, com $\bar{\epsilon}_i \neq 1$ e $J_{ij} = J > 0$, o hamiltoniano é do tipo DAFF (*Diluted AF in a Field*). Como discutido no Cap. 3, o sistema $\text{Fe}_x\text{Zn}_{1-x}\text{F}_2$ é bem descrito [7] por este hamiltoniano numa extensa região de seu diagrama de fases, incluindo comportamentos VS e dos tipos REIM e RFIM, este último associado ao hamiltoniano DAFF via mapeamento matemático a baixos campos e diluições [20, 21].

A partir de agora será feita uma breve revisão dos principais modelos teóricos que descrevem a fase VS por esta ser de interesse neste trabalho.

2.2.2 Modelo de Edwards-Anderson (EA)

O primeiro modelo teórico proposto com o objetivo de explicar o comportamento VS apresentado por alguns resultados experimentais é o modelo de Edwards e Anderson (EA) [22], descrito pelo hamiltoniano, a campo nulo,

$$\mathcal{H} = \sum_{i,j} J_{ij} S_i S_j \quad (2.3)$$

onde J_{ij} representa interações entre spins S_i e S_j primeiros vizinhos, com distribuição $P(J_{ij})$. Através de um estudo de campo médio de alcance finito EA propuseram um novo parâmetro de ordem dado por

$$q(t_1, t_2) = \langle S_i(t_1) \cdot S_i(t_2) \rangle , \quad (2.4)$$

que descreve correlações no tempo, ao invés das correlações de longo alcance usuais no espaço. É exatamente o valor diferente de zero da função de correlação local no tempo que diferencia a fase VS do estado PM [23]. A campo nulo, na fase VS, tem-se que

$$\lim_{|t_1 - t_2| \rightarrow \infty} q(t_1, t_2) = q > 0, \text{ para } T < T_c, \quad (2.5)$$

$$= 0 \quad , \quad T > T_c, \quad (2.6)$$

$$= 1 \quad , \quad T = T_c. \quad (2.7)$$

2.2.3 Modelo de Sherrington-Kirkpatrick (SK)

A extensão do hamiltoniano EA para alcance infinito foi realizada por Sherrington-Kirkpatrick [6]. Tal proposta é conhecida como modelo SK. Através do truque das

réplicas SK conseguiram chegar às mesmas conclusões de EA via solução de campo médio. Entretanto, Almeida e Thouless [24] mostraram que a solução de SK era instável acima da linha

$$\frac{T_f(0) - T_f(H)}{J} = \left(\frac{3}{4}\right)^{1/3} \left(\frac{H}{J}\right)^{2/3}, \quad (2.8)$$

conhecida como linha AT. Abaixo da linha AT (onde a simetria de réplicas é quebrada, como determinado por Parisi [5]) um único parâmetro de ordem não é suficiente para a descrição das propriedades estáticas, sendo para isso necessário uma função parâmetro de ordem $q(x)$. Desse modo, seguindo o cenário de quebra de simetria de réplicas de Parisi no modelo SK, a fase VS subsiste na presença de H e o estado fundamental é multidegenerado, apresentado na estrutura de múltiplos mínimos locais de energia.

2.2.4 Modelo de *droplets*

Estes modelos citados têm em comum o spin como unidade fundamental, além de serem fundamentados nos estudos de campo médio de curto alcance, no caso de EA, e de longo alcance, no caso de SK e na formulação de Parisi. Porém, há também um outro tipo de proposta na qual a unidade fundamental passa ser um aglomerado de spins com ordem interna bem definida, também denominado *cluster* ou *droplet*. De fato, o modelo de *droplets*, proposto por Fisher e Huse [4, 3] através de estudos via teoria de escala e grupo de renormalização para sistemas Ising de curto alcance, resultou no cenário de crescimento e relaxação de domínios, descrito na próxima seção.

Os *droplets* são domínios de spins reversos em relação ao estado fundamental,

que, segundo este modelo, é previsto ser o único (ao menos da degenerescência trivial *up* ou *down* de spins). Tais inversões podem ser causadas por flutuações térmicas ou pela ação de um agente externo, como por exemplo um campo magnético. As barreiras de energia de tais domínios no estado fundamental são determinadas através da diferença de energia entre condições de contorno periódicas e aperiódicas aplicadas ao sistema. Ao tratar desses domínios à temperatura finita, passa-se a lidar com energia livre ao invés de energia simplesmente. Porém, por hipótese do modelo, quando uma quantidade L^d de spins conseguem inverter, o custo energético associado a esta inversão é proporcional a L^θ , $0 < \theta < (d - 1)/2$. A dinâmica das excitações de *droplets* é governada pela ativação térmica sobre as barreiras de energia cujas alturas escalam com L^Ψ , com $\theta \leq \Psi \leq (d - 1)$. É importante notar que, no que diz respeito a aplicação de um campo magnético externo, o modelo de *droplets* preve qualquer campo $H \neq 0$ destrói a fase VS e que a curva AT tende a zero em tempos de observação maiores. Parte da dificuldade em se discernir claramente qual dos modelos, SK ou *droplets*, é mais adequado para a descrição de VS realistas, com tamanho finito e interações de alcance limitado entre os spins, deve-se à dinâmica extremamente lenta que envolve tal fase. Assim, previsões como a destruição da fase VS pelo campo, dentre outras, envolveriam tempos de observação experimental e computacional fora das atuais possibilidades, mantendo a discussão ainda bastante ativa [25] (estudos atuais suportando ambos os cenários experimentais e teóricos podem ser vistos em [26] e [27, 28, 29, 30] respectivamente).

No presente trabalho será verificado no Cap. 5 que a dinâmica das autocorrelações de spins através de vários protocolos no sistema VS $\text{Fe}_x\text{Zn}_{1-x}\text{F}_2$ encontram-se de acordo com o cenário de crescimento e relaxação de domínios proposto pelo modelo de *droplets*. De fato, como poderá ser observado, para H suficientemente

intensos a natureza da fase a $x = 0.25$ e campo nulo parece ser modificada de forma significativa pelo campo.

2.3 Crescimento de domínios

Todos os sistemas na natureza buscam sempre um estado de configuração de equilíbrio. O que acontece em vidros, de um modo em geral, é que estes estados não são acessíveis nas escalas de tempo observáveis, tanto em simulações computacionais quanto em experimentos reais. No caso de VS, na presença ou não de campo magnético externo, essas tendências de equilíbrio serão tratadas nesta seção fazendo referência ao modelo de *droplets* [4, 3], com o crescimento de domínio nos regimes longe e perto da percolação [31].

No estudo do fenômeno de crescimento de domínios, um protocolo experimental padrão é realizado no qual o sistema é *quenched*, (i.e., bruscamente resfriado) de uma temperatura alta na região PM para uma temperatura baixa, menor do que a temperatura de transição do material. Na evolução dinâmica do sistema a partir deste *quench*, o tamanho das regiões que crescem de forma ordenada, denominadas domínios, evolui em função do tempo [16]. Para sistemas puros, distantes da região crítica o tamanho linear típico dos domínios, $L(t)$, cresce, em geral, segundo uma lei de potência da forma [16]

$$L(t) \sim t^n, \quad (2.9)$$

onde n depende da dimensionalidade do parâmetro de ordem. Em sistemas Ising, o tamanho típico dos domínios $L(t)$ pode assumir a lei de crescimento LAC (Lifschitz-Allen-Cahn) [32, 33],

$$L^2 \sim t, \quad (2.10)$$

ou seja, $n = 1/2$.

De forma geral, o mecanismo de crescimento de domínios distante da transição de fase é regido pela ativação térmica sobre barreiras de energia livre $\Delta F(L)$. Assim, pode-se dizer que num instante de tempo t domínios de tamanho $L(t)$ estarão termicamente ativados de acordo com a lei de Arrhenius,

$$t = t_0 \exp[\Delta F(L)/k_B T], \quad (2.11)$$

onde t_0 denota um tempo típico microscópico do sistema e k_B é a constante de Boltzmann.

Por outro lado, na vizinhança de uma transição de fase de segunda ordem ocorre o fenômeno conhecido como *critical slowing down*, onde o comprimento de correlação térmico ξ_T e o tempo de relaxação τ estão relacionados por

$$\tau \sim \xi_T^z, \quad (2.12)$$

com divergência de ξ_T em $T \rightarrow T_c$, ou seja, $\xi_T \sim |T - T_c|^{-\nu}$, e z denotando o expoente crítico dinâmico, que por sua vez é independente da temperatura. Nesse regime as flutuações críticas ocorrem em todas as escalas de comprimento do sistema. Como é de interesse neste trabalho lidar com temperaturas abaixo de T_c , será dada maior ênfase ao crescimento de domínios via ativação térmica, longe da transição de fase, isto é na região onde espera-se que exista a fase VS e é válida a relação $L(t) \ll \xi_T$.

Para temperaturas nulas, as excitações de baixas energias de sistemas VS pro-

duzem *droplets* de spin reversos (com respeito à configuração de equilíbrio esperada a $T = 0$) e energia típica $\Delta F \sim JL^y$. (Em sistemas com ordenamento magnético “convencional”; como num ferromagneto, os domínios seriam delimitados por paredes regulares $d - 1$ dimensionais, tal que $\Delta F \sim JL^{d-1}$; no caso dos VS, o expoente $y < d - 1$ deve-se à estrutura fractal destas paredes de domínios). Ainda nesse caso, a introdução de uma pequena mudança na distribuição de interações de *exchange* entre os spins, δJ , causará uma variação nas barreiras de energia por uma quantidade $\delta JL^{d_s/2}$, onde d_s indica a dimensionalidade fractal das paredes de domínios do sistema e o expoente $d_s/2$ indica a dependência da magnetização residual com o número de spins numa configuração VS em que os spins estão distribuídos *up* e *down* aleatoriamente. Para a situação de novo rearranjo, essas energias se balanceiam de tal forma que o tamanho típico dos domínios ainda no estado fundamental será da forma

$$L_J \propto (J/\delta J)^{1/(d_s/2-y)} . \quad (2.13)$$

Quando um pequeno acréscimo de temperatura é dado ao estado fundamental, basta substituir δJ na Eq.(2.13) por δT , fazendo com que os novos domínios tenham tamanho típico

$$L_T \propto (J/\delta T)^{1/(d_s/2-y)} . \quad (2.14)$$

Um grande desafio em teoria de dinâmica interfacial em sistemas desordenados é calcular $\Delta F(L)$, ou seja, determinar a forma com que $\Delta F(L)$ escala com $L(t)$ [16]. A desordem inserida em sistemas puros em geral aumenta as barreiras de energia existentes nas interfaces dos domínios de tamanho $L(t)$. O interesse, portanto, é compreender como as barreiras de energia são afetadas pela presença de desordem no sistema. No modelo de *droplets* convencional [4, 3], ou seja, longe da concen-

tração de percolação, supõe-se que a barreira da energia livre de excitações de baixa energia do sistema e o comprimento típico $L(t)$ estão relacionados por uma lei de potência: $\Delta F(L) \propto L(t)^\Psi$, onde Ψ é expoente que descreve como as barreiras de energia variam com a escala de comprimento. Porém, no limiar da percolação, $x \simeq x_p$, a dependência de ΔF com $L(t)$ passa a assumir uma dependência logarítmica, implicando em $\Delta F(L) \propto \ln(L(t)/L_0)$ [34]. Assim, utilizando a lei de Arrhenius, Eq. (2.11), tem-se que

$$\Delta F(L) \sim k_B T \ln(t/t_0). \quad (2.15)$$

Os resultados acima implicam em

$$L(t) \sim [k_B T \ln(t/t_0)]^{\frac{1}{\Psi}}, \quad (2.16)$$

para o modelo de *droplets* convencional [4, 3], e

$$L(t) \sim (t/t_0)^{\frac{k_B T}{C}}, \quad (2.17)$$

para o modelo de *droplets* em $x \simeq x_p$ [31], onde C representa uma constante de proporcionalidade, a qual deve, em geral, depender da temperatura.

Supondo agora um sistema na fase VS a campo nulo, quais as implicações esperadas na visão de crescimento de domínios ao se aplicar um campo magnético uniforme? A energia livre devido ao campo é $\Delta F_H(L) \propto H L^{d/2}$, onde, como discutido, o expoente $d/2$ vem do fato de que a magnetização aproximadamente zero do estado VS implica que há tantos spins para cima quanto para baixo, de modo que a magnetização residual é proporcional à raiz quadrada do número de spins; no caso ferromagnético, em contraste, a magnetização Zeeman é simplesmente proporcional ao número de spins. Ao se aplicar o campo o sistema irá induzir a formação de

domínios estáveis internamente, porém fora do equilíbrio externamente. O tamanho máximo típico desses domínios, L_H , é dado por

$$L_H \sim \left(\frac{J}{H} \right)^{1/(d_s/2-y)} ; \quad (2.18)$$

L_H é, portanto, uma escala de comprimento de passagem (*crossover*) entre esses dois regimes, determinada a partir do balanço entre a energia livre devido ao termo de exchange, $\Delta F_J \sim J L^{d-1}$, e a energia livre devido ao campo, ΔF_H .

Durante experimentos e simulações computacionais realizados em tempos finitos, o tamanho L_w atingido por esses domínios durante a aplicação do campo num intervalo de tempo t_w , como previsto pelo modelo de *droplets* longe da concentração de percolação, é

$$L_w \sim [k_B T \ln(t_w/t_0)]^{\frac{1}{\psi}} , \quad (2.19)$$

e perto da percolação,

$$L_w \propto (t_w/t_0)^{\frac{k_B T}{C}} . \quad (2.20)$$

Ao se comparar L_w e L_H depara-se, de modo geral, com duas situações distintas:

i- $L_H > L_w$: Enquanto L_w está nesse regime, será possível observar o fenômeno de *aging* do sistema, uma vez que o tamanho dos domínios será controlado pelo tempo de espera (*waiting time* t_w).

ii- $L_H < L_w$: Quando acontecer esta situação, todos os domínios já terão atingido seu tamanho máximo L_H e o sistema como um todo estará em busca do equilíbrio. Contudo, o sistema reduzirá sua capacidade de guardar consigo a história

de crescimento (dependência dos resultados com t_w), uma vez que este histórico é determinado pelo tamanho L_w enquanto ele é menor que L_H .

Entendido o processo geral de crescimento de domínios com a aplicação de um campo magnético durante um tempo t_w , agora será mostrado o que acontece ao se retirar o campo, ou seja como se processa a relaxação.

Inicialmente observa-se que o sistema é constituído de domínios de tamanho L_w imediatamente ao se retirar o campo. Com a ausência do campo o sistema é induzido a buscar um estado de configuração de equilíbrio a campo nulo. O processo de novo equilíbrio não é instantâneo, e acontecerá com a formação de domínios com equilíbrio interno a campo nulo, de tamanho típico $L(t)$, onde t denota o tempo passado após a retirada do campo. Assim como L_w , $L(t)$ terá dois regimes distintos:

i- $L(t) < L_w$: Essa região temporal é denominada de região de quase-equilíbrio, a qual é bem caracterizada pela relaxação extremamente lenta do sistema. Nessa fase ocorrem rearranjos internos dos spins no sentido de estabelecer um equilíbrio interno a campo nulo nos domínios formados na fase anterior. Eventualmente, tais rearranjos passam a ocorrer em escalas $L(t) = L_w$ após $t = t_w$.

ii- $L(t) > L_w$: Também chamado de regime de *aging*, esta etapa é caracterizada pela busca do sistema como um todo em atingir o equilíbrio a $H = 0$. Assim, nesse regime ocorre um crescimento relativamente rápido dos domínios a partir do tamanho L_w .

As considerações acima discutidas sobre crescimento e relaxação de domínios serão úteis na análise dos dados no sistema $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$, via simulação Monte Carlo, através dos protocolos *ZFC-Quenched*, *ZFC-Lento*, *FC* e dos ciclos de his-

terese (veja Cap. 5).

2.4 Função de autocorrelação temporal

A função de autocorrelação temporal de spins de dois tempos, é definida como

$$C(t, t_w) = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \langle S_i(t_w) S_i(t + t_w) \rangle , \quad (2.21)$$

onde N é o número de spins da rede, $S_i(t + t_w)$ indica o valor do spin para o i -ésimo sítio da rede no final de um tempo $t + t_w$, sendo $S_i(t + t_w) = S_i(t_w)$ quando $t = 0$ e $\langle \rangle$ denota a média térmica. Tal quantidade é uma importante ferramenta no estudo de dinâmica de VS. Existem formas alternativas de calcular $C(t, t_w)$. Uma delas é feita a partir da distribuição de volume dos domínios e da sua ativação sobre barreiras de energia livre de altura típica $\Delta F(L)$, como mostrado em detalhes no trabalho de Barbosa e colaboradores para o sistema $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$ em sua fase VS [10, 8]. Embora $C(t, t_w)$ seja uma quantidade acessível somente através de tratamentos teóricos, analíticos ou computacionais, é possível relacioná-la à função resposta magnética, dada por

$$\chi_{ZFC}(t, t_w) = \frac{1}{NH} \sum_{i=1}^N \langle S_i(t + t_w) \rangle , \quad (2.22)$$

onde H é o campo magnético aplicado, de forma que

$$\chi_{ZFC}(t) = \frac{1 - C(t)}{T} , \quad (2.23)$$

sendo T a temperatura em que o sistema está termalizado e $C(t) \equiv C(t, t_w = 0)$. Tal relação é válida equanto $t < t_w$, ou seja no regime de quase-equilíbrio onde se aplica o Teorema de Flutuação e Dissipação (FDT) [35].

Como se fosse possível atingir o estado de equilíbrio genuíno de um VS no regime de longos tempos t e t' (Se é que tal estado de fato existe), teria-se que $\langle S_i(t)S_i(t') \rangle = 1$, isto é, $C(t, t') = 1$, implicando que os spins estariam congelados. Contudo, a dinâmica em tais sistemas é extremamente lenta e ocorrem mudanças e flutuações inevitáveis nas configurações inicial de spins, originando domínios que por sua vez indicam um estado fora do equilíbrio, fazendo com que $C(t, t') < 1$ mesmo para os mais longos tempos experimentais e numéricos a que até agora se teve acesso. Esses domínios têm energia livre $\Delta F(L) \sim JL^y$, como visto anteriormente. De acordo com a hipótese da teoria de escala mostrada em [34], a probabilidade de se ter um domínio de tamanho L na configuração de equilíbrio é escrita como

$$P(\Delta F(L)) \propto \frac{f_L}{\Delta F(L)} \propto \frac{f_L}{L^y}, \quad (2.24)$$

ou seja, quanto maior a energia do domínio, menos provável dele existir; f_L é a função de escala definida como

$$f_L = f_L(\Delta F(L)/L^y). \quad (2.25)$$

Por outro lado, a função de correlação $C(t)$, por ter valor modificado pela existência ou não dos domínios, deve ser proporcional justamente à probabilidade deles existirem:

$$C(t) \propto P(\Delta F(L)) \propto \frac{1}{L^y}. \quad (2.26)$$

Substituindo na expressão acima as equações para $L(t)$ calculadas anteriormente, obtém-se, no regime $t \ll t_w$ de relaxação interna de spins nos domínios via ativação térmica sobre barreiras de energia:

$$C(t) \propto 1/[k_B T \ln(t/t_0)]^{y/\Psi}, \quad (2.27)$$

no modelo de *droplets* convencional, e

$$C(t) \propto 1/(t/t_0)^{y k_B T/C}, \quad (2.28)$$

no modelo de *droplets* em $x \simeq x_p$.

No caso de crescimento mais rápido de domínios via ativação sobre barreiras (regime de *aging*), o cálculo é basicamente o mesmo, com uma pequena mudança no expoente de y para $\lambda > y$:

$$C(t) \propto 1/[k_B T \ln(t/t_0)]^{\lambda/\Psi}, \quad (2.29)$$

no modelo de *droplets* convencional, e

$$C(t) \propto 1/(t/t_0)^{\lambda k_B T/C}, \quad (2.30)$$

no modelo de *droplets* em $x \simeq x_p$.

A análise acima, em particular as equações Eqs. (2.28) e (2.30), será extremamente aplicada no Cap. 5 na interpretação dos dados de $C(t, t_w)$, obtida via simulação Monte Carlo do sistema $\text{Fe}_x\text{Zn}_{1-x}\text{F}_2$, em $x = 0.25 \simeq x_p = 0.24$, através de diversos protocolos. Nesse caso, os expoentes, $x(T, H)$ e $\lambda(T, H, t_w)$ poderão ser identificados como:

$$x(T, H) = y_B T/C \quad (2.31)$$

no regime de quase-equilíbrio e

$$\lambda(T, H) = \lambda_B T/C \quad (2.32)$$

no regime de *aging*.

Capítulo 3

O Antiferromagneto Desordenado

$\text{Fe}_x\text{Zn}_{1-x}\text{F}_2$

3.1 O Antiferromagneto FeF_2

O antiferromagnetismo é um tipo de fase magnética onde os momentos magnéticos de sítios primeiros vizinhos alinham-se na mesma direção, porém em sentidos opostos. Como consequência, os momentos cancelam-se entre si, resultando em uma magnetização total nula. A transição de fase para um estado antiferromagnético é conhecida como transição de Néel e ocorre à temperatura chamada temperatura de Néel, T_N . Acima de T_N a energia térmica excede a energia de troca e o material torna-se paramagnético [36].

A magnetização na fase antiferromagnética (AF) é nula se tomada em toda a rede, porém não é nula se considerada em cada subrede isolada (magnetização de sub-rede ou *staggered*). Para $T > T_N$, contudo, mesmo a magnetização de sub-rede é nula. Assim, a magnetização de subrede é o parâmetro de ordem de tal fase.

Um exemplo de um antiferromagneto é o isolante FeF_2 , cujos íons de ferro encontram-se dispostos nos vértices de uma rede tetragonal de corpo centrado, como mostrado na Fig. 3.1. Por não possuir momento magnético, o flúor presente não interfere nas propriedades magnéticas do material. Desta forma, tais íons serão omitidos em considerações posteriores dessa natureza.

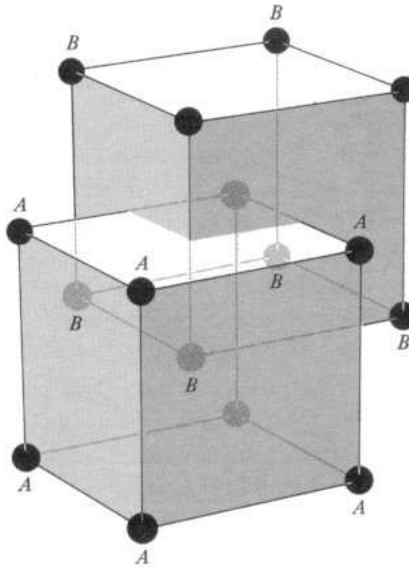


Figura 3.1: Esquema 3d de uma rede BCC. Na rede tetragonal de corpo centrado a aresta ao longo de um dos eixos tem tamanho distinto das arestas perpendiculares a ela.

O FeF_2 é uma realização experimental quase perfeita de um sistema Ising tridimensional, onde os spins estão orientados ao longo de um eixo de fácil magnetização do cristal (eixo c). Isto se deve à forte anisotropia de íon único a que os íons de ferro estão sujeitos e também porque as interações de troca entre os spins são predominantemente de primeiros vizinhos [37]. De fato somente para campos magnéticos altíssimos ($H \gtrsim 35T$) a simetria Ising do sistema é quebrada, e uma fase *spin-flop*

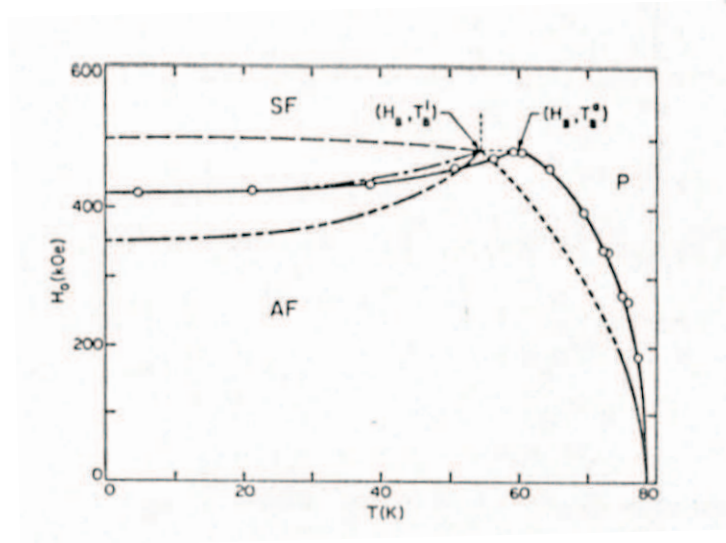


Figura 3.2: Diagrama de fases H vs. T do FeF₂, [38, 39, 40] mostrando as fronteiras das fases AF-SF (*spin flop*) e AF-PM, representadas pelas linhas cheias, e as linhas de estabilidade representadas pelas linhas tracejadas.

se origina a baixas temperaturas, como mostra a Fig. 3.2; nesta fase os spins médios apresentam componentes transversais (ao eixo fácil) não nulas.

Do ponto de vista estrutural, o FeF₂ é isomorfo aos compostos ZnF₂, MnF₂ e CoF₂. A campo magnético nulo, o FeF₂ sofre uma transição AF-PM a uma temperatura $T_N=78.4\text{K}$ [38, 41].

O Hamiltoniano para o cristal a campo nulo deve então ser escrito como

$$H = \sum_i H_s^i + \sum_l \sum_{\langle m, \delta_l \rangle} J_l \mathbf{S}_m \cdot \mathbf{S}_{m+\delta_l} + H_{dd} . \quad (3.1)$$

O primeiro termo,

$$H_s^i = -DS_{iz}^2 + E(S_{ix}^2 - S_{iy}^2), \quad (3.2)$$

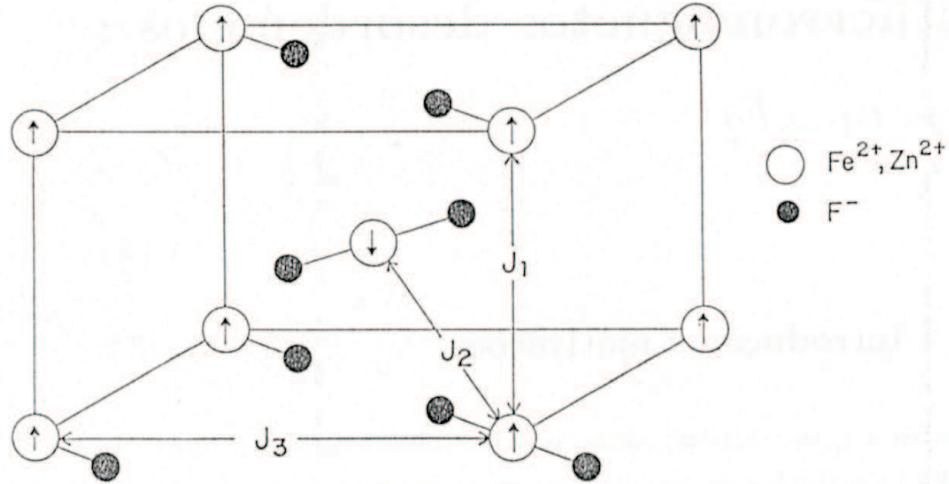


Figura 3.3: Representação do isolante FeF_2 , mostrando os tipos de interações de troca J_l entre os íons de Fe^{+2} de primeiros vizinhos [37]

leva em conta os efeitos de campo cristalino e o acoplamento spin-órbita dos íons Fe^{+2} , dominado pela forte anisotropia de íon único do sistema. O segundo termo é o termo de *exchange*, onde l é somado sobre os diferentes tipos de vizinhos, e $\langle m, \delta_l \rangle$ denota a soma sobre todos os pares dos l -ésimos íons vizinhos m e $m + \delta_l$; cada par de íons é incluso uma única vez. Os primeiros tipos de vizinhos para um dado íon de Fe^{+2} são indicados na Fig. 3.3. O terceiro termo da Eq. (3.1) representa a interação magnética dipolo-dipolo.

No trabalho de Hutchings *et al.* [37] foram determinados $D = (6.46 \pm 0.29) \text{ cm}^{-1}$, J_1 (acoplamento de primeiro vizinho ao longo do eixo c) = $(-0.048 \pm 0.060) \text{ cm}^{-1}$, J_2 (acoplamento de primeiro vizinho para íons dos vértices e o corpo do centro da célula) = $(+3.64 \pm 0.10) \text{ cm}^{-1}$ e J_3 (acoplamento de primeiro vizinho ao longo do eixo a) = $(+0.194 \pm 0.060) \text{ cm}^{-1}$. Como comentado a seguir, a forte anisotropia de

ión único do sistema permitirá descrevê-lo via o hamiltoniano Ising, para campos menores que $H \lesssim 35T$ e em toda a extensão de concentrações de íons magnéticos, x .

3.2 O Antiferromagneto Desordenado $\text{Fe}_x\text{Zn}_{1-x}\text{F}_2$

A desordem pode ser introduzida num sistema através da substituição aleatória de íons magnéticos por átomos que possuam momentos magnéticos nulos. Ao lidar com o composto FeF_2 , uma boa escolha para a substituição dos íons Fe^{+2} é o Zn^{+2} devido ao isomorfismo comentado na seção anterior. A grande riqueza no diagrama de fases do composto $\text{Fe}_x\text{Zn}_{1-x}\text{F}_2$ e o fato deste ser uma representação experimental do modelo de Ising-3d [42] justificam a extensa gama de investigações nas últimas décadas.

Montenegro e colaboradores [7, 15] realizaram um intenso trabalho na tentativa de mapear o diagrama de fase desse composto, mostrando inclusive que para $x < 0.31$ o mesmo apresenta características de vidros de spin. Na Fig. 3.4, é ilustrado um diagrama de fases esquemático do composto $\text{Fe}_x\text{Zn}_{1-x}\text{F}_2$ em função de T , H e x . De modo geral, nota-se que a linha crítica $T_c(H)$ que separa a fase PM da fase com configuração AF de spins (fase AF a $x = 1.0$; fase REIM a $x < 1.0$ e $H = 0$; fase RFIM a $x < 1.0$ e $H \neq 0$) se extingue em $x \simeq 0.3$. De fato, para concentrações menores (porém superiores a $x_p \simeq 0.24$, concentração de percolação abaixo da qual nenhum tipo de ordem de longo alcance existe), o sistema apresenta-se no estado VS a $H = 0$ e, ao menos nas escalas de tempo observáveis, também a $H \neq 0$. Nessa fase a linha de equilíbrio $T_{eq}(H)$ (linha de irreversibilidade, $T_i(H)$, ou linha de *Almeida-Thouless*, AT [24]) marca a fronteira para a fase PM. Observa-

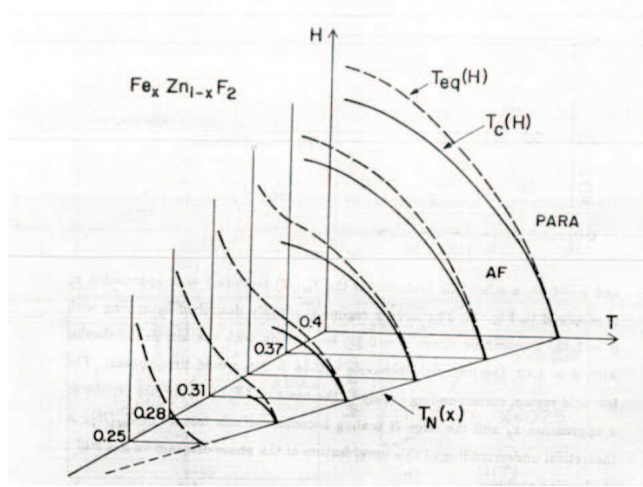


Figura 3.4: Diagrama de fases do composto $\text{Fe}_x\text{Zn}_{1-x}\text{F}_2$ em função de T , H e x [13, 45, 46, 47].

se que para $x \geq 0.3$ tal linha possui concavidade oposta à da fase VS, típica do comportamento RFIM; de fato, em maiores x a mudança de concavidade observada indica um cruzamento (*crossover*) entre os comportamentos RFIM e vítreo para altos campos. Mais recentemente, a caracterização mais detalhada destas fases ainda tem revelado interessantes propriedades [43, 44].

3.3 A Fase Vidro de Spin no composto $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$

A concentração $x = 0.25$ possui características especiais no antiferromagneto $\text{Fe}_x\text{Zn}_{1-x}\text{F}_2$ dada a sua proximidade ao limiar da percolação, $x_p \simeq 0.24$. De fato, os trabalhos realizado por Montenegro e colaboradores [48, 49, 50] mostraram evidências experimentais do comportamento típico vidro de spin do antiferromagneto diluído $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$ a baixas temperaturas [37]. Tais evidências foram observadas através,

por exemplo, das medidas da magnetização (M) e susceptibilidade a.c. (χ), as quais se mostraram fortemente dependentes da história abaixo da temperatura de congelamento, como é esperado em materiais nessa fase magnética. Nota-se que medidas de M e χ feitas depois do resfriamento a campo nulo (procedimento *Zero Field Cooling* - ZFC) são diferentes das realizadas quando o resfriamento é feito com a aplicação do campo (procedimento *Field Cooling* - FC) [23]. A Fig. (3.5) [23, 49] mostra a dependência com a temperatura da magnetização do composto $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$ nos procedimentos ZFC e FC, para vários valores de campos aplicados. Os pontos que definem a linha de irreversibilidade $T_i(H)$ são mostrados na Fig. (3.6), e são determinados a partir da temperatura abaixo da qual as curvas de magnetização ZFC e FC são distintas. Na região acima de T_i na Fig. (3.6) a fase é paramagnética (PM), enquanto que uma fase vidro de spin ocorre abaixo de $T_i(H)$, ao menos nas escalas de tempo observáveis no laboratório. Durante um longo tempo os mecanismos microscópicos responsáveis pela indução da fase vidro de spin não foram totalmente compreendidos, sendo sugerido [23] que tal fase se devia à competição entre as interações de curto alcance, implicando na alteração no balanço das forças de *exchange* devido à grande diluição.

Utilizando a simulação de campo médio sítio a sítio, Raposo e colaboradores [48] mostraram a importância da frustração existente no sistema $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$, e concluíram que a fase vidro de spin se devia ao efeito combinado da pequena frustração presente e a alta diluição aleatória dos íons magnético de Fe^{+2} a $H = 0$. Posteriormente, a existência da fase vidro de spin a $x = 0.25$, mesmo a campo nulo, foi posta em dúvida, via análises de espalhamento de nêutrons [51] e de dinâmica da susceptibilidade a.c., $\chi_{a.c.}$ [52]. Em particular, a análise dos dados de $\chi_{a.c.}$ realizados por Jonason e colaboradores [52], indicou a ausência de uma dinâmica crítica próxima

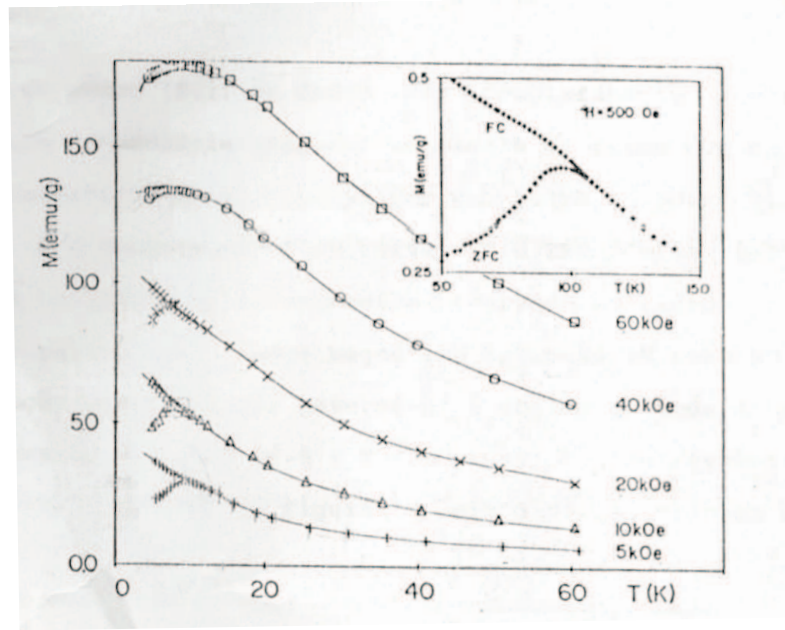


Figura 3.5: Dependência com a temperatura da magnetização do composto $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$ nos procedimentos ZFC e FC, com aplicação de vários valores de campo magnético uniforme [49, 48].

a T_f , então atribuída à inexistência da transição de fase genuína. Entretanto, uma nova análise de dados corroborou o resultado anterior de Rezende *et al.*, segundo o qual a dinâmica crítica prevalece próximo à transição, inclusive com expoentes críticos da classe de universalidade de vidros de spin.

Nos trabalhos recentes de Barbosa e colaboradores [10, 53, 54, 55, 8], usando simulação de Monte Carlo, evidenciou-se o comportamento típico de um vidro de spin genuíno, deixando claro haver a fase vidro de spin mesmo sem o termo de frustração j_3 , sugerindo que a ausência de flutuações térmicas na abordagem dada por [56] superestimou a influência da pequena interação frustrada. Através do comportamento do calor específico mostrou que a frustração só apresenta algum papel

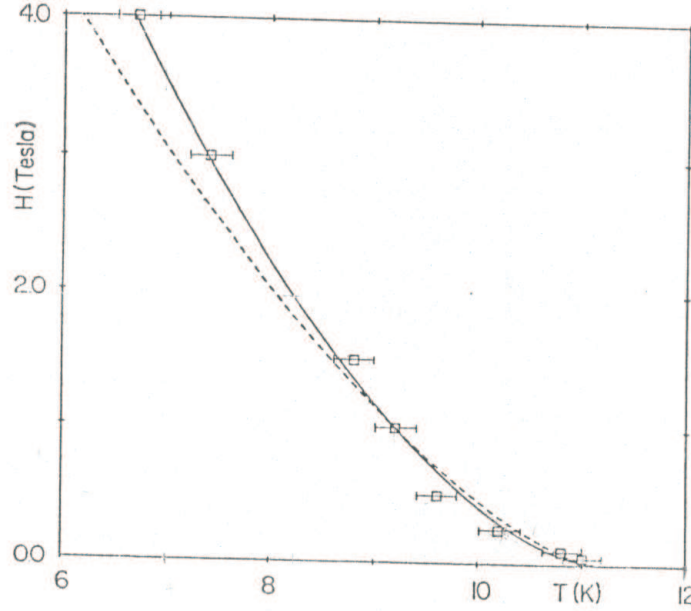


Figura 3.6: Dependência com o campo da temperatura de irreversibilidade, $T_i(H)$, onde a linha sólida é um ajuste proveniente dos dados experimentais [13] e a linha pontilhada é a previsão teórica de Almeida-Thouless [24]

relevante para baixíssimas temperaturas, $T \lesssim 1\text{K}$, como pode ser visto na Fig. 3.7 (b). A análise microscópica do sistema $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$ mostrou que a fase vidro de spin a baixas temperaturas é caracterizada pela presença de aglomerados finitos, com ordem interna AF, orientação aleatória e fortemente correlacionados no tempo e espaço. O estudo da dinâmica, com base na magnetização remanente e função de autocorrelação temporal, mostrou-se que tal composto apresenta todas as características observadas em vidros de spin de curto alcance, bem como está de acordo com o modelo de *droplets* próximo à percolação. Na Fig. 3.7 (a) encontram-se dispostas a curva de histerese, com e sem frustração para alguns valores de temperaturas, na fase vidro de spin, com o detalhe da formação de degraus, ou platôs, na

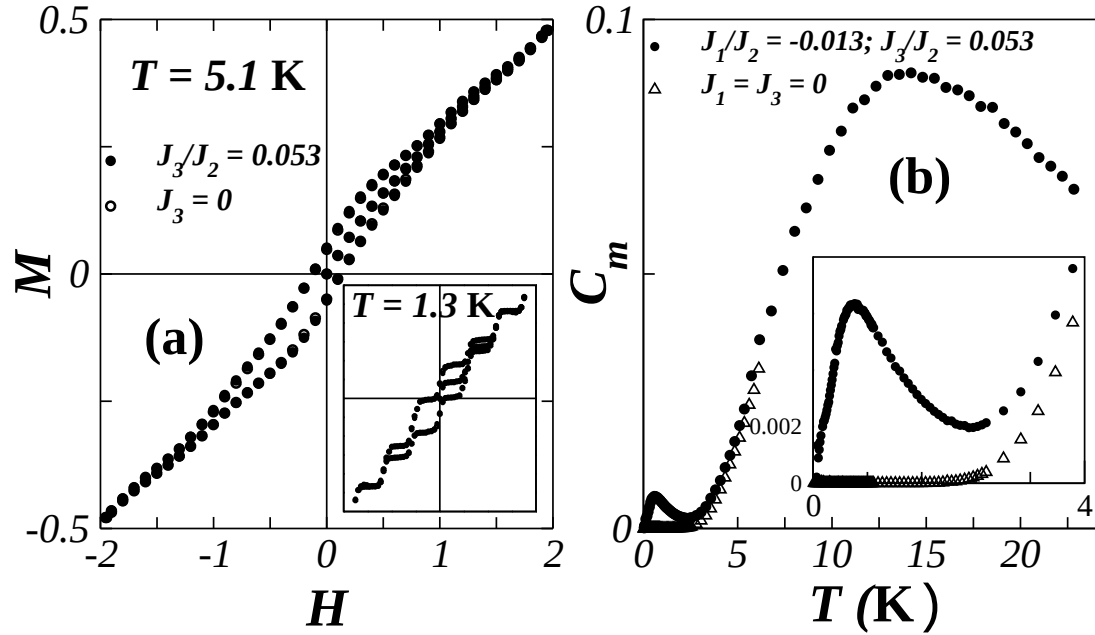


Figura 3.7: (a) Ciclo de histerese a $T = 5.1 \text{ K}$ e $T = 1.3 \text{ K}$ (B) Dependência do calor específico C_m com a temperatura a $H = 0$. Casos frustrado ($J_1/J_2 = -0.013$, $J_3/J_2 = 0.053$) e não frustrado ($J_1 = J_3 = 0$) estão indicados [8].

No trabalho de Brito [9], realizado através da simulação de Monte Carlo, conseguiu-se reproduzir, em bom acordo com os resultados experimentais obtidos por Montenegro *et.al.* [23, 48], a dependência da história com o procedimento adotado para o composto $\text{Fe}_x\text{Zn}_{1-x}\text{F}_2$, a $T < T_f$. Foram feitas medidas de TRM e IRM, Fig. 3.8, e da magnetização remanente que permitiram a determinação da curva de irreversibilidade deste sistema, Fig. 3.9. Além disso, neste trabalho detalhou-se a formação de platôs na curva de histerese. No Capítulo 5, serão apresentados estudos de dinâmica e relaxação no protocolo de histerese, em particular nas regiões de

platôs, interpretados à luz do cenário de crescimento e relaxação de domínios.

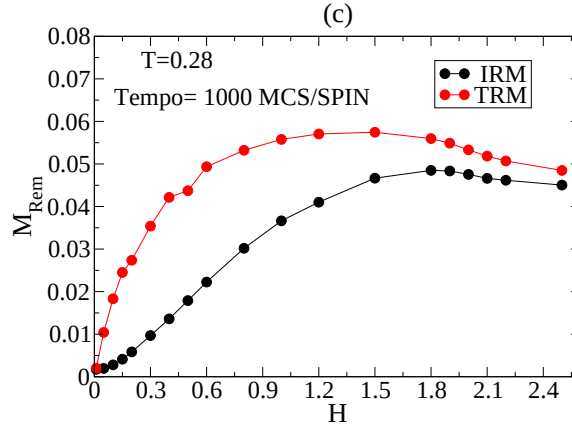


Figura 3.8: Resultado de simulação de Monte Carlo para o composto $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$, mostrando a dependência da magnetização remanente M_{Rem} com o campo H [9].

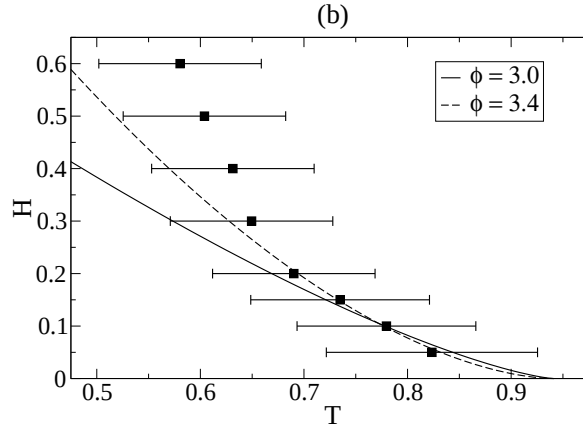


Figura 3.9: Linha de irreversibilidade induzida pelo campo para o sistema $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$, onde a linha cheia representa a linha de Almeida-Thouless [24] e a linha tracejada mostra a estimativa de Brito [9] via simulação Monte Carlo.

Capítulo 4

Monte Carlo

4.1 Introdução

A simulação computacional exerce um papel importante na Ciência contemporânea por ser o elo entre previsões teóricas e resultados experimentais. Além disso, ela permite estudar efeitos complexos do sistema inteiro através de regras de comportamento individuais [57]. Como exemplo, cita-se o sistema antiferromagnético diluído $\text{Fe}_x\text{Zn}_{1-x}\text{F}_2$ em que a dinâmica é descrita a partir do hamiltoniano Ising, com a competição entre as interações de curto alcance, o campo externo aplicado e as flutuações térmicas.

Além das flutuações térmicas inerentes a qualquer sistema físico a temperatura finita, os erros estatísticos ocasionados no processo de simulação devem-se também às limitações computacionais (a memória que limita o tamanho do sistema e a velocidade da CPU que restringe o tempo de observação ou o número de passos da simulação)[57]. Tais erros podem em geral ser minimizados aumentando-se o número de amostras estudadas e o tamanho do sistema, bem como o tempo de simulação.

A simulação computacional permite gerar informações sobre o sistema de interesse em nível microscópico [57], como, por exemplo, as orientações dos spins em um sistema Ising. A conversão dessa informação em termos macroscópicos é dada pela Mecânica Estatística, podendo ser de equilíbrio ou de não-equilíbrio de acordo com o sistema estudado. As posições dos íons magnéticos e as orientações dos spins definem uma configuração. De acordo com o método utilizado, regras de inversão dos spins são estabelecidas. No modelo de Ising, por exemplo, a cada novo conjunto de orientações de spins, uma nova configuração é gerada e a evolução da simulação se dá através de inversões sucessivas dos spins, ou seja, da geração de sucessivas configurações.

Existem dois tipos de processos para gerar as configurações: o determinístico e o estocástico. No processo determinístico, a partir do potencial de interação as forças atuantes são calculadas e as equações de movimento são resolvidas para um intervalo de tempo; ou então, a média estatística é tomada sobre **todas** as configurações acessíveis ao sistema. Este tipo de processo não pode ser aplicado ao nosso caso pois o número de spins envolvidos é muito superior aos recursos computacionais disponíveis, de modo que, no caso da simulação estocástica Monte Carlo, o processo de medição é realizado não sobre todas as configurações permitidas, mas sim sobre as configurações estatisticamente mais relevantes (*importance sampling*) [58].

Como utilizou-se o método Monte Carlo para os estudos realizados neste trabalho, será feita neste capítulo uma breve apresentação do método, mostrando as regras de atualização dadas pelos algoritmos de Metropolis e de banho térmico (*heat bath*), bem como os protocolos “experimentais” usados na simulação computacional.

4.2 O método Monte Carlo e a Mecânica Estatística

O estudo da natureza feito a partir da Mecânica Estatística se dá pela observação e medida dos valores médios das grandezas físicas. Para isso é necessário realizar antes de tudo a escolha do *ensemble* estatístico que melhor se adequa ao problema.

O total das configurações acessíveis ao sistema depende diretamente da quantidade de graus de liberdade do mesmo. O valor médio de um observável A , $\langle A \rangle$, é obtido através da expressão:

$$\langle A \rangle = \sum_{l=1}^{N_E} P_l A_l, \quad (4.1)$$

onde N_E indica o número de configurações permitidas ao sistema e P_l é a distribuição de probabilidade do sistema. No caso do modelo de Ising com N sítios, como há duas possibilidades para os valores de spin em cada sítios, essa soma deve ser realizada sobre 2^N configurações. P_l é definido de acordo com o tipo de *ensemble* do sistema. Para este trabalho o *ensemble* canônico é o mais adequado uma vez que o número de íons magnéticos permanece inalterado e é dado pela concentração $x = 0.25$. Assim P_l neste *ensemble* é dado pelo peso de Boltzmann:

$$P_l = \frac{e^{-\beta E_l}}{\sum_{m=1}^{N_E} e^{-\beta E_m}}, \quad (4.2)$$

onde E_l é a energia do estado l , $\beta = 1/k_B T$, T é a temperatura do reservatório térmico e k_B é a constante de Boltzmann.

Os resultados das médias da Eq. (4.1) estão de acordo com os valores obtidos pela Termodinâmica quando o tamanho do sistema N vai ao infinito, ou seja no limite termodinâmico, $N \rightarrow \infty$. Para N grande, torna-se então impraticável utilizar

uma fórmula dessa natureza para efetuar cálculos numéricos [59]. Na tentativa de estudar sistemas através da Mecânica Estatística via simulação computacional, deve-se restringir o tamanho do sistema, tornando-o finito, uma vez que a reprodução direta do limite termodinâmico é impraticável. O método de Monte Carlo apresenta-se como uma opção eficaz no estudo de sistemas finitos, no qual a média da Eq. (4.1) não é feita sobre todos os possíveis estados e sim somente para os valores mais representativos, fazendo com que $\langle A \rangle$ possa ser obtida como,

$$\langle A \rangle = \frac{1}{M} \sum_{i=1}^M A_i . \quad (4.3)$$

O problema consiste em saber as circunstâncias em que o valor esperado da grandeza A pode ser obtido, de forma satisfatória, pela (4.3). O método Monte Carlo responde a estas perguntas de maneira satisfatória, como será visto em seguida.

A idéia do método Monte Carlo [59] consiste em escolher uma sequência de configurações independentes, constituindo uma cadeia de Markov. Algumas configurações iniciais são geradas longe do equilíbrio, mas à medida que o tempo evolue o sistema tende a ocupar configurações mais próximas do equilíbrio, as quais podem ser utilizadas para a média da Eq. (4.3). Designando por $w(y \rightarrow y')$ a probabilidade de transição entre as configurações y e y' , pode-se escrever a equação mestra,

$$\frac{\partial}{\partial t} P(y, t) = \sum_{y'} [w(y' \rightarrow y) P(y', t) - w(y \rightarrow y') P(y, t)] . \quad (4.4)$$

Depois de percorrer um número suficientemente grande de elementos da sequência, as probabilidades passarão a assumir a forma mostrada na Eq. (4.2). Uma condição suficiente para o equilíbrio é dada pela equação do balanço detalhado,

$$P_0(y)w(y \rightarrow y') = P_0(y')w(y' \rightarrow y) . \quad (4.5)$$

Assim, as probabilidades devem ser escolhidas de tal forma que

$$\frac{w(y \rightarrow y')}{w(y' \rightarrow y)} = \exp(-\beta\Delta H) , \quad (4.6)$$

onde ΔH é a diferença de energia entre as configurações y e y' .

Duas escolhas freqüentes para as transições de probabilidade $w(y \rightarrow y')$ em simulações Monte Carlo são dadas a seguir.

1- Algoritmo de Metropolis. Neste algoritmo sempre aceita-se que o sistema mude de estado se a energia do estado y for maior que a do estado tentativa y' ; caso contrário, se $\Delta H > 0$, a mudança de estado se processará de acordo com a probabilidade $\exp(-\beta\Delta H)$, ou seja,

$$F(x) = \text{Min}(x, 1) , \quad (4.7)$$

onde x é um número aleatório gerado e $F(x)$ a função que define a escolha do valor mínimo entre este número e 1, sendo esta por sua vez comparada ao peso de Boltzmann mostrado na Eq. (4.2); assim, se $F > P$ o sistema permanecerá inalterado; caso contrário, o sistema aceitará a nova configuração. No caso do modelo de Ising com interações de curto alcance, escolhe-se um spin i aleatoriamente e calculam-se as energias locais do estado atual e do tentativo; em seguida, determina-se a diferença de energia ΔH_i , invertendo-se o spin se esta for negativa ou, caso contrário, segundo uma probabilidade $\exp(-\beta\Delta H_i)$.

2- Algoritmo de Banho Térmico. Neste caso a função F é dada por,

$$F(x) = \frac{x}{1+x}, \quad (4.8)$$

que corresponde a uma probabilidade de aceitação que independe do sinal de ΔH . Esta regra recebe o nome de dinâmica de Glauber, na qual o valor de x é dado por $1/2[1 - \tanh(1/2\beta\Delta\mathcal{H})]$ [59].

4.3 Implementação do método Monte Carlo ao sistema $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$

Considera-se o hamiltoniano de um sistema antiferromagnético de spins Ising ($S_i = \pm 1$) diluído aleatoriamente numa rede BCC de N sítios

$$\mathcal{H}(S) = \sum_{\langle i,j \rangle, l} J_l \epsilon_i \epsilon_j S_i S_j - H \sum_i \epsilon_i S_i \quad (4.9)$$

onde o símbolo $\langle i, j \rangle, l$ indica soma sobre todos os pares de vizinhos dos tipos $l = 1, l = 2$ e $l = 3$ interagindo respectivamente com energia de *exchange* [37] $J_1 = -0.048 \text{ cm}^{-1}, J_2 = +3.64 \text{ cm}^{-1}$ e $J_3 = -0.194 \text{ cm}^{-1}$ como mostra a Fig. 3.3 e H indica o campo magnético uniforme aplicado ao sistema. As variáveis de ocupação ϵ_i assumem valores 0 ou 1 aleatoriamente e permanecem com o mesmo valor ao longo de toda a simulação (diluição *quenched*), satisfazendo o vínculo de que a concentração dos íons magnéticos seja de $\bar{\epsilon} = x = 0.25$ em cada subrede, no caso do estudo na fase VS. Na preparação das amostras, optamos por uma descrição do tipo *ensemble* canônico, eliminando assim flutuações no número dos sítios ocupados e

permitindo que o sistema seja sensível aos efeitos das mudanças de temperatura e da aplicação de um campo externo, o que não ocorreria se o *ensemble* fosse microcanônico. Embora não haja diferenças significativas entre medidas feitas com base no *ensemble* grã-canônico, esta forma de ocupação da rede previne ruídos nas medidas das grandezas medidas devido à presença de gradientes de concentração na amostra [10]. A temperatura e o campo magnético adimensionais são reparametrizados respectivamente como: $T \equiv k_B T / J_2$ e $H \equiv h / J_2$ e as interações de *exchange* foram normalizadas pela interação inter-subredes J_2 . A conversão das grandezas apresentadas no texto devem ser multiplicadas por 12.75 K no caso da temperatura T e multiplicadas por 9.49 T para o campo magnético H . O campo efetivo “sentido” pelos spins dado por

$$h_i = \sum_{l_1} j_1 \epsilon_{l_1} S_{l_1} + \sum_{l_2} \epsilon_{l_2} S_{l_2} + \sum_{l_3} \epsilon_{l_3} S_{l_3} + h, \quad (4.10)$$

onde $j_1 = J_1 / J_2 = -0.013$ e $j_3 = J_3 / J_2 = +0.053$ [37]. Assim podemos substituir a representação do hamiltoniano mostrada na Eq. (4.9) por,

$$H = \sum_i h_i S_i, \quad (4.11)$$

sendo i somado sobre todos os N spins da rede.

Todos os resultados apresentados neste trabalho foram obtidos via simulação computacional Monte Carlo, sendo o algoritmo de banho térmico usado na atualização dos spins. O tamanho da rede simulada é $N = 2.L^3$, com $L = 32$, tendo 32 amostras avaliadas, sob condições de contorno periódicas. Desse modo, além da média térmica canônica, foi realizada também em todas as medidas uma média configuracional sobre as amostras. Percorreram-se as seguintes etapas ao executar

o programa:

i- escolhe-se uma configuração inicial aleatória do sistema de spins, indicando que o material encontrava-se em sua fase paramagnética, ou seja a $T > T_f$;

ii- selecionam-se os sítios da rede, atualizando-os através do algoritmo de banho térmico, calculando o valor $r = \exp(-\beta\Delta H)$, onde $\Delta H = H_f - H_i$ é a variação de energia associada à mudança de sinal do spin no sítio selecionado (caso este esteja ocupado). Foi construída uma tabela prévia de valores possíveis de ΔH para economizar o tempo de computação, uma vez que cada spin só interage com os primeiros vizinhos;

iii- compara-se r com um número aleatório c escolhido, de tal forma que se $c < \frac{1}{1+r}$ então o spin é invertido; caso contrário, o spin permanece com a sua configuração inicial (veja Eq. (4.8));

iv- guarda-se a configuração gerada da forma descrita e escolhe-se sequencialmente um novo sítio para voltar à segunda etapa.

Cada vez que o programa percorre toda a rede, uma unidade é acrescentada ao tempo, ou seja, o tempo t , que será mencionado no estudo da dinâmica indica o número de vezes que o programa realiza a atualização dos spins (ou o número de passos Monte Carlo - *Monte Carlo steps* (MCS)). Os protocolos utilizados no estudo da dinâmica do sistema $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$ foram os seguintes (ver também Cap. 5):

Zero Field Cooling - Quenched (ZFC-Quenched). Neste protocolo, o sistema após ser iniciado na configuração aleatória PM, é resfriado diretamente

na temperatura de interesse. Esta, por sua vez, é mais baixa que a temperatura de congelamento (*freezing*), $T < T_f$. São efetuados t_w passos Monte Carlo com a aplicação de um campo magnético H o qual é retirado em seguida, passando-se então a realizar as medidas de interesse a campo nulo em função do tempo t , contado a partir de t_w .

Zero Field Cooling - Lento (ZFC-Lento). Neste procedimento, o programa é resfriado, a campo nulo, de forma lenta até atingir a temperatura de interesse, $T < T_f$. Utilizaram-se $5 \cdot 10^4$ MCS para a termalização em cada temperatura, desde a temperatura na região PM até a temperatura T . Teste feitos em [9] mostraram que essa termalização é suficiente para a realização das medidas. Após serem termalizadas em T , a seqüência do programa é idêntica à que é realizada no ZFC-*Quenched*, envolvendo a aplicação de um campo durante um tempo t_w e realização das medidas após a sua retirada.

Field Cooling - (FC). Este procedimento é bem parecido com o ZFC-Lento, com a única diferença de se ter um campo magnético aplicado durante o resfriamento, permanecendo este ainda durante t_w .

Histerese. O protocolo utilizado no estudo da histerese é o de resfriar de forma rápida, a campo nulo, como no ZFC-*Quenched*, durante $5 \cdot 10^4$ MCS a $T = 0.01$ fixa. Em seguida aumenta-se o campo até atingir $H = 2.0$, partindo de $H = 0$, através de incrementos $\Delta H = 0.05$, com 10^3 MCS para cada novo H ; finalmente, o sistema é levado até $H = -2.0$ e, na seqüência, de volta até $H = 2.0$, seguindo o mesmo procedimento.

Capítulo 5

Vidro de Spin Ising no Limiar da Percolação: Comportamento Dinâmico e Histerese

Na tentativa de compreensão do comportamento dinâmico do sistema $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$ abaixo de sua temperatura de congelamento $T < T_f$, ou seja na sua fase VS, realizou-se uma extensa coleta de dados com o uso de quatro processos diferentes para gerar as condições iniciais de medida do sistema, os quais encontram-se descritos em detalhes na seção 4.3.

Nos protocolos *Zero Field Cooling-Quenched* (ZFC-Q), *Zero Field Cooling-Lento* (ZFC-L) e *Field Cooling* (FC) há uma divisão natural das etapas que vão desde a configuração inicial até a realização de medidas: na primeira das três etapas resfria-se a amostra; na segunda delas há aplicação, ou permanência, de um campo magnético uniforme durante um intervalo de tempo t_w ; e na última etapa o campo é retirado e são realizadas medidas de autocorrelação temporal de spins e magne-

tização remanente. Além desses protocolos, reproduziram-se também as curvas de histerese obtidas no trabalho de Brito [9] e observou-se, em particular, como ocorre o processo de relaxação nas regiões de formação de platôs a $T = 0.01$.

5.1 Resfriamento ZFC - *Quenched*

Este protocolo é o utilizado mais freqüentemente no estudo do crescimento de domínios em VS [35]. Ele é dividido em três etapas:

a) Resfriamento *Quenched*: Na simulação representando este resfriamento, não há nenhuma atualização de spins durante esta etapa, ou seja não há passos MC (MCS). A configuração inicial da amostra é totalmente aleatória, indicando que a configuração nesta etapa do procedimento está bastante distante da configuração de equilíbrio para a temperatura $T < T_f$ a $H = 0$.

b) Envelhecimento da amostra com campo aplicado: É aplicado um campo magnético uniforme H durante um intervalo de tempo t_w . Durante a aplicação do campo acontece a formação de domínios de tamanho $L_w \sim (t_w/t_o)^{k_B T/C}$ (para maiores detalhes veja seção 2.3), os quais possuem um equilíbrio interno a $H \neq 0$. Assim, ao final de t_w o sistema é uma coleção de domínios de tamanho típico L_w . Em escalas maiores que L_w , isto é, fora dos domínios, o equilíbrio local não teve tempo de ser atingido e o sistema guarda essencialmente a configuração do substrato aleatório da etapa anterior.

c) Medição: O cronômetro é zerado ao final de t_w . Desta forma, $t = 0$ representa o instante exato em que o campo H é desligado. O desligamento do campo, por sua

vez, causa uma resposta no sistema no sentido de que o novo estado de equilíbrio buscado será o estado a campo nulo, fazendo com que ao final da etapa ocorram domínios com ordem interna VS a $H = 0$, cuja formação iniciada a partir de rearranjos internos dentro dos domínios de tamanho típico L_w anteriormente formados. O tamanho desses novos domínios será dado por $L(t)$.

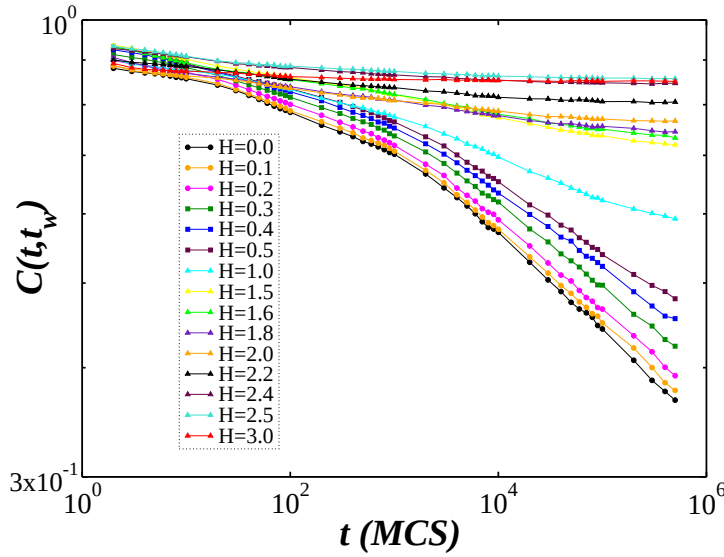


Figura 5.1: Dependência de $C(t, t_w)$ com t , para vários valores de campo no protocolo ZFC-*Quenched* com $t_w = 10^3$.

Além do parâmetro t_w e da temperatura de referência T , o campo magnético é naturalmente um parâmetro importante do sistema; H se apresenta em três regimes distintos, como é possível comprovar na Fig. 5.1. A fim de compreender qual o papel do campo magnético no comportamento dinâmico desse material, será feita a seguir uma análise para cada tipo de regime de campo.

5.1.1 Regime de campos baixos

Considera-se campo baixo todo aquele que satisfaça a relação $H \lesssim xJ_2$, onde x é a concentração de íons magnéticos e J_2 é o termo de *exchange* dominante entre as subredes. Por considerar todos fatores normalizados com relação a J_2 e $x = 0.25$, tem-se que $H \lesssim 0.25$ nesse regime. Isso será também verificado no protocolo ZFC-Lento e FC, descritos na próximas seções.

Para este regime, ao final de t_w os estados com equilíbrio interno a $H \neq 0$ serão parecidos com os domínios a campo nulo. Isso é consequência do fato de que durante t_w o crescimento de domínios com equilíbrio interno $H \neq 0$ não terá alcançado a escala típica de campo $L_H \sim (J_2/H)^{1/d_s/2-y}$ (ver seção 2.3), ou seja, $L_w \ll L_H$, a partir do qual a aplicação do campo H durante t_w altera consideravelmente a dinâmica do sistema. Desse modo, os resultados para $C(t, t_w)$ para H pequeno são parecidos com os resultados a $H = 0$, como pode ser visto na Fig. 5.2.

Em $t < t_w$ ocorrem apenas rearranjos internos de spins em escalas $L(t)$ buscando o estado de equilíbrio a $H = 0$ como discutido na seção 2.3. De acordo com o cálculo de $C(t, t_w)$ [ref], adaptado no nosso caso para o modelo de *droplets* em $x \simeq x_p$, nesse regime deve-se ter $C(t, t_w) \propto 1/t^{x(T, H)}$, onde $x(T, H)$ é o expoente que caracteriza os decaimentos de quase equilíbrio de $C(t, t_w)$, como mostrado na seção 2.4. Como argumentado, nesse regime espera-se pouca ou nenhuma, dependência de $x(t, H)$ com t_w . Na Fig. 5.3 é mostrado o ajuste do tipo $C(t, t_w) \propto 1/t^{x(T, H)}$ para $t < t_w$, $T = 0.4$, $H = 0$ e $H = 0.4$, com $x(T, H = 0.0) = 0.04$ e $x(T, H = 0.4) = 0.03$.

Com a evolução de t , os domínios $L(t)$ crescem e para $t \sim t_w$ tem-se que $L(t) \sim L_w$, ou seja, os rearranjos já ocorrem em toda a extensão interna dos domínios modificados na região de quase-equilíbrio. Assim, t_w e L_w podem ser chamados de escalas de tempo e comprimento de *crossover* entre os regimes de decaimento lento

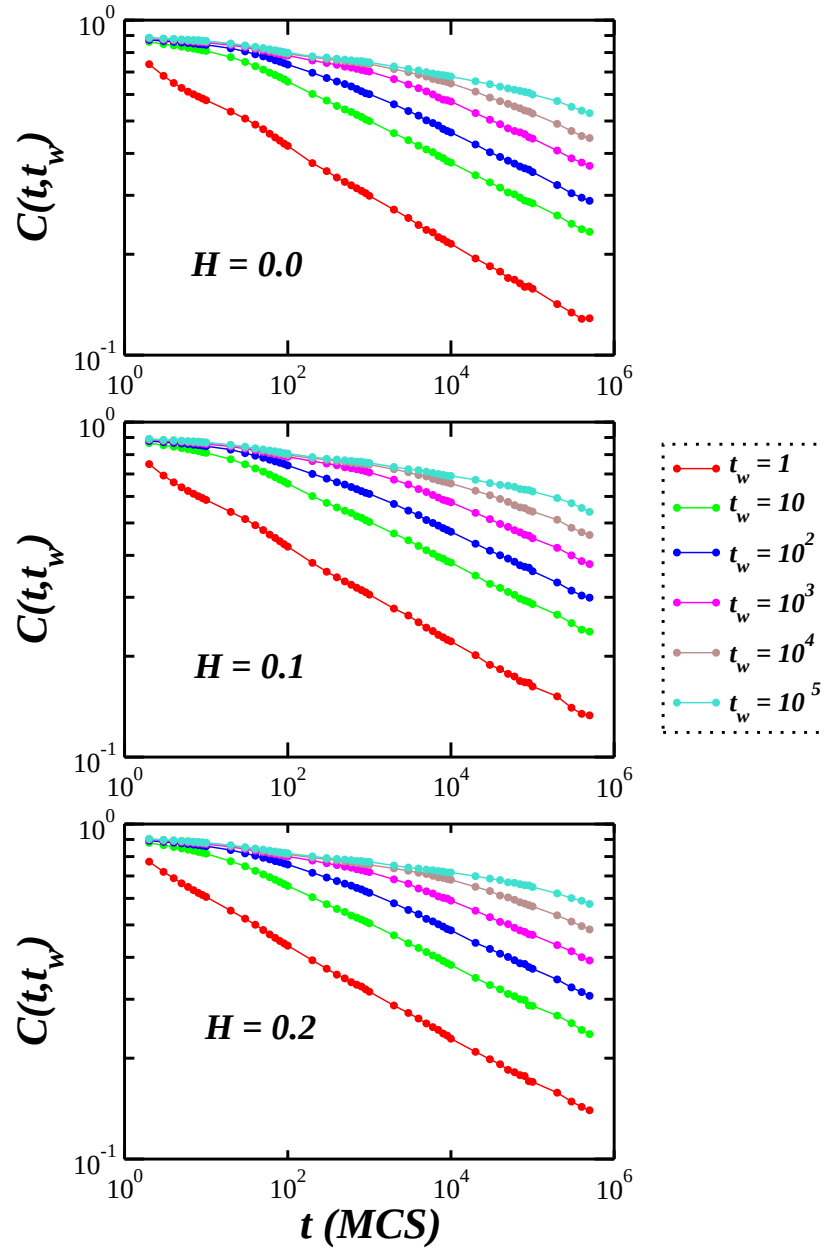


Figura 5.2: Evolução temporal de $C(t, t_w)$ no regime de campos baixos, $H = 0.1, 0.2$ e a campo nulo, em $T = 0.4$ no protocolo ZFC-*Quenched*.

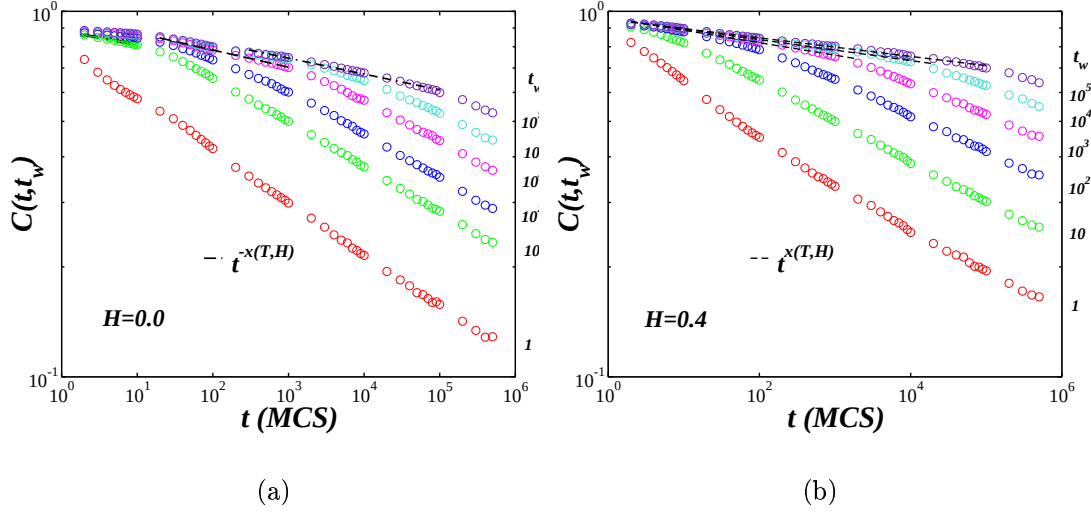


Figura 5.3: Ajuste do tipo $C(t, t_w) \propto t^{-x(T,H)}$, $t < t_w$, $x(T, H) \simeq 0.04$ a $T = 0.4$ (a), $H = 0.0$, e (b) $H = 0.4$, no protocolo ZFC-*Quenched*.

(quase-equilíbrio, $t \ll t_w$) e rápido (não equilíbrio ou *aging*, $t \gg t_w$) de $C(t, t_w)$.

Para $t > t_w$ ocorre o crescimento rápido destes domínios de tamanho típico $L(t) > L_w$ contra o substrato aleatório da etapa (a), buscando o estado de equilíbrio global a $H = 0$ em toda a amostra. Porém, o sistema não atinge este equilíbrio completo nas escalas de tempo observadas. Nesse regime, o comportamento previsto pelo modelo de *droplets* perto da percolação é do tipo $C(t, t_w) \propto 1/t^{\lambda(T,H,t_w)}$, onde $\lambda(T, H, t_w)$ é o expoente que caracteriza esse decaimento rápido de $C(t, t_w)$ (ver seção 2.4 para maiores detalhes) ou seja $\lambda > x$. Como pode ser visto na Fig. 5.2, quanto menor o valor de t_w mais rápido é o decaimento de $C(t, t_w)$. Isto ocorre porque quanto menores os domínios L_w , mais rapidamente os rearranjos internos atingirão sua escala limite quando H é desligado, dando origem, na etapa seguinte, ao regime de *aging*. Por outro lado, quanto menor o valor de T , mais lenta a dinâmica do

sistema, uma vez que esta evolui em função da energia térmica disponível para a ativação sobre barreiras de energia. Finalmente, de modo geral, quanto maior o campo, mais lenta também a dinâmica do sistema (veja a Fig. 5.1). De fato, como comentado, quanto maior H , mais distintos são os estados de equilíbrio buscados nas etapas (b) e (c) do procedimento, o que deve se refletir em maiores barreiras de energia a serem vencidas ao longo da evolução do sistema. Tais considerações implicam que $\lambda(T, H, t_w)$ deve ser função crescente de T e decrescente de H e t_w (veja Fig. 5.6).

5.1.2 Regime de campos intermediários

Consideram-se campos intermediários aqueles tais que $H \sim xJ_2$. Neste regime, ao final de t_w os estados com equilíbrio interno a campo nulo e a $H \neq 0$ continuarão a se parecer, porém com L_w não mais muito menor que L_H , fazendo com que a influência do campo H já comece a ser notada nas medidas de $C(t, t_w)$ após este ser desligado. De fato, as mudanças começam a ser perceptíveis primeiramente para valores de t_w menores, como mostra a Fig. 5.4.

O campo H enquanto aplicado promove reversão de spins, tendendo a induzir um novo sentido de orientação dos spins, com respeito à configuração observada no VS a campo nulo. Desse modo, a influência de H causa em $C(t, t_w) = [\langle S_i(0)S_i(t) \rangle]$ uma tendência de evolução temporal no sentido oposto á observada em VS a $H = 0$ e, conseqüentemente, uma diminuição no ritmo do decaimento de C . De fato, dependendo do valor de H observa-se até mesmo uma ligeira mudança de concavidade em C (Fig. 5.4 para $H = 0.5$ e 1.0 para valores menores de t_w). Na Fig. 5.5, mostra-se a tentativa de ajuste realizado na região de *aging*, $t \gg t_w$, para $C(t, t_w)$ a $T = 0.4$, $H = 0$ e $H = 0.4$, com os valores de λ expostos na Fig. 5.6.

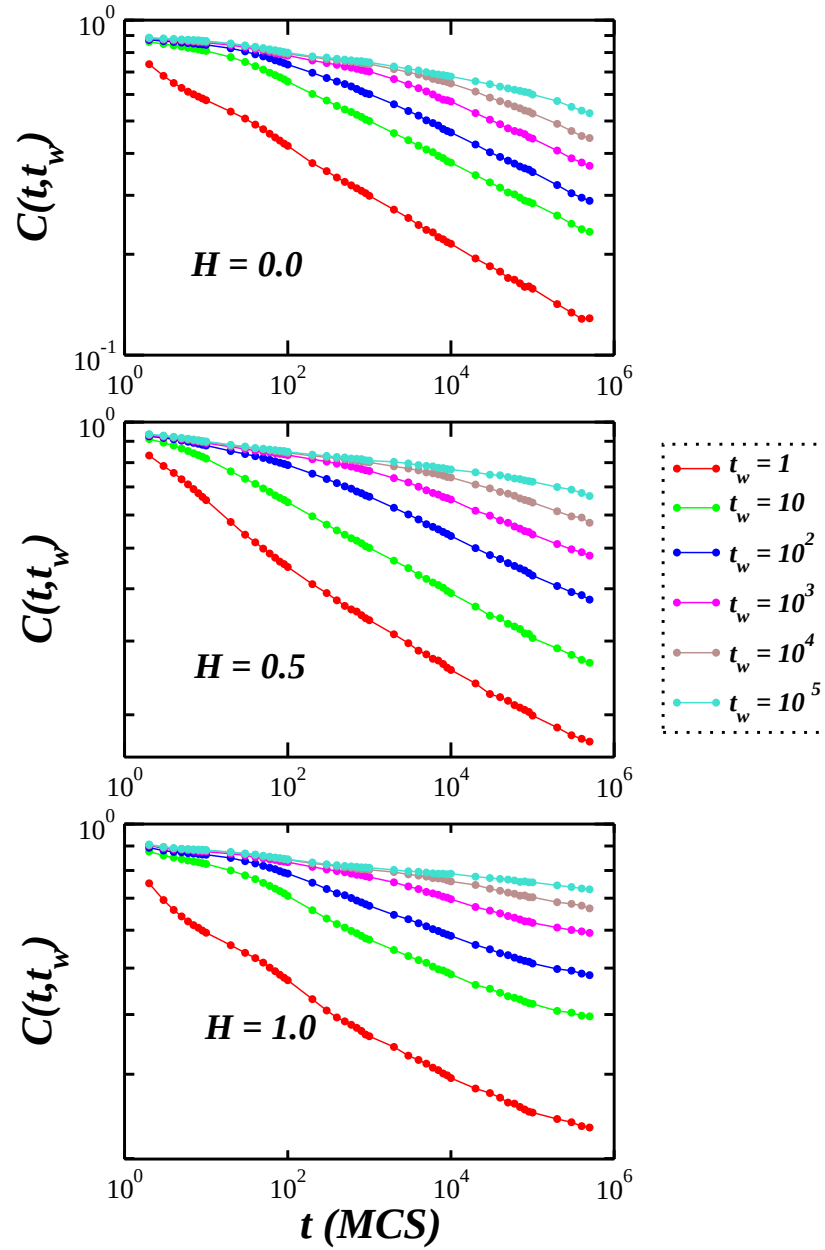


Figura 5.4: Evolução temporal de $C(t, t_w)$ a $T = 0.4$ no regime de campos intermediários para $H = 0.5$ e 1.0 , e também a campo nulo no protocolo ZFC-*Quenched*.

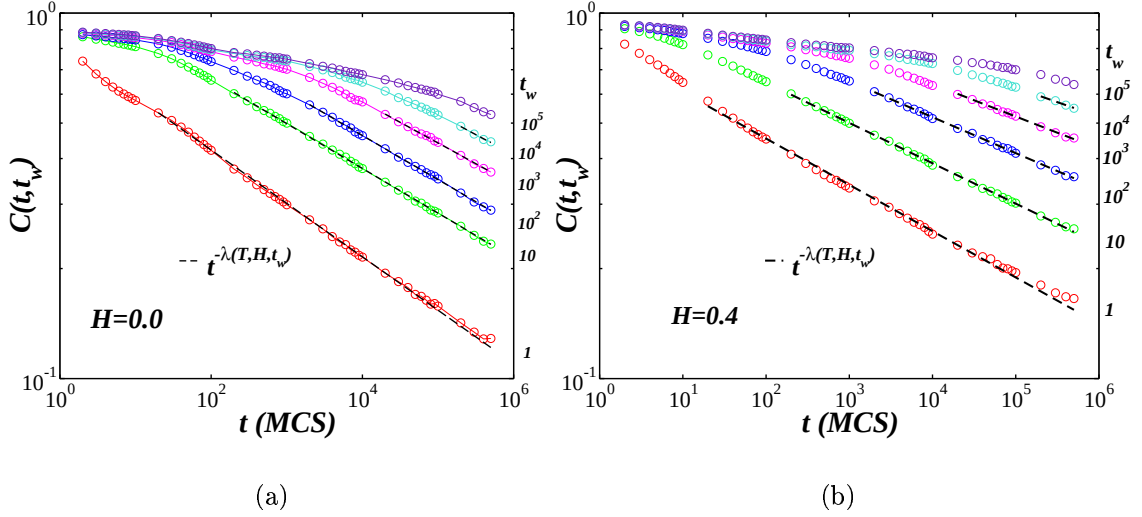


Figura 5.5: Ajuste do tipo $C \propto t^{-\lambda(T, H, t_w)}$, $t \gg t_w$ com $T = 0.4$ e $H = 0.4$, no protocolo ZFC-*Quenched*. Veja os valores de $\lambda(T, H, t_w)$ na Fig. 5.6

No artigo de Rieger [1] é mostrado que em sistemas VS observa-se a decomposição da magnetização total, $M(t, t_w)$, em uma parte quase estacionária, $M_{eq}(t)$, dependente somente de t e em uma parte de *aging* $M_{aging}(t, t_w)$. Essas decomposições podem ser de dois tipos: multiplicativa, com $M(t, t_w) = M_{eq}(t)M_{aging}(t, t_w)$; e aditiva, assumindo a forma $M(t, t_w) = M_{eq}(t) + M_{aging}(t, t_w)$. Tal propriedade da magnetização também é evidenciada na função de autorrelação temporal. Foi observado no trabalho de Barbosa e colaboradores [8] que a fase VS a campo nulo apresentada pelo sistema $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$ apresenta um colapso perfeito do tipo multiplicativo para o *scaling* na forma $C(t, t_w)t^{x(T, H)}$ vs. t/t_w . Em nosso estudo, tal resultado também pôde ser razoavelmente verificado no regime de campos baixos, como mostrado na Fig. 5.7, concordando com a proposta de crescimento de domínios que prevê uma semelhança entre os domínios estabelecidos a campo nulo e a campos

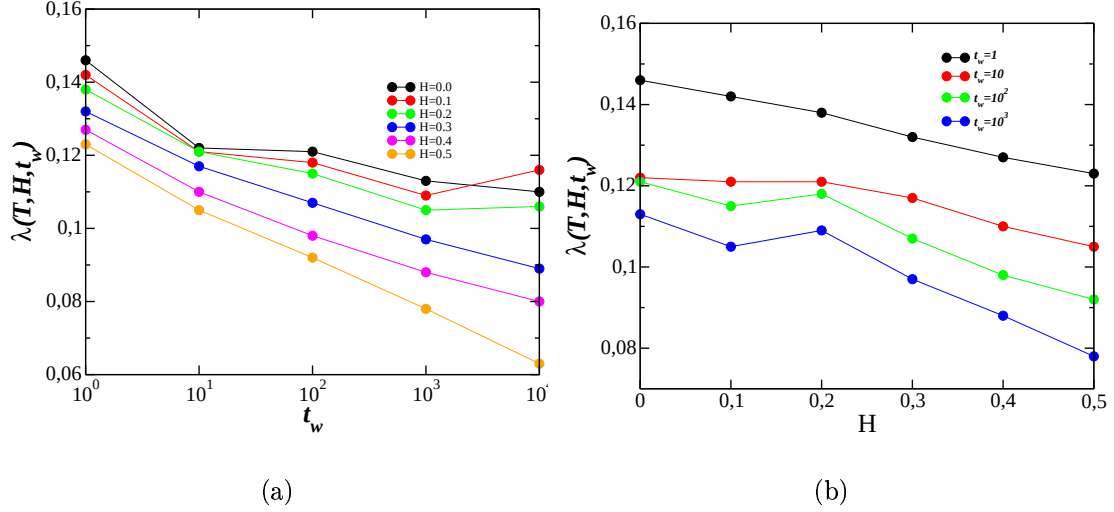


Figura 5.6: Dependência de $\lambda(T, H, t_w)$ com (a) t_w e com (b) H . O aumento de λ para $H = 0.1$ e $H = 0.2$ em $t_w = 10^4$, deve-se á pequena quantidade de pontos (quatro) considerados no ajuste.

baixos.

Observou-se também que tal tentativa de *scaling* não resultou em um bom colapso para regimes de campos intermediários, o mesmo sendo somente verificado para regiões de quase-equilíbrio, $t \ll t_w$, como mostra a Fig. 5.8. Por outro lado, todas as tentativas de *scaling* previstas pelo modelo convencional de *droplets*, em função da variável $\ln t / \ln t_w$, para $H \geq 0$. Tal resultado reforça a o fato de que a descrição adequada da dinâmica do sistema $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$ deve ser dada pelo modelo de *droplets* perto da percolação, ao menos no regime de campos baixos e intermediários.

Tendo como motivação o trabalho de Picco *et al.* [35], no qual um *scaling* aditivo na forma $C(t, t_w) - At^{-\alpha}$ *vs.* t/t_w foi implementado, conseguiu-se, no nosso estudo, um bom colapso dos dados para os regimes de campos baixos e intermediários.

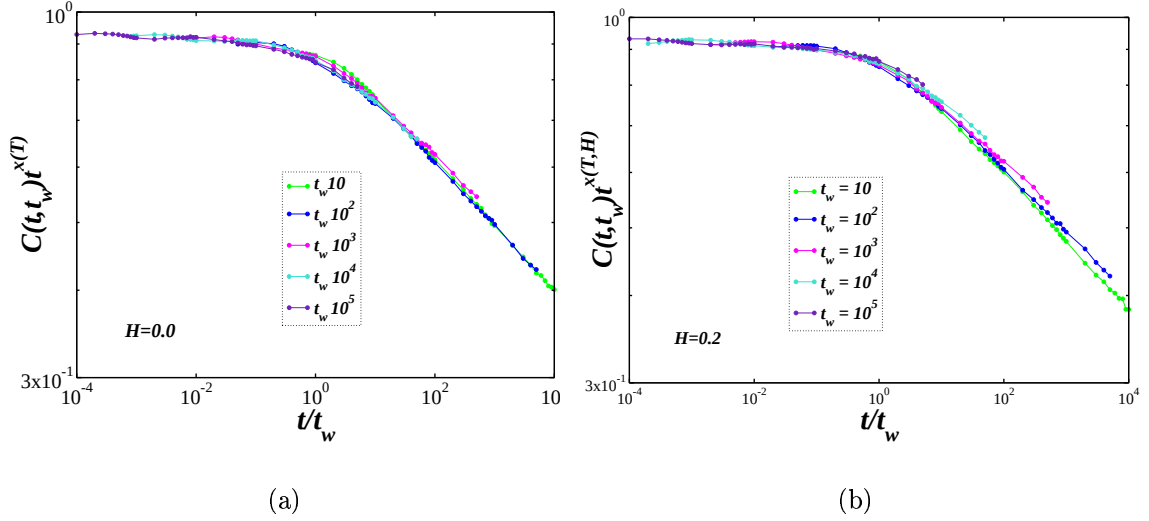


Figura 5.7: *Scaling* multiplicativo do tipo $C(t, t_w)t^{x(T,H)}$ vs. t/t_w para $T = 0.4$ (a) $H = 0.0$ e (b) $H = 0.2$, no protocolo ZFC-*Quenched*.

Entretanto, assim como observado por estes autores [35], um melhor colapso foi obtido em função da variável t/t_w quando escrita na forma $\ln[(t + t_w)/t_w] = \ln(1 + t/t_w)$ (ver Fig. 5.10), uma vez que na escala logarítmica, dados para t maiores são “comprimidos”; tal resultado também está de acordo com o modelo de *droplets* em $x \simeq x_p$. (Note que a previsão do modelo de *droplets* convencional é de uma variável dinâmica $\ln t / \ln t_w$, e não t/t_w .) Deve-se enfatizar, contudo, que nenhum colapso dos dados foi conseguido, via *scaling* multiplicativo ou aditivo, no regime de campos altos, $H > xJ_2$, como mostra a Fig. 5.9. Isso indica que a presença de campos magnéticos intensos afeta de forma significativa a natureza da fase magnética desordenada do sistema a $x = 0.25$.

Finalmente, é importante salientar também que as previsões de dinâmica da função de correlação pela solução de campo médio de Parisi [5], com quebra de

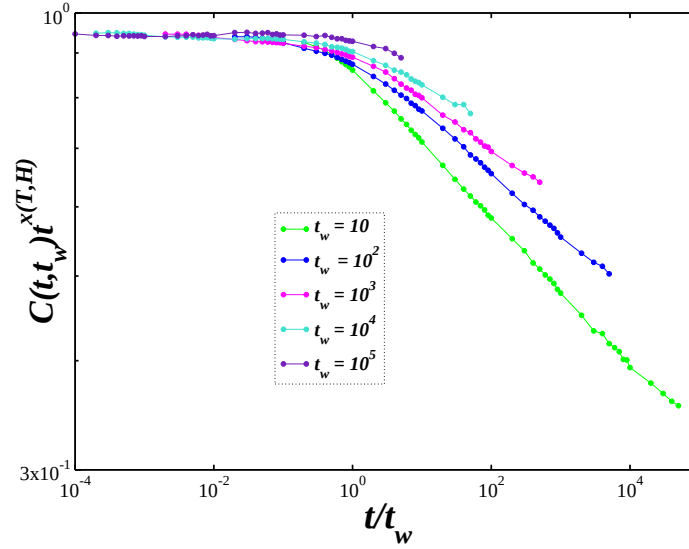
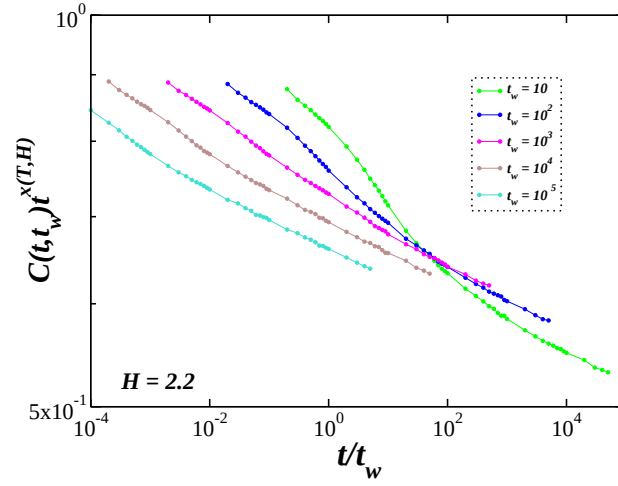


Figura 5.8: Tentativa de *scaling* multiplicativo do tipo $C(t, t_w) t^{x(T,H)}$ vs. t/t_w para $T = 0.4$ e $H = 0.5$ no protocolo ZFC-*Quenched*, mostrando um bom colapso somente na região de quase equilíbrio, $t \ll t_w$.

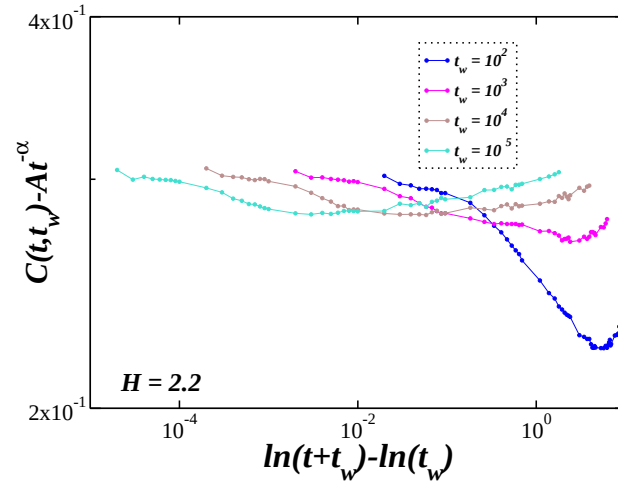
simetria de réplicas no modelo SK [6] envolvendo a presença de hierarquias e ultrametricidade, não se efetivaram no nosso estudo do sistema $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$ na presença de H . De fato, segundo tal cenário a descrição dos regimes de quase-equilíbrio e de *aging* não poderia ser dada de forma adequada em função de apenas um único parâmetro ou escala de tempo (t_w , no presente caso). Ao invés disso, uma estrutura de várias escalas de tempo típicas deveria surgir, associada à dinâmica de $C(t, t_w)$, de acordo com a expressão

$$C(t, t_w)_{aging} = \sum_i C_i \left[\frac{f_i(t + t_w)}{f_i(t_w)} \right], \quad (5.1)$$

onde a soma sobre os infinitos termos i se refere aos vários setores de tempos longos [60, 61], e as diferentes funções desconhecidas $f_i(t)$ representam mecanismos físicos



(a)



(b)

Figura 5.9: Tentativas de *scaling*: (a) multiplicativo do tipo $C(t, t_w) t_w^{x(T,H)}$ vs. t/t_w para $T = 0.4$ e $H = 2.2$, com $x(T, H) = 0.02$; (b) aditivo do tipo $C(t, t_w) - A t^{-\alpha}$ vs. $\ln(t + t_w/t_w)$ para $T = 0.4$ e $H = 0.2$, com $A = 0.6$ e $\alpha = 0.01$

que não necessitam estar necessariamente relacionados ao crescimento de domínios [1].

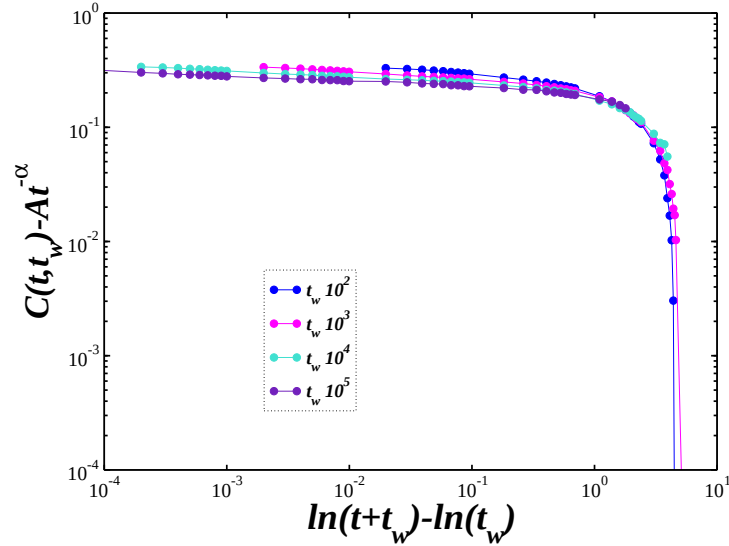


Figura 5.10: *Scaling* aditivo do tipo $C(t, t_w) - A t_w^{-\alpha}$ vs. $\ln(t + t_w/t_w)$ para $T = 0.4$, $H = 0.5$, $\alpha = 0.011$ e $A = 0.6$, no protocolo ZFC-*Quenched*.

5.1.3 Regime de campos altos

Para o regime em que $H \gg x J_2$ é esperado que $C(t, t_w)$ passe a não mostrar uma forte dependência com t_w , pois os domínios de tamanho L_H serão rapidamente atingidos e o campo dominará todo o crescimento subsequente do sistema. Em particular, nesse regime o sistema mostra uma tendência à saturação de $C(t, t_w)$ à medida que H mais altos são aplicados (ver Fig. 5.1).

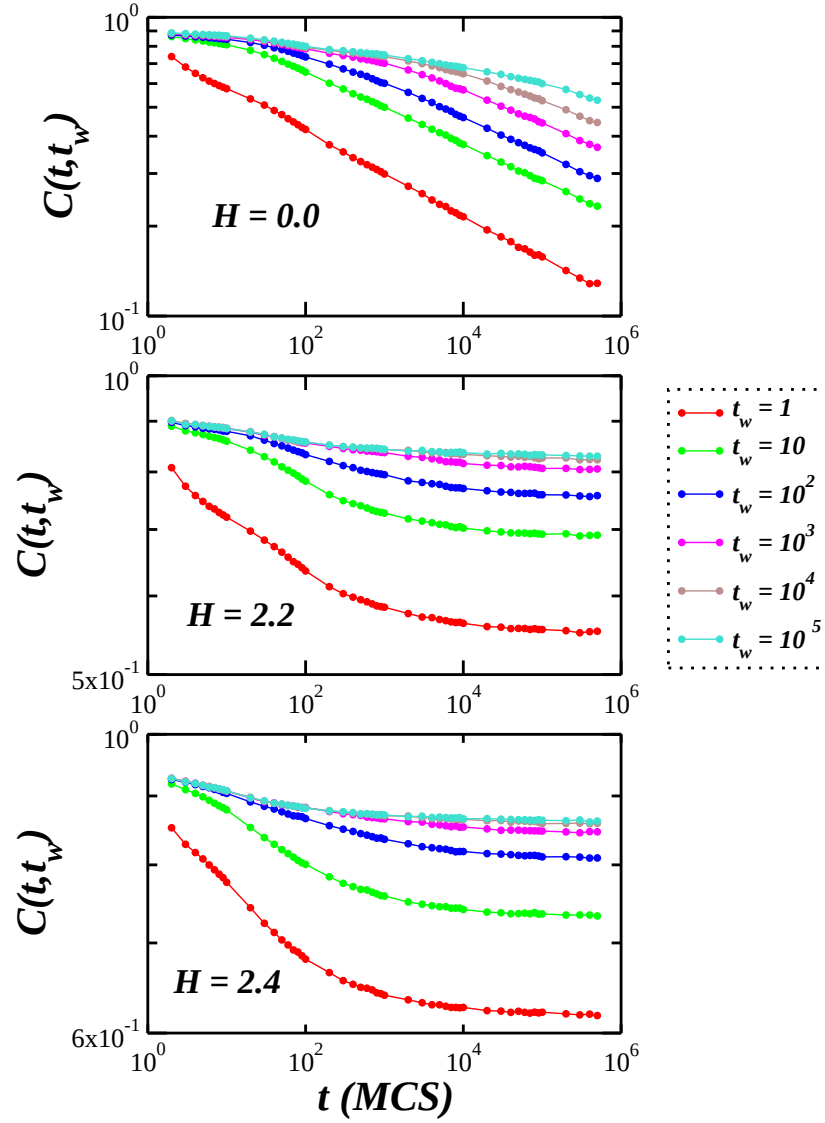


Figura 5.11: Evolução temporal de $C(t, t_w)$ no regime de campos altos para alguns valores de campo, $H = 2.2$ e 2.4 , e o resultado a campo nulo, a $T = 0.4$, no protocolo ZFC-*Quenched*. Note a diferença de escalas no eixo vertical, indicando que na presença de campos intensos a forte dependência com t_w observada a $H = 0$ é consideravelmente reduzida.

5.2 Resfriamento ZFC - Lento

Assim como no protocolo ZFC-*Quenched*, este está dividido em três partes, como descrito a seguir.

a) Resfriamento Lento: Nesta etapa o sistema é lentamente resfriado a campo nulo, com 5×10^4 MCS dados a cada valor de temperatura T . Brito [9] mostrou que esse número de MCS era suficiente para termalizar cada temperatura. Desse modo, partiu-se de uma configuração paramagnética, a $H = 0$ e $T \gg T_f$, realizando um único *quench* de temperatura a $T = 2.7$, de onde passou-se a resfriar lentamente o sistema.

No início, a configuração aleatória do sistema a $T_0 \gg T_f$ está próxima da de equilíbrio paramagnético a campo nulo. Quando um decremento $\Delta T \ll T_0$ é aplicado, o sistema busca um novo estado de equilíbrio para a nova temperatura estabelecida. O processo continua até que a temperatura final seja atingida em um estado de equilíbrio VS a campo nulo ($T < T_f$ e $H = 0$), com domínios com ordem interna AF fractal [8] equilíbrio este abrangendo essencialmente toda a extensão da amostra.

Observa-se nesse ponto uma diferença relevante com relação ao processo ZFC-*Quenched*, ao final do qual a configuração aleatória de spins está bastante distante do equilíbrio a $T < T_f$ e $H = 0$ (veja etapa (a) da seção 5.1). Esta diferença tem consequências importantes nas próximas etapas e nos resultados de $C(t, t_w)$.

b) Envelhecimento da amostra com campo aplicado: O estado de equilíbrio em direção ao qual o sistema evolui com a aplicação do campo é aquele com $H \neq 0$, a $T < T_f$. Dentro do sistema, total antes em equilíbrio a $H = 0$, ocorre a formação de

domínios de tamanho típico L_w . Caso haja tempo suficiente de evolução do sistema nessa etapa, os domínios tenderão a assumir o tamanho típico $L_H \sim (J_2/H)^{1/(d_s/2-y)}$; nesse caso, quanto maior H , menor o L_H , de modo que menores serão os domínios com ordem interna a $H = 0$, remanescentes da etapa anterior.

c) Medição: Ao se desligar H o sistema buscará, assim como na primeira etapa, o estado de equilíbrio a campo nulo. Nota-se, contudo, que devido ao fato do sistema praticamente ter sido equilibrado em todas as temperaturas naquela etapa, espera-se que o regime de *aging* nesse protocolo não deva ser tão pronunciado quanto no caso do ZFC-*Quenched*.

Para este protocolo, devido ao tempo necessário para coleta de dados, foram realizadas medidas somente para os regimes de campos baixos e intermediários, como será mostrado em seguida.

5.2.1 Regime de campos baixos

Neste regime os domínios gerados pela presença dos campos baixos não têm tempo suficiente na etapa (b) para atingir o tamanho típico L_H . Assim, a situação de equilíbrio apresentada no final da etapa de resfriamento não é consideravelmente afetada pela pequena magnitude dos campos, de tal forma que a aplicação do campo não altera substancialmente o panorama observado e o sistema se comporta como a campo nulo, indicando pouca ou nenhuma dependência com t_w , como verificado na Fig. 5.12.

É interessante notar ainda que, ao contrário do que ocorre no protocolo ZFC-*Quenched*, quanto maior H aplicado no regime de campos baixos (e intermediários),

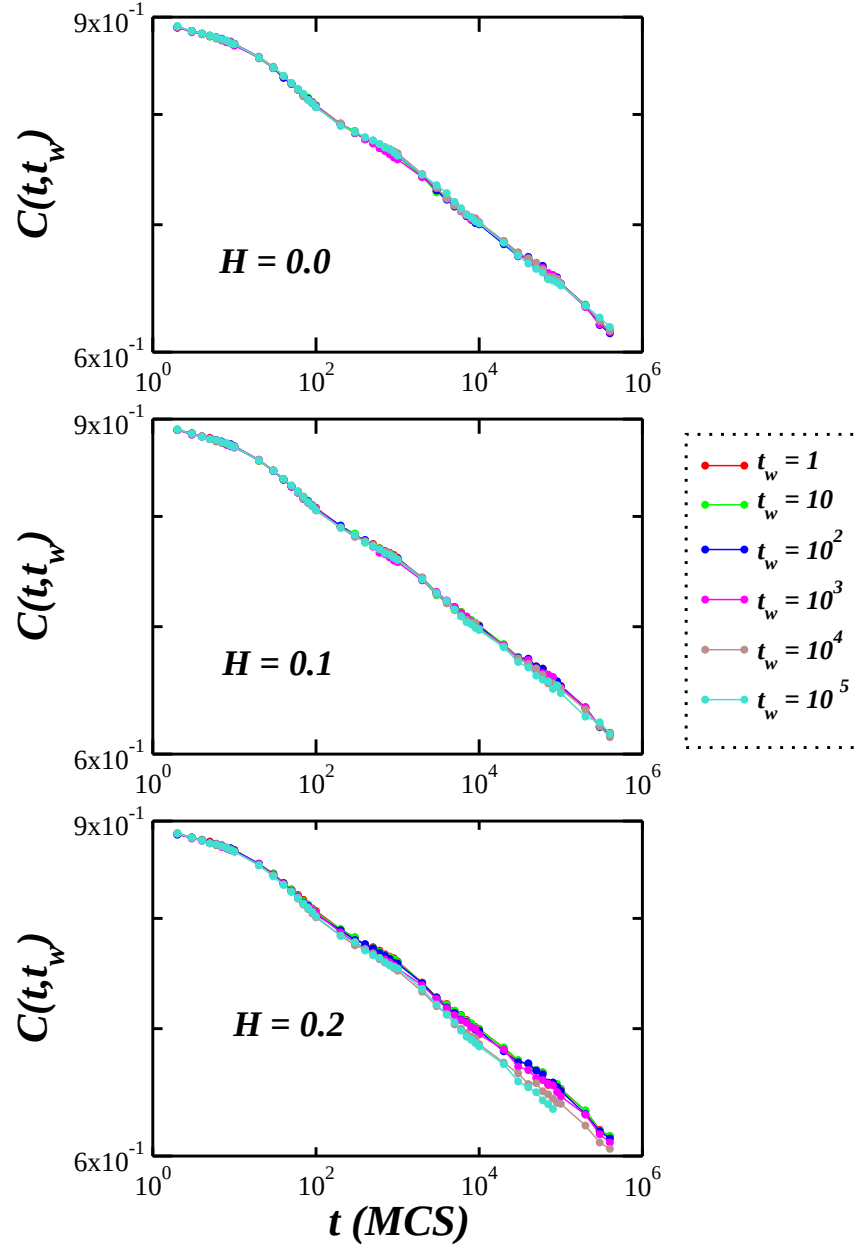


Figura 5.12: Dependência de $C(t, t_w)$ com t , para vários valores de campo no regime de campos baixos no protocolo ZFC-Lento, a $T = 0.4$.

mais rápido o decaimento de $C(t, t_w)$ (Veja Fig. 5.13).

Pode-se entender este resultado imaginando que, para maiores H , a escala L_H é eventualmente alcançada de modo mais rápido e os rearranjos importantes em escalas maiores iniciam-se em menores t . No regime de altíssimos campos, contudo, espera-se uma tendência à saturação similar à verificada na Fig. 5.1.

5.2.2 Regime de campos intermediários

No regime de campos intermediários, o sistema passa a perceber a influência do campo primeiramente para valores maiores de t_w , como mostra a indistigüibilidade dos dados para $t_w = 1$ e 10 na Fig. 5.14. Nesse caso, eventualmente para alguns t_w (os maiores) os rearranjos locais terão atingido a escala L_H , passando o sistema a partir daí a desenvolver uma dinâmica mais rápida.

5.3 Resfriamento FC

O protocolo FC é semelhante ao ZFC-Lento mostrado na última seção, embora aqui o resfriamento seja realizado na presença do campo, o qual, após atingida a temperatura final $T < T_f$, permanece aplicado durante um tempo adicional t_w .

Os resultados deste procedimento estão expostos na Fig. 5.15. Nota-se que nos regimes de campos baixos e intermediários as dependências com t_w e H seguem aproximadamente, de modo qualitativo, o padrão observado no protocolo ZFC-Lento. Contudo, no regime de campos altos verificam-se diferenças notáveis com respeito a ambos os processos ZFC-*Quenched* e ZFC-Lento, como observado na Fig. 5.15 a $H = 1.0$, sugerindo que nesse regime o campo afeta de forma drástica o comportamento do sistema $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$ em $T < T_f$ neste protocolo. É interessante

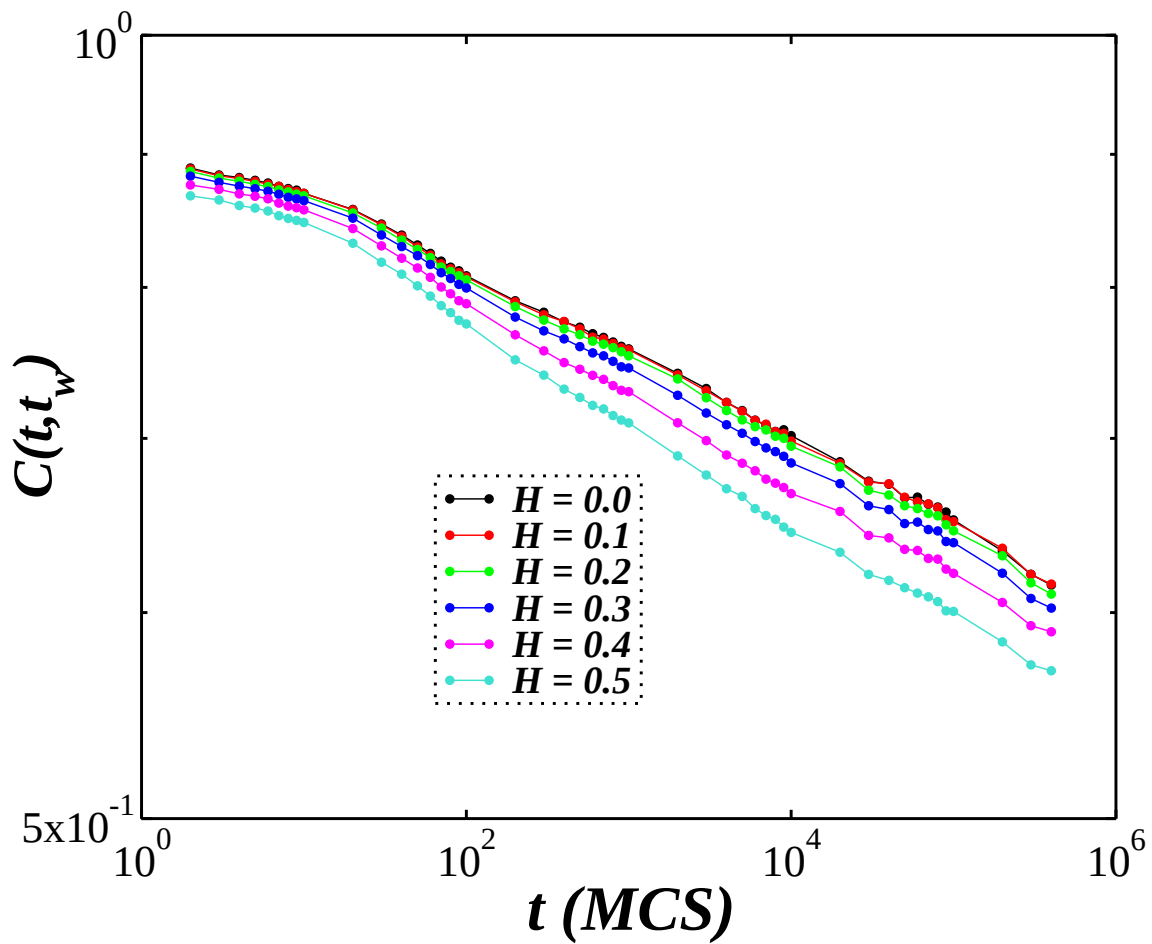


Figura 5.13: Dependência de $C(t, t_w)$ com t , para vários valores de campo no protocolo ZFC-Lento, a $T = 0.4$.

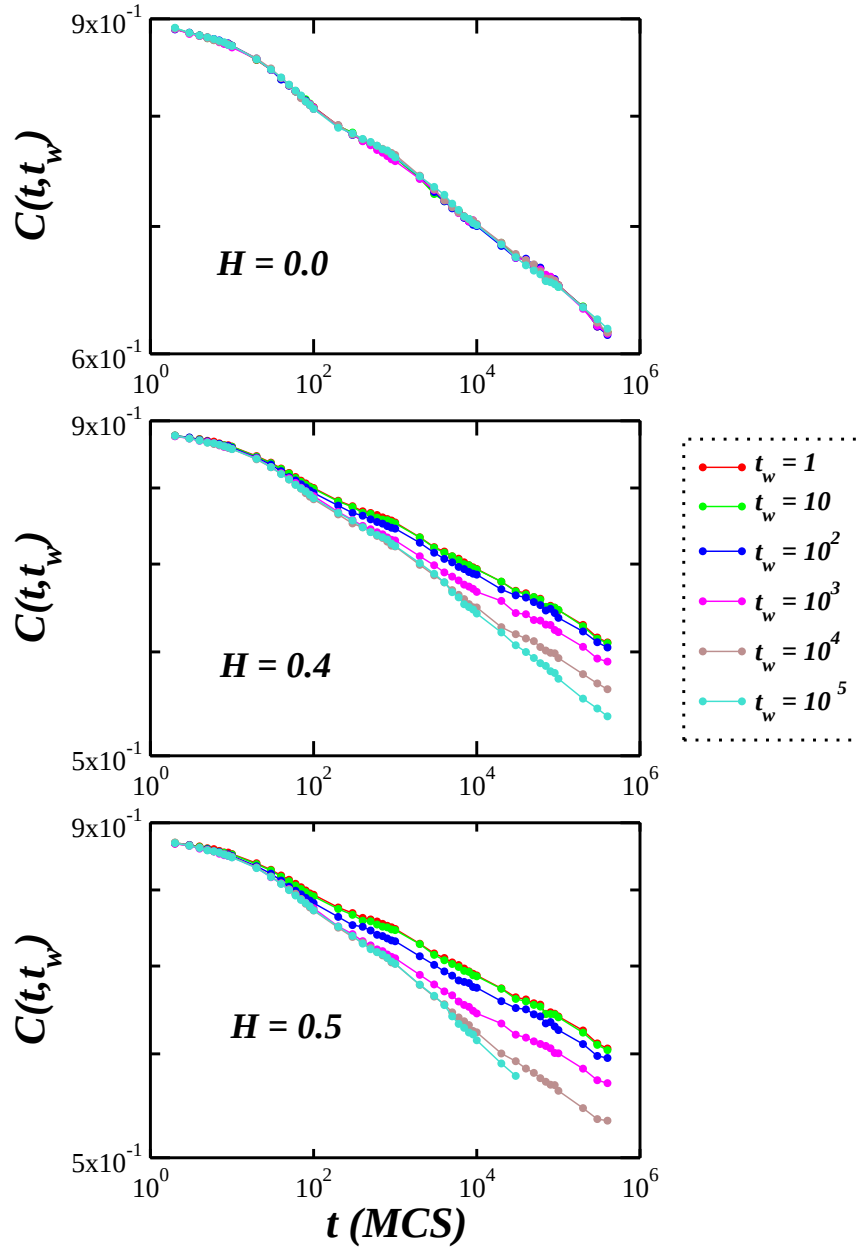


Figura 5.14: Dependência de $C(t, t_w)$ com t , para vários valores de campo no regime de campos intermediários no protocolo ZFC-Lento, a $T = 0.4$.

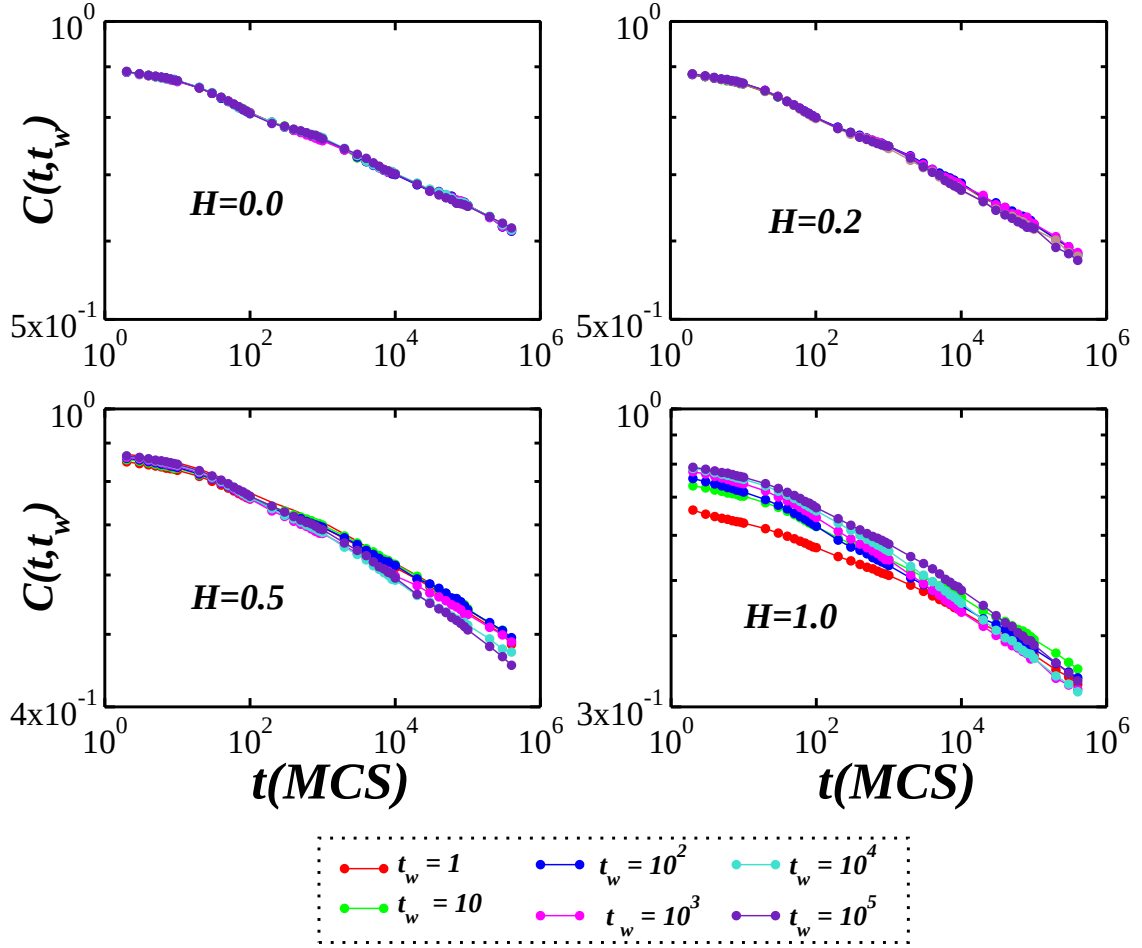


Figura 5.15: Dependência de $C(t, t_w)$ com t , para vários valores de campo, $H = 0.2, 0.4$ e 1.0 , no protocolo FC, a $T = 0.4$.

observar ainda que é justamente no regime de campos altos que nenhum tipo de colapso de $C(t, t_w)$ foi obtido (ver seção 5.1.2), sinalizando para o fato de que a presença de (altos) campos magnéticos deve afetar de forma significativa a natureza da fase magnética desordenada do sistema a $x = 0.25$, como discutido.

5.4 Histerese

As propriedades dependentes da história de medição no composto $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$, através da dependência da magnetização com o campo aplicado, foram primeiramente evidenciadas por Montenegro e colaboradores [23], como pode ser visto na Fig. 5.16, após o procedimento experimental ZFC, em várias temperaturas. Pode-se observar claramente que não há histerese para temperaturas superiores a 10K (temperatura de congelamento a campo nulo). Na simulação MC realizada por Barbosa [10] (veja Fig. 3.7) observou-se que para temperaturas muito baixas a histerese para este composto apresenta platôs em certas faixas de variação de campo H , fato este bem mais detalhado no trabalho de Brito [9] (veja Fig. 5.17).

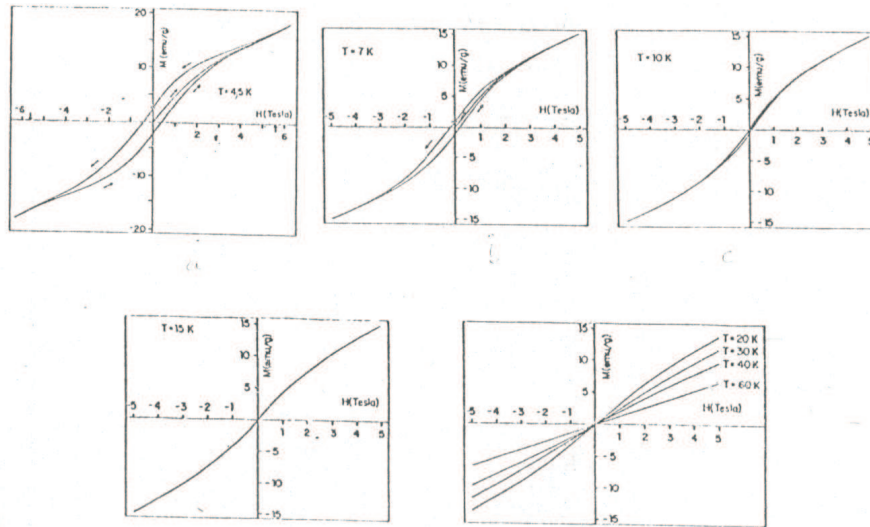


Figura 5.16: Dependência da magnetização M com H no composto $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$ em várias temperaturas [23].

5.4.1 Formação de platôs

Para o estudo da relaxação da magnetização total na região de formação dos platôs a $x = 0.25$, primeiramente tentou-se reproduzir a curva de histerese obtida por Brito [9], cujo procedimento adotado foi o de realizar um resfriamento *quenched* diretamente na temperatura de interesse, com 50000 MCS na termalização a campo nulo, partindo-se da região paramagnética. Em seguida, foi-se aumentando o campo magnético, com incrementos de $\Delta H = 0.05$ com 1000 MCS. A magnetização total medida, $M(H)$, é dada por:

$$M(H) = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N S_i(H) , \quad (5.2)$$

onde N é o número de spins da rede e S_i indica o valor do spin presente no i -ésimo sítio, após a termalização com campo magnético H . Depois de atingir um campo máximo igual a $H_{MAX} = 2.0$, decresceu-se o campo até atingir um valor mínimo $H_{MIN} = -2.0$, realizando-se novamente um aumento até o mesmo valor máximo de campo anterior. Os resultados das histereses para as temperaturas $T = 0.01, 0.28, 0.4$ e 0.6 estão ilustrados na Fig. 5.18.

5.4.2 Relaxação na região dos platôs

A fim de compreender como se processa a relaxação na região de formação dos platôs as condições iniciais foram estabelecidas pelo protocolo definido pela curva de histerese. Como ocorreu nos protocolos ZFC-*Quenched*, ZFC-Lento e FC, foi necessário impor certas condições ao sistema a fim de prepará-lo para a etapa de aplicação do campo. No caso da relaxação na região de platôs a condição inicial é dada pelo sistema após 1000 MCS. Assim, permanece-se com este campo ligado

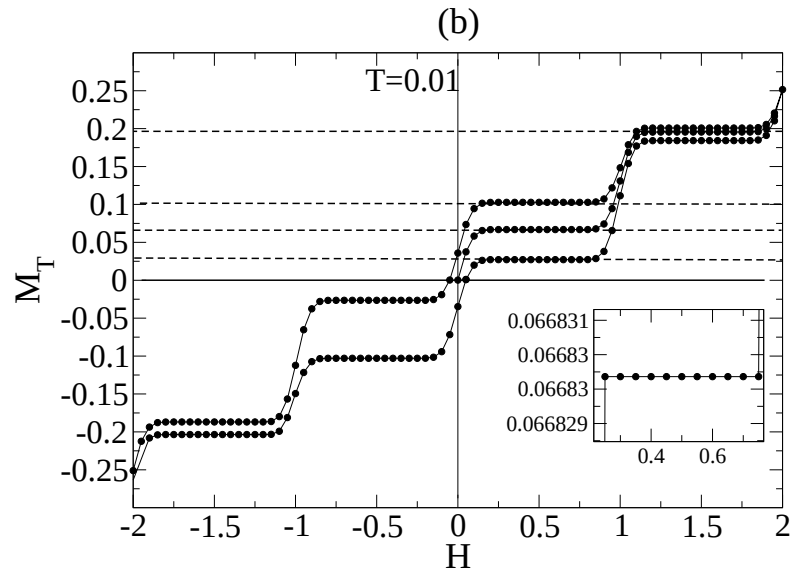


Figura 5.17: Ciclo de histerese do sistema $\text{Fe}_{0.25}\text{Zn}_{0.75}\text{F}_2$, via simulação MC, onde observa-se a formação de degraus com magnetizações bem definidas. O detalhe mostra que não há alteração no valor da magnetização no intervalo de campo especificado [9].

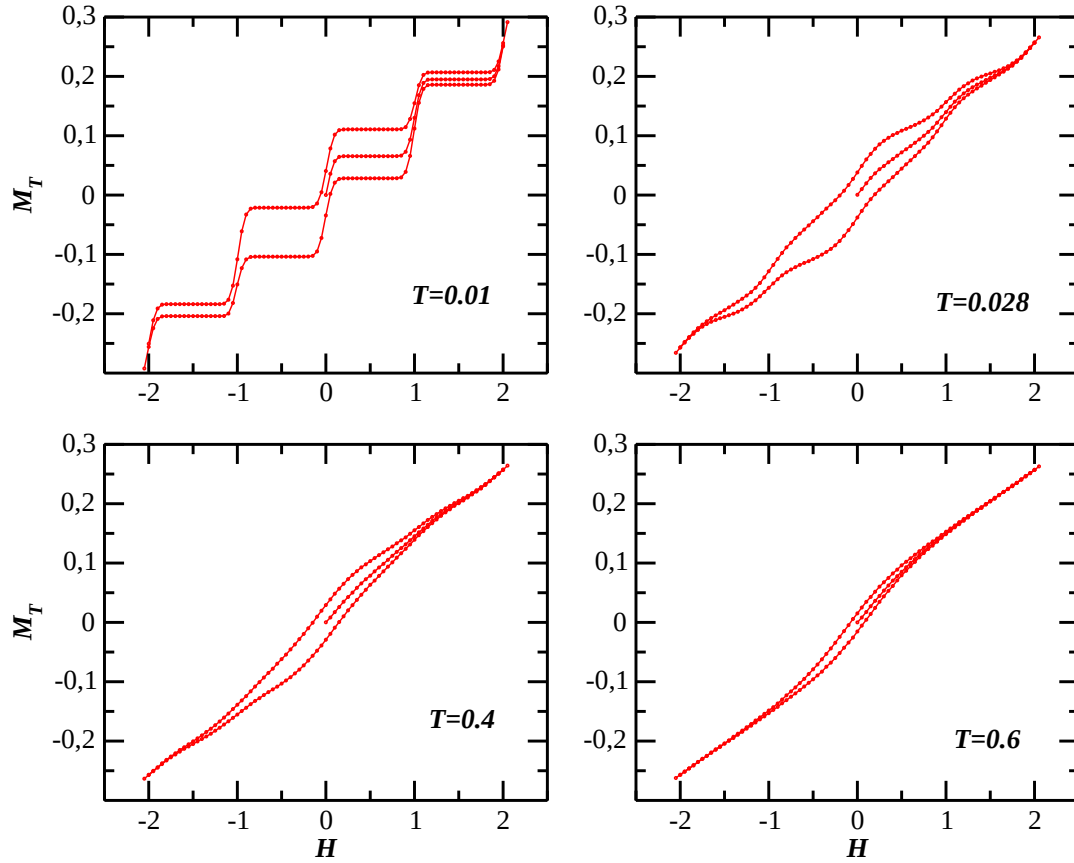


Figura 5.18: Curvas de histerese para as temperaturas $T = 0.01, 0.28, 0.4$ e 0.6 .

por mais um intervalo de tempo t_w , em seguida desligando-o e passando-se então a acompanhar a evolução do sistema através de medidas de autocorrelação temporal de spins $C(t, t_w)$. Separou-se em três partes o estudo dessas autocorrelações com o objetivo de identificar-se a importância do histórico de campo apresentado na histerese. A primeira, *(I)*, é a região entre $H = 0$ e o seu valor máximo; a segunda parte, *(II)*, indica a região de campo decrescente, entre o seu valor máximo e o valor mínimo; e por último, *(III)*, a região entre os campos mínimo e máximo, como ilustrado na Fig. 5.19.

Escolheram-se dois campos em intervalos entre platôs: $H = 0.05$ e $H = 1.0$, e dois que estão exatamente no meio dos platôs: $H = 0.5$ e $H = 1.5$, a fim de verificar as possíveis relações existentes nesses regimes. Observando-se que a temperatura exerce papel fundamental no processo de relaxação de tais sistemas, uma vez retirado o campo (no final de t_w) a baixa energia térmica presente não é suficiente para romper as barreiras de energia livre dos domínios originados com a aplicação do campo. Desta forma, os spins mantêm-se essencialmente congelados, como pode ser visto nas Fig 5.21, 5.22 e 5.23, não ocorrendo nenhuma alteração significativa na autocorrelação $C(t, t_w)$ para T , H e t_w fixos.

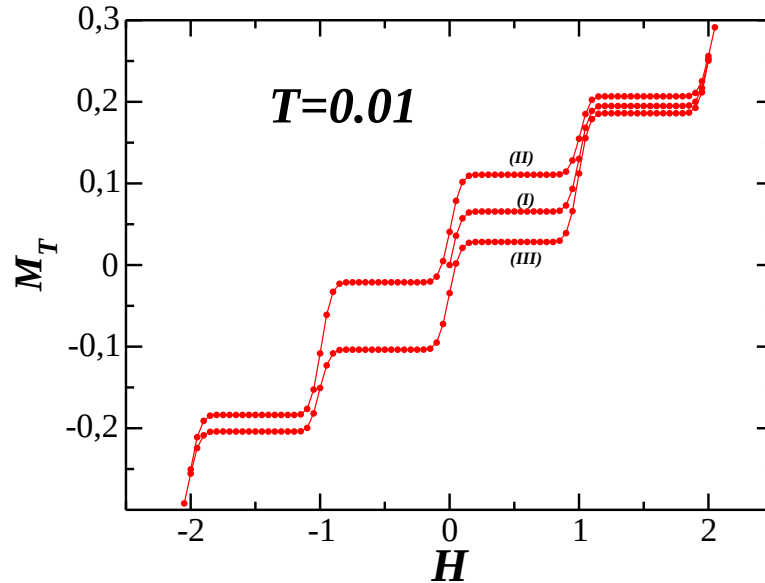


Figura 5.19: Curva de histerese obtida a $T = 0.01$, mostrando as três etapas discutidas no texto.

No que diz respeito à interpretação dos resultados, nota-se de modo geral que

os dados da relaxação de $C(t, t_w)$ com H no meio dos platôs apresentam pouca ou nenhuma dependência com $t_w \geq 10$, em contraste com a nítida separação das curvas para t_w distintos observada na região entre platôs para $H = 1.0$, nas partes (I), (II) e (III). De fato, observa-se nesta região que o sistema comporta-se de maneira bastante suscetível à variação de H , o qual promove inversões de spins. Quando um platô é atingido, o aumento de H numa extensão finita não induz um crescimento de M , uma vez que as interações de *exchange* entre spins (notadamente J_2) são suficientemente intensos para evitar inversões praticamente na ausência de flutuações térmicas.

No caso específico de $H = 0.05$, apesar do sistema encontrar-se entre $H = 0$ e o primeiro platô, o colapso das curvas, especialmente nas partes (I) e (III), reflete essencialmente o “congelamento” da dinâmica do sistema em função das baixas energias térmica ($T = 0.01$) e Zeeman ($H = 0.05$) disponíveis para a ativação sobre barreiras. (Na parte (II), a pequena separação das curvas para $H = 0.05$ se deve principalmente a um efeito do histórico da medição, nesse caso proveniente da evolução do sistema a partir de H altos; tal efeito é minimizado na parte (III), pois nesse caso o campo é aumentado e passa pelo estado $H = 0$, $M \simeq 0$, tal como ocorre na parte (I).)

Finalmente, observa-se ainda que, para um dado t_w em qualquer das partes, $C(t, t_w)$ é maior para H menores (veja Fig. 5.20). Neste sentido, esta tendência se assemelha à observada nos protocolos ZFC-Lento e FC (veja seções 5.1 e 5.3), em contraste com a tendência oposta verificada no procedimento ZFC-*Quenched* (veja seção 5.1). De fato, o protocolo de histerese tem em comum com ZFC-Lento e o FC a lenta evolução do sistema (em função de H no primeiro caso, em função de T nos demais), em que estados relativamente próximos do equilíbrio são atingidos antes de

cada ΔH ou ΔT , respectivamente. Assim o papel de H quando aplicado nesses casos é o de diminuir a correlação entre spins previamente estabelecida no estado anterior. Por outro lado, no protocolo ZFC-*Quenched* o sistema é rapidamente resfriado para uma configuração paramagnética a $T < T_f$, bastante distante do equilíbrio e sem correlação alguma entre os spins. Nesse caso, a aplicação de H aumenta a correlação.

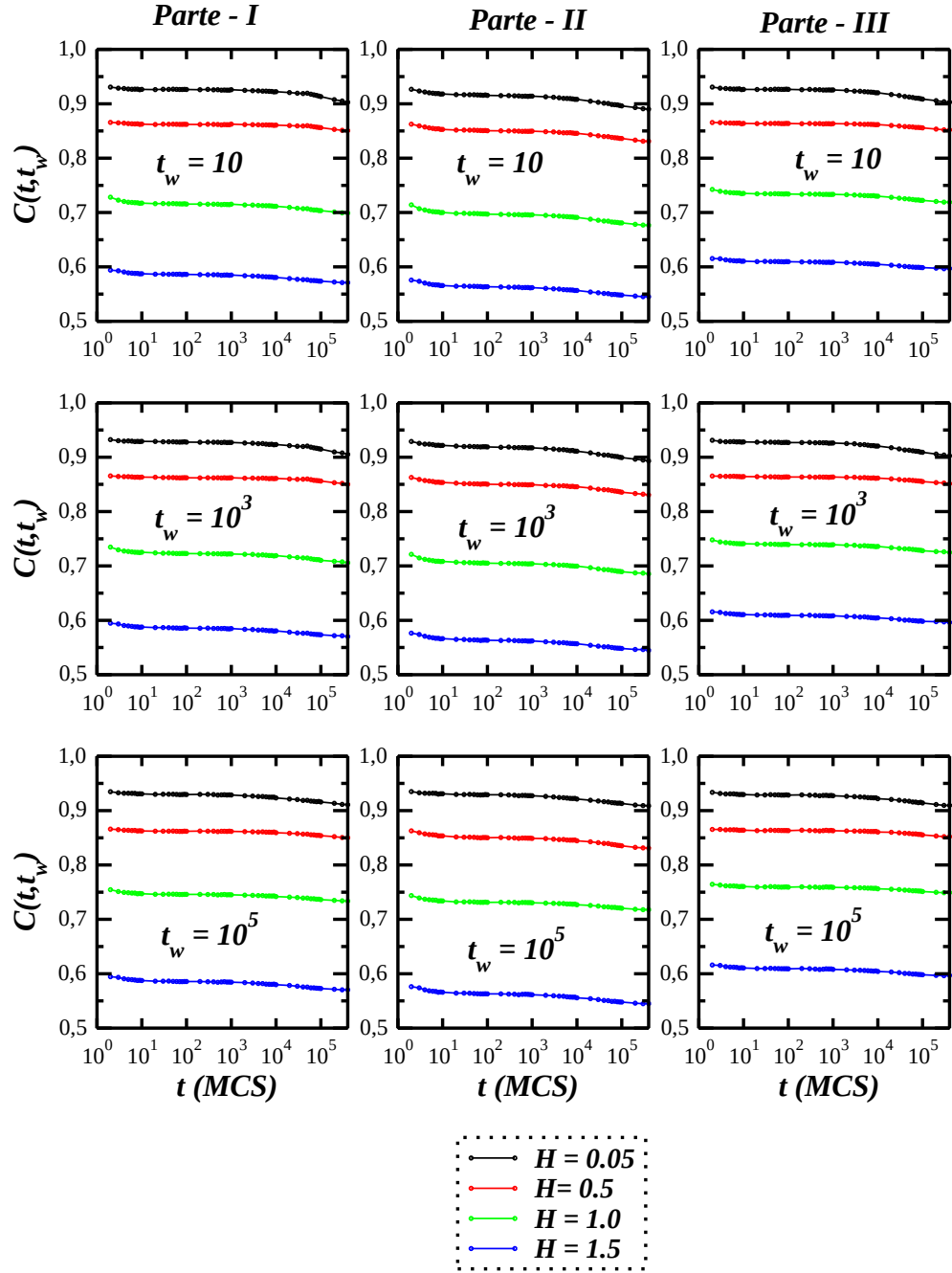


Figura 5.20: Relaxação referente a todas as partes, mostrando de forma geral a dependência de $C(t, t_w)$ com t para os valores de campo estudados a $T = 0.01$ para $t_w = 10, 10^3$ e 10^5 .

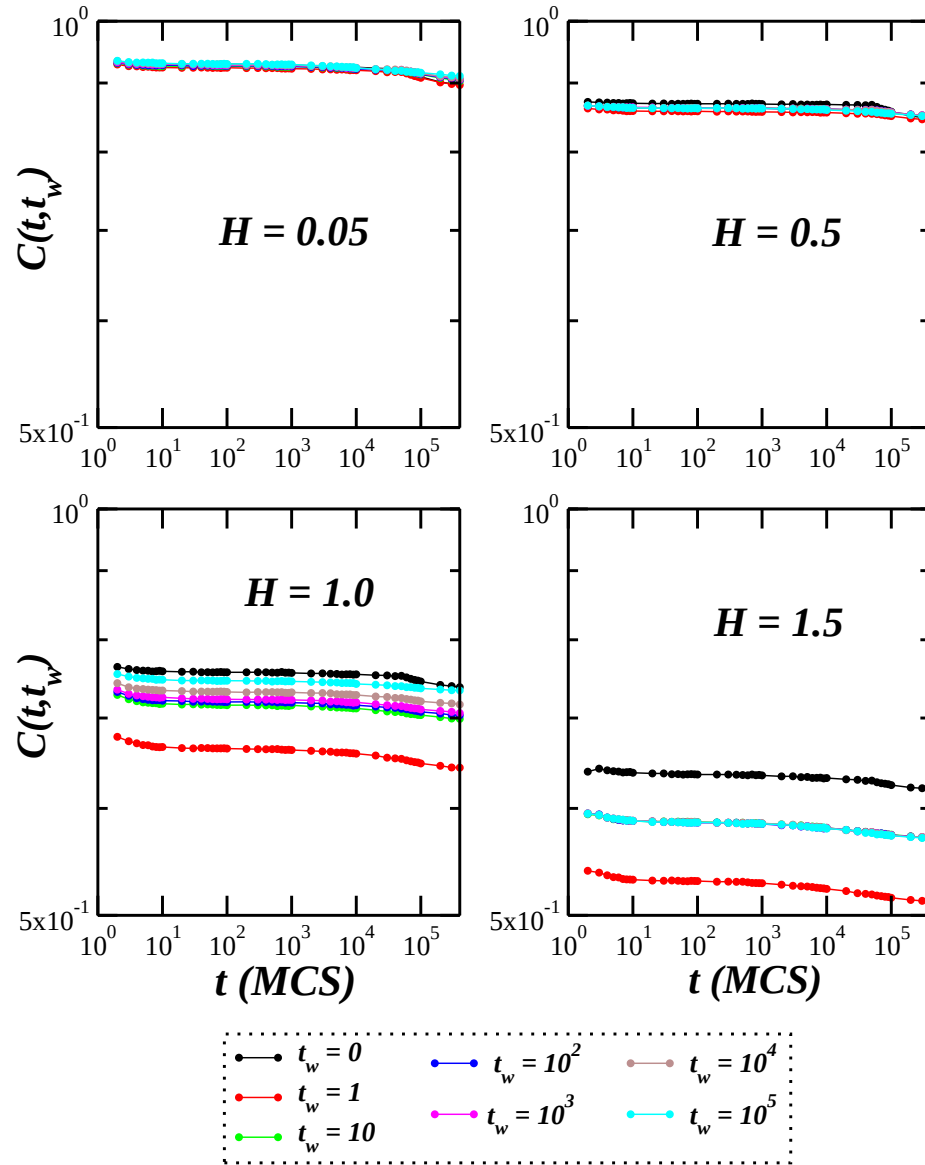


Figura 5.21: Relaxação referente à parte I, mostrando a dependência de $C(t, t_w)$ com t para alguns valores de campo a $T = 0.01$. Os campos $H = 0.05$ e $H = 1.0$ encontram-se entre platôs

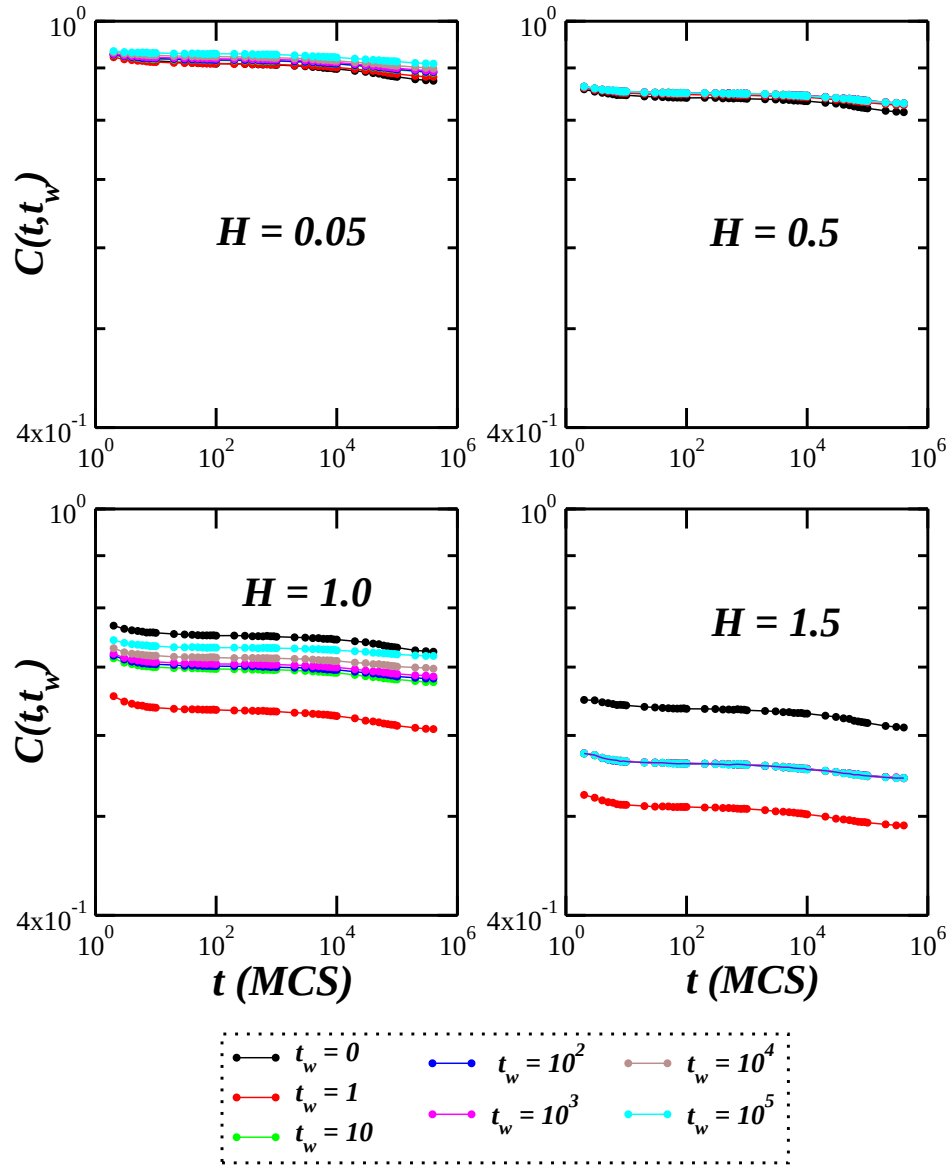


Figura 5.22: Relaxação referente à parte II, mostrando a dependência de $C(t, t_w)$ com t para alguns valores de campo a $T = 0.01$. Os campos $H = 0.05$ e $H = 1.0$ encontram-se entre platôs

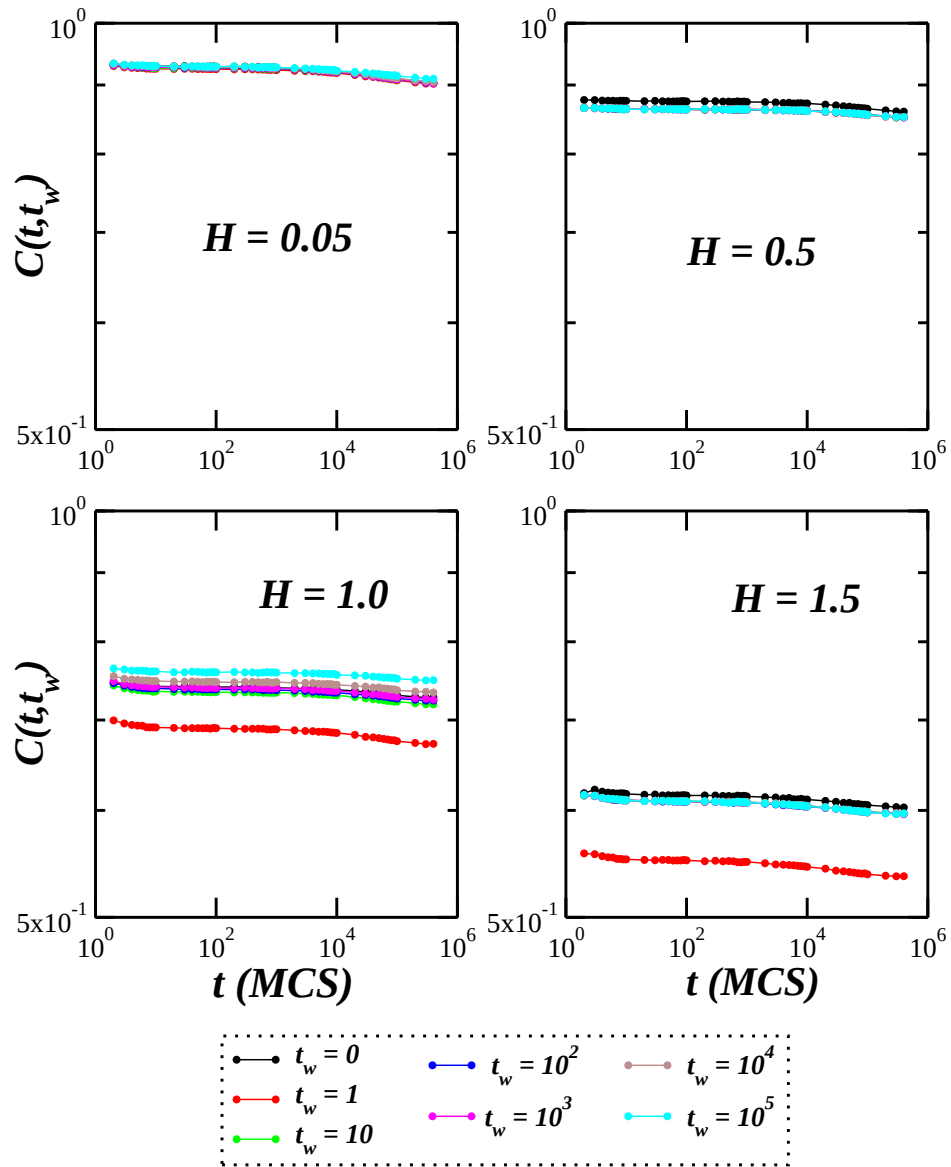


Figura 5.23: Relaxação referente à parte III, mostrando a dependência de $C(t, t_w)$ com t para alguns valores de campo a $T = 0.01$. Os campos $H = 0.05$ e $H = 1.0$ encontram-se entre platôs

Capítulo 6

Conclusões e Perspectivas

Neste trabalho foram apresentados os resultados da dinâmica do sistema $\text{Fe}_x\text{Zn}_{1-x}\text{F}_2$ em sua fase vidro de spin próxima da percolação, a $x = 0.25 \cong x_p = 0.24$, por meio do estudo da autocorrelação temporal dos spins via simulação Monte Carlo.

Foram realizados vários tipos de protocolos, visando seguir de perto os procedimentos experimentais, a fim de verificar a dependência da relaxação com o campo magnético e o tempo de espera (tempo de aplicação do campo), t_w , sendo estes: resfriamento a campo nulo (*Zero Field Cooling* - ZFC) nos regimes *lento* e *quenched*; e o resfriamento com campo magnético aplicado (*Field Cooling* - FC). De modo geral, o sistema foi estudado nos regimes de campos magnéticos baixos, intermediários e altos, com respeito à energia de troca dominante entre os spins, xJ_2 .

A análise dos resultados foi baseada no cenário descrito pelo modelo de *droplets* para VS, envolvendo o crescimento e a relaxação de domínios via ativação térmica sobre barreiras logarítmicas de energia, como é característico da proximidade da percolação (longe da percolação a hipótese é de barreiras de energia proporcional a

uma lei de potência do tamanho típico dos domínios). A delimitação dos regimes dinâmicos envolveu a comparação entre os comprimentos típicos L_w , dentro dos quais um equilíbrio local induzido pelo campo é atingido após um tempo t_w , e L_H , que estabelece o comprimento de escala dos aglomerados de spin em que a configuração de spins do sistema se subdivide mediante a aplicação do campo. Nesse sentido, um fator relevante na diferença das análises dos protocolos *ZFC-Quenched* e *ZFC-Lento* é o fato de que, no primeiro caso, o estado do sistema após resfriamento é do tipo paramagnético, bastante distante da configuração de equilíbrio a $T < T_f$, enquanto que no segundo, o sistema já se apresenta essencialmente termalizado em sua fase vidro de spin a $H = 0$ após sua lenta trajetória a partir da fase PM em altas temperaturas. O mesmo tipo de análise, segundo o cenário de crescimento e relaxação de domínios, também foi realizado após o procedimento FC. Do ponto de vista qualitativo, no regime de campos baixos e intermediários a interpretação dos resultados não diferiu consideravelmente da efetuada para o caso *ZFC-Quenched*. Contudo, para campos altos, $H > 5$ T, os resultados dos dois protocolos diferiram bastante, inclusive qualitativamente, evidenciando a possibilidade de uma mudança drástica da fase desordenada do sistema a $x = 0.25$, induzida pelo campo magnético nesse regime.

No que diz respeito à conexão com as previsões do modelo de *droplets* em $x \approx x_p$, foram observados os regimes de quase-equilíbrio, $t \ll t_w$, e de *aging*, $t \gg t_w$, em que a função de correlação apresenta decaimentos temporais do tipo lei de potência, com expoentes $x(T, H)$ e $\lambda(T, t_w, H)$, respectivamente, com $\lambda > x$, devido à presença de barreiras de energia que escalam de forma logarítmica com o tamanho dos *droplets* em $x \approx x_p$ (longe da percolação a previsão do modelo de *droplets* é de decaimento logarítmico com o tempo, o que não foi encontrado na presente análise). Mediante

a aplicação de hipóteses de escala aditiva e multiplicativa com respeito aos dois regimes de tempo, concluiu-se que, enquanto no regime de campos baixos (para a aditiva e a multiplicativa) e baixos e intermediários (somente para a aditiva) bons colapsos dos dados para $C(t, t_w)$ foram obtidos para $t_w = 10, 10^2, 10^3$ e 10^4 , a $T = 5.1K$, nenhum colapso foi observado para altos campos, $H > 5$ T. Assim como comentado acima, esse é mais um indicativo do efeito drástico da presença de campo no sistema. Finalmente, o ajuste satisfatório dos dados usando apenas uma escala de tempo vai de encontro à previsão do cenário de quebra de simetria de réplicas de Parisi na solução de campo médio do modelo SK para VS, em que a presença de vários setores de longos tempos deveria implicar em ajustes obtidos apenas com o uso de vários parâmetros de escala de tempo.

Além disso, reproduziu-se a curva de histerese para o sistema a $x = 0.25$ e $T = 0.12K$, evidenciando a dependência dos resultados com o histórico das medidas. Observou-se que há o surgimento de degraus, ou platôs, bem definidos para certos intervalos de campo. Foi realizado um estudo da relaxação de $C(t, t_w)$ também para esta região. Em particular, a interpretação á luz do crescimento de domínios permitiu entender a grande estabilidade dos resultados nas regiões de platôs e a sua variação com t_w nas regiões entre platôs, onde o campo promove a inversão de spins, vencendo a energia de troca que os prende aos domínios. Nesse sentido, mesmo no regime de platôs a falta de colapso dos resultados para $t_w = 0$ e $t_w = 1$ reflete justamente a sensibilidade do sistema á aplicação de H enquanto os reajustes locais de spins ocorrem em escalas de comprimento menores que L_H .

Algumas perspectivas incluem a análise conjunta dos resultados de relaxação na curva de histerese com o resultado termodinâmico para a saturação da magnetização total em $T \rightarrow 0$. De fato, como apontado em resultados preliminares, parece existir

uma aparente correlação entre a convergência de valores de M para alguns campos e o fato destes campos pertencerem a um mesmo platô na curva de histerese.

Referências Bibliográficas

- [1] H. Rieger, Phase Transitions. **77** (5-7), 497-523.
- [2] K. Binder e A. P. Young, Rev. Mod. Phys. **58**, 801 (1986).
- [3] D. S. Fisher e D. A. Huse, Phys. Rev. B **38**, 1601 (1986).
- [4] D. S. Fisher e D. A. Huse, Phys. Rev. Lett. **56**, 373 (1988).
- [5] G. Parisi , Phys. Rev. Lett. **43** (1979).
- [6] D. Sherrington e Scott Kirkpatrick , Phys. Rev. Lett. **35** (1975).
- [7] F. C. Montenegro, S. M. Rezende e M. D. Coutinho-Filho, Phys. Rev. B **44**, 2155 (1991).
- [8] P. H. R. Barbosa e E. P. Raposo e M. D. Coutinho-Filho, Phys. Rev. Lett. **91**, 197207-1 (2003).
- [9] J. B. de Brito, Tese de Mestrado *Histerese e Irreversibilidade em Vidro de Spin Ising Próximo ao Limiar de Percolação: $Fe_xZn_{1-x}F_2$* , Departamento de Física da UFPE (2003).
- [10] P. H. R. Barbosa , Tese de Doutorado *Estudo Monte Carlo de Antiferromagnetos diluídos: $Fe_xZn_{1-x}F_2$* Departamento de Física da UFPE (2000).

- [11] D. Chowdhury, em *Spin Glasses and Other Frustrated Systems*, World Scientific Publishing, 1986.
- [12] H. Maletta e Zinn, en *Spin Glasses*, publicado no *Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths*, ed. K. A. Gschneidner, Jr., e L. Eyring, North-Holland, Publi. Comp. Vol **12** (1986).
- [13] F. C. Montenegro, U. A. Leitão, M. D. Coutinho-Filho e S. M. Rezende, J. Appl. Phys. **67** 5243 (1990).
- [14] E. Ising, Rev. Mod. Phys. **39**, 883 (1967).
- [15] D. P. Belanger, Bras. J. Phys. **30**, 3755 (2000).
- [16] D. Chowdhury e B. Biswal, *Annual Review of Computational Physics I* (editado por D. Stauffer, Singapore World Scientific 1994).
- [17] R. B. Stinchcombe, *Dilute Magnetism em Phase Transitions and Critical Phenomena*, **7** Academic Press Inc 1983.
- [18] D. P. Belanger e A. P. Young, J. Magn. Magn. Mater. **100**, 272 (1991).
- [19] A. P. Young, *Spin Glasses and Random Fields* editado por A. P. Young (Directions in Condensed Matter Physics **12**, World Scientific 1998).
- [20] S. Fishman e A. Aharony, J. Phys. C **12**, L729 (1979).
- [21] J. L. Cardy, Phys. Rev. B **29**, 507 (1984).
- [22] S. F. Edwards e P. W. Anderson, J. Phys. F **5** (1975).

- [23] F. C. Montenegro , Tese de Doutorado *Metaestabilidade e Comportamento Crítico no Sistema Magnético Aleatório $Fe_xZn_{1-x}F_2$* , Departamento de Física da UFPE (1988).
- [24] J. R. L. de Almeida, D. J. Thouless , J. Phys. A: Math. Gen. **11** , n⁵ (1978).
- [25] D. Sherrington, *Spin Glasses: a Perspective*, cond-mat/0512425 (2006).
- [26] L. W. Bernadi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **86**, 720 (2001).
- [27] G. Hed *et al.*, Phys. Rev. Lett. **86**, 3148 (2001).
- [28] A. Barrat e L. Berthier, Phys. Rev. Lett. **87**, 3148 (2001).
- [29] A. C. Carter, A. J. Bray e M. A. Moore, Phys. Rev. Lett. **88**, 077201 (2002).
- [30] T. Temesvári e C. De Dominicis, Phys. Rev. Lett. **89**, 097204 (2002).
- [31] C. L. Henley, Phys. Rev. Lett. **18**, 2030 (1985).
- [32] I. M. Lifshitz e V. V. Slyozov, J. Phys. Chem. Solids **19**, 35 (1962).
- [33] S. M. Allen e J. W. Cahn, Acta Metall. **27**, 1085 (1979).
- [34] D. S. Fisher e J A. Hertz, *Spin Glasses* (Cambridge University Press, 1991).
- [35] M. Picco, F. Ricci-Tersenghi e F. Ritort, Eur. Phys. B **91**, 211 (2001).
- [36] A. A. C. Forner, Tese de Doutorado *Magnetismo a temperatura ambiente em polímeros derivados de Politiofeno sintetizados eletronicamente*, Departamento de Química da UFSCar-SP (2003).
- [37] M. T. Hutchings, B. D. Rainford e H. J. Guggenheim, J. Phys. C **3**, 307 (1970).

- [38] A. R. King, V. Jacarino, T. Sakakibara, M. Motokawa e M. Date, J. Magn. Magn. Mater. **31-34**, 1117 (1983).
- [39] Y. Shapira, Phys. Lett. A. **30**, 388 (1969).
- [40] Y. Shapira, Phys. Rev. B. **35**, 4823 (1987).
- [41] J. Stout e E. Catolono, J. Chem. Phys. **23**, 2013 (1955).
- [42] D. P. Belanger e H. Yoshizawa, Phys. Rev. B. **35**, 4823 (1987).
- [43] F. C. Montenegro, D. P. Belanger, Z. Slanic e J. A. Fernandes-Baca, Phys. Rev. B **61**, 14681 (2000).
- [44] F. C. Montenegro, D. P. Belanger, Z. Slanic e J. A. Fernandes-Baca, J. Appl. Phys. **87**, 6537 (2000).
- [45] V. Jacarino and A. R. King, *New Trends in Magnetism* ed. M. D. Coutinho-Filho e S. M. Resende, World Scientific, Singapore, 1989.
- [46] F.C. Montenegro, A. R. King, V. Jaccarino, S. J. Hand e D. P. Belanger, Phys. Rev. B **44**, 2155 (1991).
- [47] F. C. Montengro, S. M. Rezende e M. D. Coutinho-Filho, Rev. Bras. de Fis. (1991).
- [48] F. C. Montenegro, S. M. Rezende e M. D. Coutinho-Filho , Europhys. Lett. **8**, pp. 383-388 (1989).
- [49] F. C. Montenegro, S. M. Rezende e M. D. Coutinho-Filho, J. Appl. Phys. **8** (1988).

- [50] E. P. Raposo, M. D. Coutinho-Filho e F. C. Montenegro , Europhys. Lett. **29**, pp. 507-511 (1995).
- [51] D. P. Belanger e H. Yoshizawa, Phys. Rev. B **47**, 5051 (1993).
- [52] K. Jonason, C. Djurberg, P. Nordblat e D. P. Belanger, Phys. Rev. B **56**, 5404 (1997).
- [53] P. H. R. Barbosa e E. P. Raposo e M. D. Coutinho-Filho, *Monte Carlo Studies of the Spin-Glass-Like Phase in $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$* , Materials Science Forum, 373-376, (2001).
- [54] P. H. R. Barbosa e E. P. Raposo e M. D. Coutinho-Filho, *Monte Carlo Dynamics of the Spin-Glass-Like Phase in $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$* , J. Appl. Phys. **87**, (2000).
- [55] P. H. R. Barbosa e E. P. Raposo e M. D. Coutinho-Filho, J. Magn. Magn. Mater. **226-230**, 1293 (2001).
- [56] E. P. Raposo , Tese de Doutorado *Teoria de Campos de Cadeias Poliméricas de Hubbard e Simulação Numérica de Antiferromagnetos Desordenados*, Departamento de Física da UFPE (1996).
- [57] K. Coutinho, *Método de Monte Carlo Aplicado à Simulação de Líquidos*, em Anais da VII Escola Brasileira de Estrutura Eletrônica, vol.1, **48**, Goiânia, 2000.
- [58] M. E. J. Newmann and G. T. Barkema, *Monte Carlo Methods in Statistical Physics* (Claredon Press-Oxford, 1999).
- [59] S. R. A. Salinas, *Introdução à Física Estatística* (edusp, 1997).

- [60] L. F. Cugliandolo e J. Kurchan , J. Phys. A **27**, 5749 (1994).
- [61] J. Bouchaud, L. F. Cugliandolo, J. Kurchan e M. Mèzard, World Scientific Singapore, pp. 161-224 (1998).