Tese de Doutorado

Efeito do Campo Magnético na Fase Ordenada de um Vidro de Spin Ising no Limiar da Percolação

Karlla Adriana Pereira de Lima

Universidade Federal de Pernambuco

Centro de Ciências Exatas e da Natureza

Departamento de Física

Universidade Federal de Pernambuco
Departamento de Física

Efeito do Campo Magnético na Fase Ordenada de um Vidro de Spin Ising no Limiar da Percolação

Karlla Adriana Pereira de Lima

Tese apresentada ao Depto. de Física da UniversidadeFederal de Pernambuco como parte dos requisitos para a obtenção do título de Doutor em Física.

Banca examinadora:

Prof. Maurício Domingues Coutinho-Filho (Orientador);

Prof. Ernesto Carneiro Pessoa Raposo (Co-Orientador);

Prof. Paulo Henrique Ribeiro Barbosa (Co-Orientador);

Prof. Silvio Roberto de Azevedo Salinas;

Prof. Francisco Alexandre da Costa;

Prof. Sergio Galvão Coutinho;

Prof. Marcelo Andrade de Filgueira Gomes.

Recife - Pernambuco - Brasil

27 de fevereiro de 2012

Catalogação na fonte
Bibliotecário Vimário Carvalho da Silva, CRB 4-1204.

Lima, Karlla Adriana Pereira de.
Efeito do campo magnético na fase ordenada de um vidro de Spin Is1ng no limiar da Percolação. / Karlla Adriana Pereira de Lima. – Recife: A Autora, 2012.
v, 95 f.: fig.

Orientador: Prof. Mauricio Domingues Coutinho Filho.
Tese (Doutorado) - Universidade Federal de Pernambuco. CCEN. Física, 2012.

Inclui bibliografia.

1. Física Estatística. 2. Vidro de Spin. 3. Antiferromagneto desordenado. 4. Simulação computacional. I. Coutinho Filho, Mauricio Domingues (orientador). II. Título.

530.1595 (22. ed.) FQ 2012-009

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 Tese de Doutorado

Karlla Adriana Pereira de Lima

"EFEITO DO CAMPO MAGNÉTICO NA FASE ORDENADA DE UM VIDRO DE SPIN ISING NO LIMIAR DA PERCOLAÇÃO"

A Banca Examinadora composta pelos Professores Maurício Domingues Coutinho Filho (Presidente e Orientador), Ernesto Carneiro Pessoa Raposo, do Departamento de Física da Universidade Federal de Pernambuco e Paulo Henrique Ribeiro Barbosa, da Universidade Federal do Piauí, ambos Co-orientadores. Sergio Galvão Coutinho e Marcelo Andrade Filgueiras Gomes, todos do Departamento de Física da Universidade Federal de Pernambuco. Silvio Roberto de Azevedo Salinas, da Universidade de São Paulo e Francisco Alexandre da Costa, da Universidade Federal do Rio Grande do Norte, consideram a candidata:

(X) Aprovado ( ) Reprovado ( ) Em exigência

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 27 de fevereiro de 2012.

Maurício Domingues Coutinho Filho
Presidente e Orientador

Francisco Alexandre da Costa

Ernesto Carneiro Pessoa Raposo
Co-orientador

Sergio Galvão Coutinho

Paulo Henrique Ribeiro Barbosa
Co-orientador

Marcelo Andrade de Filgueiras Gomes

Silvio Roberto de Azevedo Salinas

Dedico esta Tese de Doutorado aos meus professores heróis:

Maurício D. Coutinho-Filho e Ernesto P. Raposo.

Resumo

O efeito do campo magnético na fase vidro de spin a campo nulo de um composto antiferromagnético Ising tridimensional diluído, $Fe_xZn_{1-x}F_2$, $x = 0.25$, próximo ao limiar da concentração de percolação de primeiros vizinhos, $x_p \approx 0.24$, é investigado via simulações Monte Carlo e de campo médio síto-a-sítio. Aqui consideramos as constantes de acoplamento de curto alcance obtidas diretamente do composto em questão, ao invés de uma distribuição estocástica de interações de troca (*exchange*). Estudamos as dinâmicas da função de correlação, magnetizações termo-remanente e isotermo-remanente, e a termodinâmica da histerese e magnetizações nos ciclos de refriamento a campo nulo (*zero field cooling*) e com campo (*field cooling*), assim como as configurações microscópicas de spin associadas; os resultados foram obtidos para o aglomerado de spin (*cluster*) percolante e para a amostra inteira. Para temperaturas muito baixas, o comportamento do sistema é dominado pela competição entre as interações antiferromagnéticas e o campo aplicado. Com o aumento da temperatura, nossas conclusões são consistentes com um comportamento vítreo ou metaestável do tipo vidro de spin no contexto de um cenário do modelo de *droplets* modificado, com ativação térmica dos domínios fractais correlacionados sobre barreiras de energia logarítmicas próximas ao limiar da concentração de percolação de primeiros vizinhos.

Abstract

The effect of a magnetic field on the previously characterized fractal cluster zero-field spin glass phase of the three-dimensional dilute antiferromagnet Ising compound $Fe_xZn_{1-x}F_2$, $x = 0.25$, near the first-neighbor percolation threshold, $x_p \approx 0.24$, is investigated via Monte Carlo and local-mean-field simulations. Here we consider the actual short-range spin couplings taken from the referred compound, rather than from stochastic distributions of exchange couplings. We study the dynamics of the correlation function, thermoremanent and isothermoremanent magnetizations, and the thermodynamics of hysteresis cycles and zero-field-cooled and field-cooled magnetizations, as well as the associated microscopic configuration of spins; results are obtained for the percolating cluster and the whole sample. At very low temperature, the behavior of the system is dominated by the competition between the antiferromagnetic interactions and the applied field. As the temperature raises, our findings are consistent with a vitreous or metastable spin-glass-like thermodynamic state in the context of a modified droplets picture of thermal activation of fractal correlated domains over logarithmic energy barriers near the first-neighbor percolation threshold.

Sumário

1 Introdução **2**

1.1 Caracterização do composto $Fe_xZn_{1-x}F_2$ 6

1.2 Métodos e Modelos 25

1.2.1 O método Monte Carlo 27

1.2.2 Campo médio sítio-a-sítio 31

2 Efeitos do Campo Magnético sobre a Dinâmica: Magnetização Remanente, Função de Correlação e *Scaling* **34**

2.1 Dinâmica de crescimento de domínios 36

2.2 Função de autocorrelação temporal de spins 39

2.2.1 *Aging* - Envelhecimento 40

2.2.2 Resultados e discussão 41

2.2.3 *Scaling*: multiplicativo e aditivo 47

2.3 Magnetização Remanente 52

3 Histerese, Irreversibilidade e Ciclos Termodinâmicos **55**

3.1 Histerese via Simulação Monte Carlo 55

3.2 Ciclos *ZFC-FC* e Curvas de Irreversibilidade 59

3.3 Simulação Campo Médio Sítio-a-Sítio 66
3.4 Estabilidade do Parâmetro de EA 68

4 Análise Microscópica **76**

5 Conclusão e Discussão **86**

Referências Bibliográficas **88**

Capítulo 1

Introdução

A descoberta da fase denominada *Spin Glass*, ou Vidro de Spin em português (VS), aconteceu durante a década de 1960, quando pesquisadores observaram propriedades não usuais em experimentos com uma série de ligas magnéticas [17]. Os VS são um fascinante tópico da física da matéria condensada que foi desenvolvido essencialmente a partir da segunda metade da década de 1970 e permanecem como um dos mais complexos tipos de estados condensados encontrados na física do estado sólido [18]. Eles constituem um estado magnético cooperativo, com magnetização média nula e parâmetro de ordem definido pela função de autocorrelação temporal de spins, isto é, o sistema exibe o fenômeno de congelamento aleatório dos spins, de natureza cooperativa em temperaturas abaixo da temperatura de congelamento. Desta forma, os VS são observados em ligas metálicas ou em materiais isolantes, com interações de troca de curto alcance e presença de desordem e/ou interações competitivas.

O efeito de um campo magnético sobre a fase VS permanece um problema

aberto após mais de três décadas de debate [1]. Por um lado, a idéia da quebra de simetria de réplicas (*Replica Symmetry Breaking - RSB*) no contexto da teoria de campo médio do modelo de Sherrington-Kirkpatrick [17, 18, 19, 20, 21, 22, 23, 24] prevê um equilíbrio da fase VS para campos abaixo da linha de Almeida-Thouless (AT) [25], um fato sugerido [17, 18, 19, 20, 21] também ser válido para VS com interações de curto alcance. Por outro lado, os conceitos de *scaling* baseados na ativação térmica sobre barreiras de energia livre em modelos de curto alcance - a representação de *droplets* [26, 27, 28, 29, 30] - prevê a ausência da fase VS na presença de um campo magnético. Além da abordagem de campo médio, recentes cálculos através do grupo de renormalização [17, 18, 19, 20, 21, 31, 32, 33, 34, 35, 36], incluindo efeitos das flutuações térmicas no modelo de Ising de alcance infinito, não foram capazes de encontrar qualquer ponto fixo estável na presença de um campo magnético abaixo da dimensão crítica da transição VS a campo nulo, $d_c = 6$, a não ser no contexto de uma teoria [17, 18, 19, 20, 21, 34, 35] qualitativamente distinta da solução ultramétrica proposta por Parisi. Porém, uma abordagem mais recente [37] através de um modelo de teoria de campos com simetria de réplicas prova a existência da linha AT abaixo de d_c.

No cenário de *droplets*, a fase paramagnética (PM) surge na presença de um campo a partir da fase VS a campo nulo abaixo da temperatura de congelamento T_f, além de uma escala de comprimento típico quando $H \to 0$. Como consequência, estudos experimentais e numéricos sobre a fase VS com campo são dificultados, uma vez que seus tempos de relaxação são extremamente longos e as propriedades são difíceis de caracterizar. Do ponto de vista experimental, medidas de magnetização e susceptibilidade tomadas em distintos ciclos termodinâmicos [38], curva AT e

[1] Para uma revisão mais detalhada dos VS, veja [17, 18, 19, 20, 21]

propriedades críticas [11, 9, 39], incluindo também *scalings* dinâmicos [40, 41, 42, 43], têm caracterizado o comportamento dos compostos Ising $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ [38, 11, 9, 40, 5, 42, 43] e $Fe_xMn_{1-x}TiO_3$ [39], $0.41 \leq x \leq 0.57$.

A transição em campos altos da fase do tipo campo aleatório (*Random Field*) para uma fase vítrea com características de um VS também foi estudada com detalhe [2, 3, 4, 6, 7, 8]. Adicionalmente, estudos da dinâmica da susceptibilidade [44, 45, 46, 47, 48, 49, 50] e da linha AT dos materiais acima mencionados concluíram que seus tempos de relaxação são finitos na presença de um campo, sugerindo a ocorrência de um estado termodinâmico vítreo ou metaestável induzido pelo campo H, com comportamento do tipo VS originado através de uma transição dinâmica consistente com a representação de *droplets*.

O cenário acima encontra suporte nos resultados, via simulação Monte Carlo (MC), de *aging* da função de autocorrelação temporal e magnetização *field-cooled* (definida posteriormente) do modelo Edwards-Anderson (EA) Ising tridimensional (3D) de curto alcance, utilizando protocolos com variações de H. Neste contexto, embora trabalhos utilizando o método MC com campo tenham suporte [51, 52, 53] ao cenário RBS, outros resultados numéricos do modelo EA-3D apresentam [54, 55, 56] evidências da destruição da fase VS induzida por H.

Além disso, pelo estudo numérico do efeito do campo sobre a fase VS com excitações locais de baixa energia [57, 58, 59], os campos críticos do estado fundamental, $H_c \approx 0.4$ [59] e 0.65 [58] (em unidades da variância da distribuição Gaussiana dos acoplamentos de *exchange*), têm sido estimados ser consideravelmente menores do que os valores AT do campo médio ($H_{AT}^{MF} \approx 1.86$ [60]), um resultado que dá suporte ao cenário de *droplets*, embora os clusters de spin aparentem ser fractais ao invés de compactos. Apesar disso, argumentos favorecendo a representação RSB

não podem ser desconsiderados [58].

Neste trabalho, utilizamos as simulações de Monte Carlo (MC) e campo médio sítio-a-sítio (LMF - *Local Mean Field*) para investigar como a presença de um campo magnético uniforme H afeta a fase VS a campo nulo (caracterizada previamente [11, 9, 61]) do antiferromagneto Ising 3-D, $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$, no limiar da percolação ($x_p \approx 0.24$ [20, 62]). Enfatizamos que nosso estudo numérico tem como base um modelo microscópico, cujos valores das constantes de acoplamento dos primeiros vizinhos (J_1, J_2 e J_3 - apresentadas mais adiante neste Capítulo) são obtidos a partir do material real ao invés de uma distribuição de interações de troca.

De fato, estudos prévios [63, 64, 65, 66, 12] via MC a campo nulo sugerem que uma estrutura de domínios fractais, para T baixa, com uma dinâmica lenta é o mecanismo físico associado à fase VS [38, 40, 9], inibindo a ocorrência da frágil ordem antiferromagnética (AF) esperada na vizinhança da percolação. Além disso, para $x = 0.25$ as subredes perdem sua identidade, tal que as magnetizações de subrede da estrutura AF pura são virtualmente nulas [63], exceto para pequenos aglomerados AF remanentes. Neste contexto, uma pequena interação de frustração interplanar tem apresentado um papel insignificante para temperaturas acima de $T \gtrsim 1$K, apesar das previsões de campo médio na ausência das flutuações térmicas [67, 68, 69, 70], porém se revelando importante nas medidas de baixas temperatura do calor específico [12, 13] como veremos nas Figs. 1.11 e 1.12.

Nossa análise inclui as dinâmicas (fora do equilíbrio) das funções de correlação, magnetizações termorremanente (TRM) e isotermorremanente (IRM) nos protocolos com variações de H, e a termodinâmica dos ciclos de histerese para o regime de baixas temperaturas e das magnetizações dos ciclos *zero field cooling* (ZFC) e *field cooling* (FC), assim como a configuração microscópica dos spins; os resultados foram

obtidos para o cluster percolante e a amostra inteira.

Concluímos que o comportamento do sistema $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ para T baixa é dominado pela competição entre as interações AF e o campo magnético aplicado. Com o aumento da temperatura, nossos resultados estão consistentes com um estado vítreo ou metaestável do tipo VS no contexto da representação de *droplets* modificada de ativação térmica de domínios correlacionados sobre barreiras de energia logarítmicas próximo à concentração de percolação de primeiros vizinhos.

Este capítulo está dividido em duas partes: uma breve caracterização experimental do composto $Fe_xZn_{1-x}F_2$ e, em seguida, a apresentação dos métodos numéricos utilizados nesta Tese de Doutorado.

1.1 Caracterização do composto $Fe_xZn_{1-x}F_2$

O composto FeF_2 é um antiferromagneto cujos íons de ferro encontram-se dispostos nos vértices de uma rede tetragonal de corpo centrado (Fig. 1.1) e constitui uma realização experimental de um sistema Ising tridimensional, onde os spins estão orientados ao longo de um eixo de fácil magnetização do cristal (eixo c). Tal fato se deve essencialmente 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 [1]. De fato somente para campos magnéticos altíssimos ($H \gtrsim 35T$) a simetria Ising do sistema é quebrada, e uma fase *spin-flop* se origina a baixas temperaturas. Nesta fase os spins apresentam componentes transversais (ao eixo fácil) não nulas [71]. Do ponto de vista estrutural ((Fig. 1.1)), o FeF_2 é isomorfo aos compostos ZnF_2, MnF_2 e CoF_2. A campo magnético nulo, o FeF_2 sofre uma transição AF - PM a uma temperatura $T_N = 78.4$K [71, 72]. Montenegro *et al.*

investigaram o composto $Fe_xZn_{1-x}F_2$, varrendo uma larga faixa de concentração de íons magnéticos, variando de $x = 1.0$ até $x = 0.10$, onde $x_p \approx 0.24$ representa a concentração de percolação magnética de primeiros vizinhos. Tal composto apresenta um complexo e diversificado diagrama de fase, incluindo a fase VS. As propriedades deste sistema têm atraído o contínuo interesse do nosso grupo, sendo os primeiros trabalhos experimentais e numéricos publicados em 1988 [11, 61] e 1995 [67], respectivamente.

O Hamiltoniano para o cristal a campo nulo deve inicialmente ser escrito na forma Heisenberg como [1]

$$H = \sum_i H_s^i + \sum_l \sum_{<m,\delta_l>} J_l \mathbf{S_m} \cdot \mathbf{S_{m+\delta_l}} + H_{dd}, \tag{1.1}$$

onde o primeiro termo,

$$H_s^i = -DS_{iz}^2 + E(S_{ix}^2 - S_{iy}^2), \tag{1.2}$$

leva em conta os efeitos de campo cristalino e o acoplamento spin-órbita dos íons Fe^{+2}, acarretando forte anisotropia de íon único do sistema ($D/E \sim 10$) e permitindo que os spins $S = 2$ se alinhem em uma direção única ($S_z = \pm 2$), tornando tal composto uma realização experimental do modelo de Ising.

O segundo termo é o termo de troca, onde l é somado sobre os diferentes tipos de vizinhos, e $< m, \delta_l >$ 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. 1.1. Já o terceiro termo da Eq. (1.1) representa a interação magnética dipolo-dipolo. No trabalho de Hutchings *et al.* [1] foram determinados $D = (6.46 \pm 0.29) cm^{-1}$ e os acoplamentos

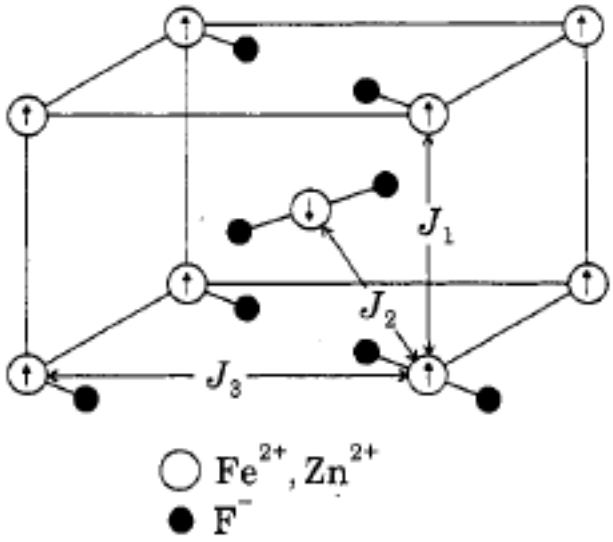

Figura 1.1: Célula unitária do $Fe_xZn_{1-x}F_2$, ilustrando as interações de troca dos três primeiros vizinhos entre os íons de Fe^{+2} ou Zn^{+2} [1].

de primeiro vizinho: ao longo do eixo c (J_1), entre subredes (J_2) e ao longo do eixo a (J_3), cujos valores são $J_1 = (-0.048 \pm 0.060)$ cm^{-1}, $J_2 = (+3.64 \pm 0.10)$ cm^{-1} e $J_3 = (+0.194 \pm 0.060)$cm^{-1} ($1cm^{-1} = 0.1239$ meV).

A desordem estrutural no composto FeF_2 é introduzida através da substituição aleatória de íons magnéticos por átomos que possuam momentos magnéticos nulos, como é o caso do íon Zn^{+2}, devido ao isomorfismo com os íons de Fe^{+2}. Experimentalmente o antiferromagneto diluído $Fe_xZn_{1-x}F_2$ tem sido um dos sistemas magnéticos aleatórios mais estudados, em parte devido ao rico comportamento magnético no diagrama de fases (T, H, x), como podemos ver na Fig. 1.2.

Montenegro e colaboradores [73, 62] realizaram um intenso estudo na tentativa de mapear o diagrama de fase desse composto, mostrando inclusive que para $x < 0.31$ o mesmo apresenta características de vidro de spin. Na Fig. 1.2, é ilustrado um

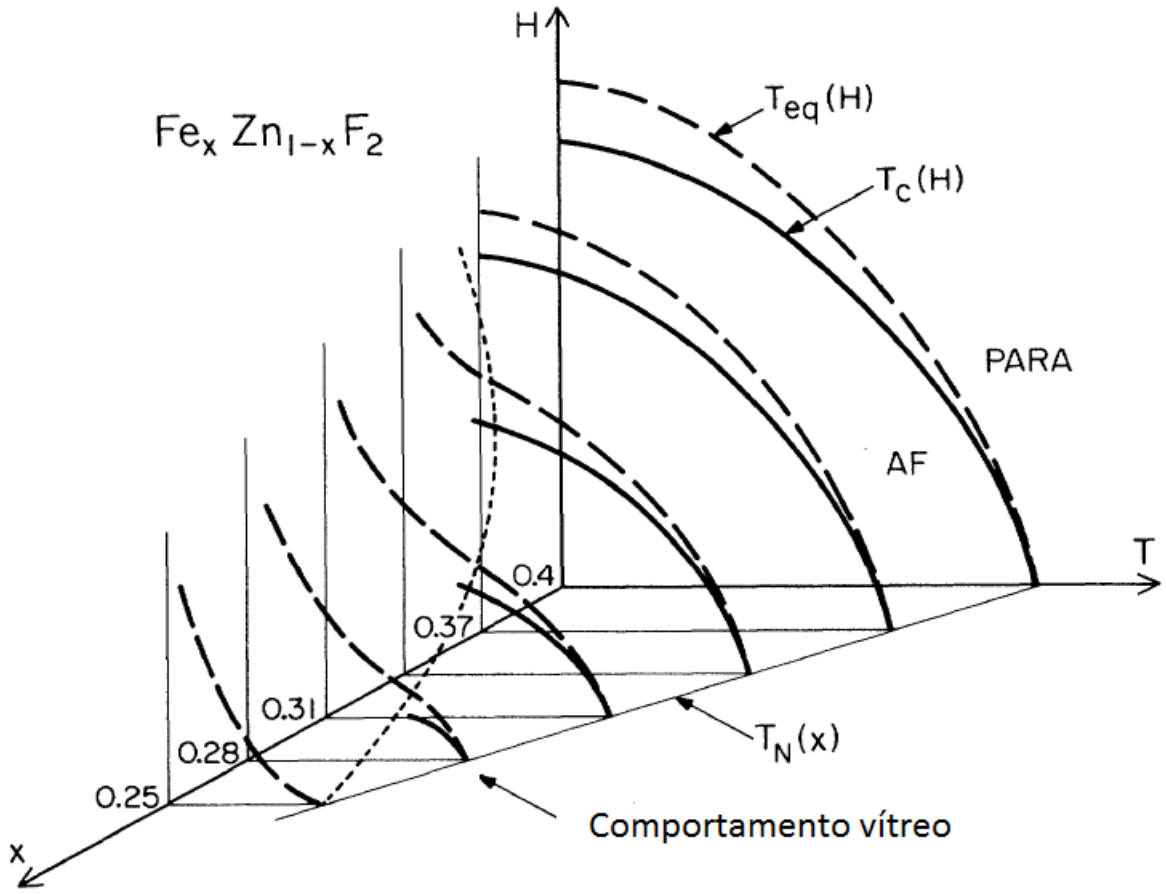

Figura 1.2: Diagrama de fases do composto $Fe_xZn_{1-x}F_2$ em função de T, H e x [2, 3, 4, 5].

diagrama de fases esquemático do composto $Fe_xZn_{1-x}F_2$ 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 $0.31 \lesssim x < 1.0$ e $H = 0$; fase RFIM a $0.31 \lesssim x < 1.0$ e $H \neq 0$) se extingue em $x \gtrsim x_p$. De fato, para concentrações menores (porém superiores a $x_p \simeq 0.24$, concentração de percolação levando em conta os primeiros vizinhos, 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 dos experimentos observa-se uma linha de irreversibilidade, a $H \neq 0$. Nesse regime a linha da fase VS (previsões de campo médio), ou de uma fase vítrea metaestável, linha de irreversibilidade, $T_i(H)$, ou linha de *Almeida-Thouless*, AT [25], marca a fronteira para a fase PM. Observa-se que para $x \geq 0.3$ tal linha possui concavidade oposta à da fase VS, típica do comportamento RFIM; de fato, para concentrações maiores, a mudança de concavidade observada indica um cruzamento (*crossover*) entre os comportamentos RFIM e vítreo para altos campos. Mesmo recentemente, a caracterização mais detalhada dessas fases ainda tem revelado interessantes propriedades [63, 74].

O sistema puro ($x = 1.0$), a campo nulo, apresenta a ordem de longo alcance AF (LRO AF - *long-range order AF*) para temperaturas abaixo da temperatura de Neél, $T_N = 78.4$ K. Nesta fase, a estrutura bcc do composto está dividida em duas subredes perfeitamente distribuídas: uma com todos os spins para cima e a outra com todos os spins para baixo. No regime fracamente diluído ($x \approx 1.0$) a ordem AF de longo alcance permanece, tal que a magnetização de subrede obedece a relação $M_s(x) = xM_s(1.0)$, e a classe de universalidade passa a ser do tipo *Random Exchange Ising Model - REIM* [75]. Quando um campo magnético é ligado neste regime uma mudança de classe de universalidade acontece, com o REIM dando lugar

à fase RFIM (*Random Field Ising Model*), como previsto por Fishman e Aharony [76], e Cardy [77]. Neste contexto, a linha crítica $T_c(H)$ apresenta uma concavidade típica para baixo, fazendo a fronteira entre as fases de ordenamento AF e PM.

O diagrama de fases mostrado na Fig. 1.2 [62, 73] ilustra esquematicamente mudanças relevantes no sistema quando a diluição aumenta (isto é quando x diminui). Para diluições moderadas, existe uma concentração típica $x \simeq 0.80$ [78] abaixo da qual o cenário de cada subrede com todos os spins perfeitamente alinhados não pode ser mais mantido. Neste caso, domínios locais e finitos com orientações reversas AF começam a nuclear dentro das subredes. Tais clusters reversos, alteram as magnetizações de subrede presentes de forma que $M_s(x) < xM_x(x = 1.0)$, em contraste com o regime de baixa diluição. O ordenamento de longo alcance permanece AF, com concavidade das curvas $T_c(H)$ e $T_{eq}(H)$ para baixo. A linha de estabilidade $T_{eq}(H)$ é determinada como a temperatura abaixo da qual as magnetizações ZFC e FC são distintas para um H fixo e marca o comportamento do sistema para baixas temperaturas, como podemos visualizar na Fig. 1.4.

Para diluições mais altas $x \lesssim 0.37$ uma alteração considerável na concavidade da curva de $T_{eq}(H)$ indica uma transição da fase RFIM para um estado termodinâmico metaestável vítreo para altos valores de H. A linha $T_{eq}(H)$ no regime de campos altos é bem descrita pelo expoente do tipo VS, $\phi = 3.4$, como mostra a Fig. 1.3(b) para o composto $Fe_{0.31}Zn_{0.69}F_2$ [2]. Mencionamos que tal transição tem sido investigada tanto do ponto de vista analítico [79] quanto numérico [80, 81]. Por exemplo, os autores Nowak, Usadel e Esser caracterizaram, via simulação MC o estado termodinâmico vítreo metastável induzido pelo campo, sem nenhuma ordem AF de longo alcance (LRO AF), no contexto de um modelo DAFF (Antiferromagneto Diluído em um Campo - Diluted Anti-Ferromagnet in a Field em inglês) longe

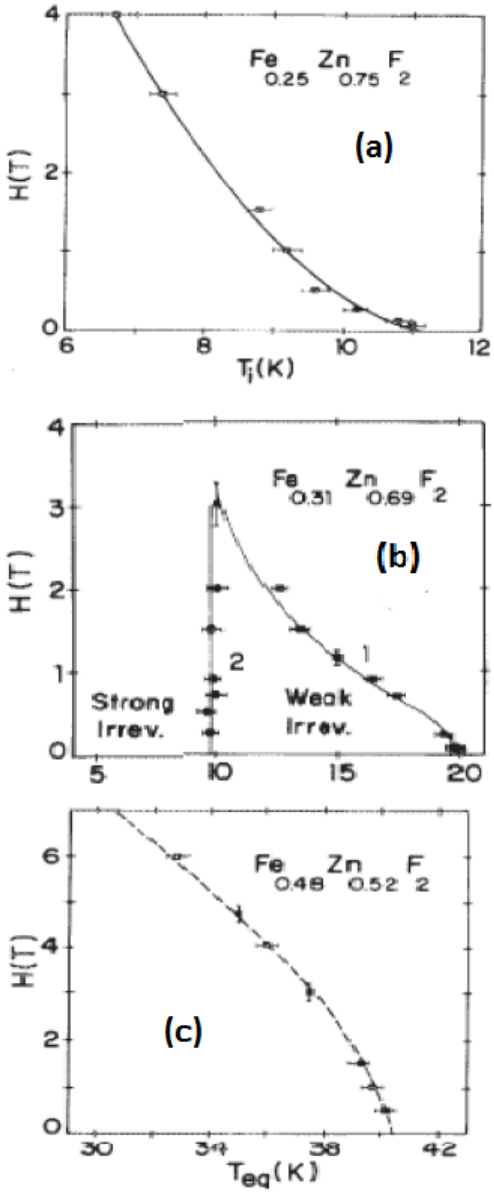

Figura 1.3: Curvas de irreversibilidade do composto $Fe_xZn_{1-x}F_2$ obtidas por Montenegro *et. al* [2, 3, 4, 6, 7, 8] para (a) $x = 0.25$, (b)$x = 0.31$ e (c)$x = 0.48$.

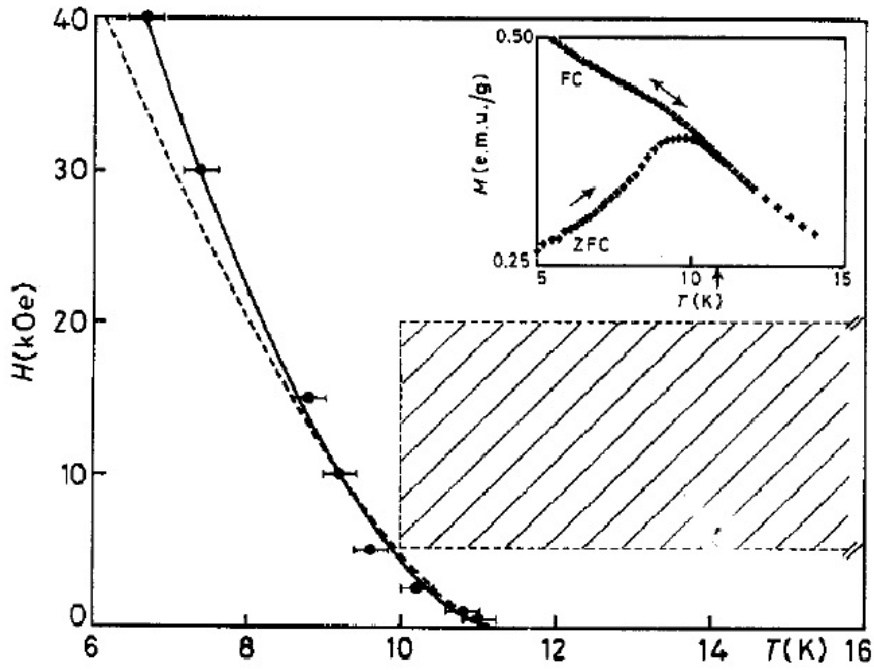

Figura 1.4: Dependência da temperatura de irreversibilidade $T_i(H)$ com H. A linha cheia indica o ajuste com $[T_i(H) - T_i(0)]/T_i(0) = -AH^{2/\phi}$, onde $A = 0.18(T)^{(2/\phi)}$ e $\phi = 3.4$. A linha tracejada é a linha de Almeida-Thouless com $\phi = 3$. O destaque mostra a dependência da magnetização nos protocolos ZFC e FC do composto $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ para $H = 500$ Oe[9].

da percolação ($x = 0.50$).

Do ponto de vista experimental, a Fig. 1.5 [10] mostra a temperatura de Néel, T_N, como uma função da concentração magnética x. Os dados apontam para $x_p \approx 0.24$ como a concentração magnética abaixo da qual a LRO AF se mantém, isto é, $T_N = 0$ para $x < x_p$. A linha sólida representa o ajuste para um modelo que possui apenas a contribuição de J_2. O bom acordo com o dado empírico confirma nossa afirmação a respeito do papel de J_2 sobre x_p.

Com a concentração se aproximando da concentração de percolação x_p, a nu-

cleação de domínios AF reversos progressivamente destrói a LRO AF. Neste contexto, quando $x \to x_p \simeq 0.24$, apenas a linha de estabilidade $T_{eq}(H)$ sobrevive, com concavidade para cima caracterizada pelo expoente AT $\phi = 3.4 > 2$, típico de sistemas VS. Em particular, para a concentração magnética $x = 0.25$ na vizinhança de x_p, as subredes perdem sua identidade por completo, tal que a magnetização média de cada subrede é essencialmente zero. Para $x = 0.25$ este estado metaestável com dinâmica lenta, apresentando domínios fractais de ordem reversa local AF, exibe propriedades críticas típicas de VS, como veremos adiante.

Conforme mencionado, há evidências empíricas sobre a existência de um estado metaestável vítreo com comportamento do tipo VS para campos nulos e também para $H \neq 0$ no composto $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$. Além da linha AT mostrada na Fig. 1.6 [11, 9], também destacamos o comportamento crítico no *scaling* da susceptibilidade não linear, considerada como uma das principais características de VS canônico:

$$\chi_{nl} = H^{2/\delta} f(t/H^{2/\phi}), \tag{1.3}$$

onde $t \equiv \frac{T-T_f}{T_f}$, com $T_f = 10.0 \pm 0.2$K, a temperatura de congelamento a campo nulo e $f(x)$ como uma função de escala que se aproxima de uma constante quando $x \to 0$ e tende a $x^{-\gamma}$ quando $x \to \infty$. Neste ponto gostaríamos de chamar atenção para a temperatura de congelamento obtida previamente via resultados de Monte Carlo (MC): $T_f = 9.5 \pm 0.5$K [12].

Outra característica da susceptibilidade linear (Fig. 1.7) [11, 9] é a presença de um pico em T_f ao longo do eixo de fácil magnetização (eixo Ising) e nenhuma particularidade na direção perpendicular. Medidas durante o ciclo de histerese para baixas temperaturas (Fig. 1.8) e magnetização remanente (TRM e IRM) (ver Fig. 1.9) obtidos de [11, 9] também são assinaturas da resposta de uma fase VS típico

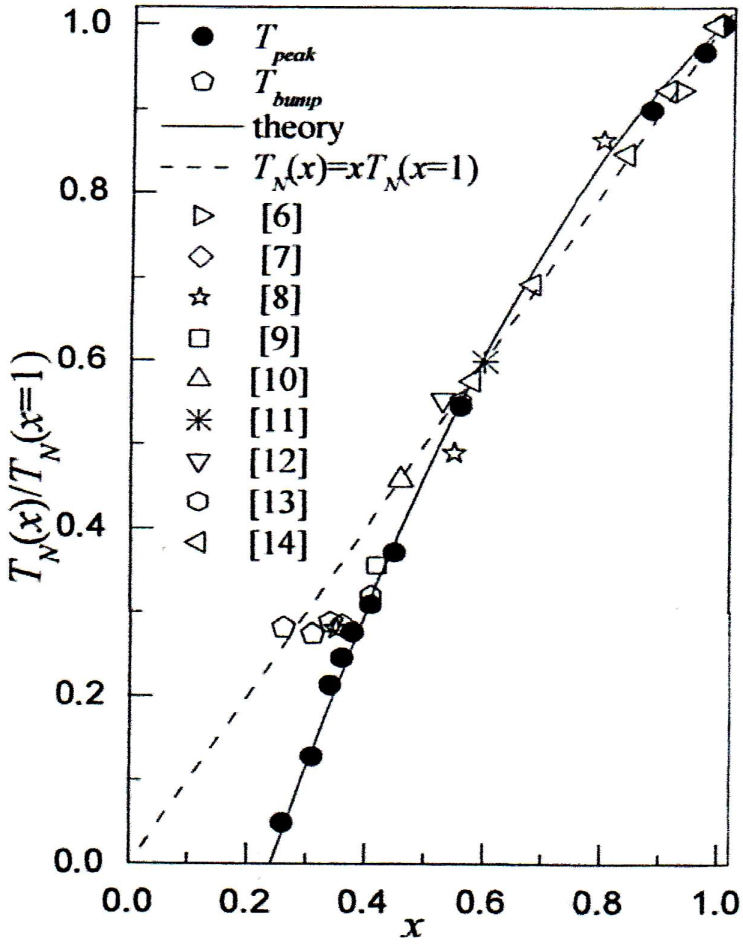

Figura 1.5: Diagrama de fases $T_N(x)$ [10].

com H. Em contraste, com a presença da ordem AF de longo alcance em $x = 0.48$, a medida de IRM é nula; TRM é uma função que cresce monotonicamente com H e não verifica-se nenhum *loop* na histerese em baixas temperatura [11, 9].

Do ponto de vista microscópico, resultados de MC com $H = 0$ mostram o aparecimento da fase metaestável VS na vizinhança de x_p, com domínios fractais

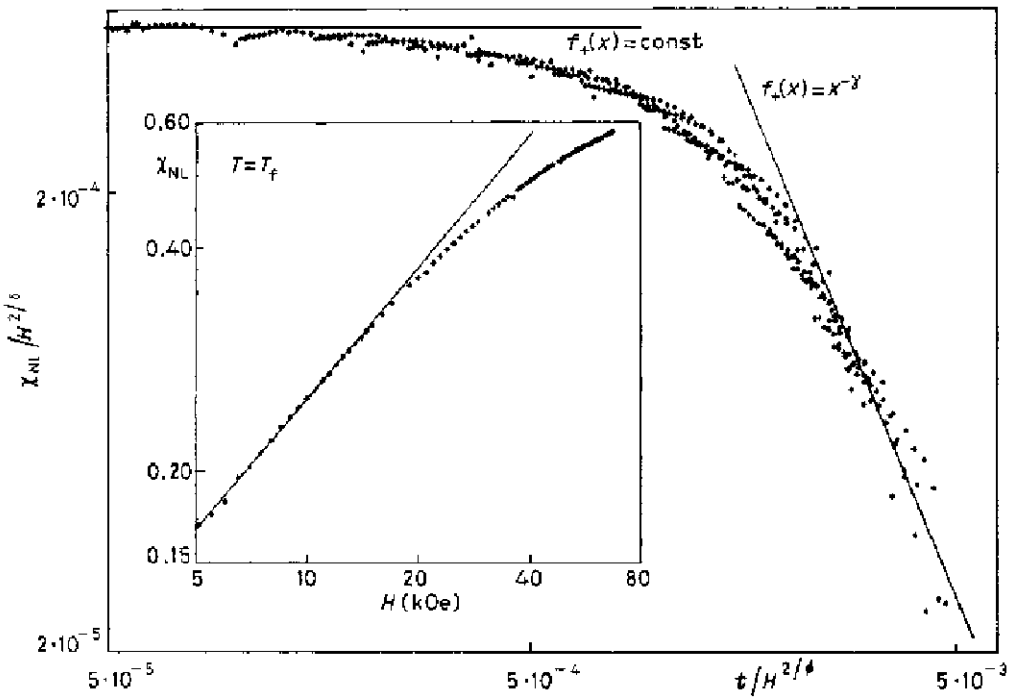

Figura 1.6: *Scaling* da susceptibilidade não linear (χ_{nl}) para $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ na forma $\chi_{nl} = H^{2/\delta} f(t/H^{2/\phi})$ [11, 9]

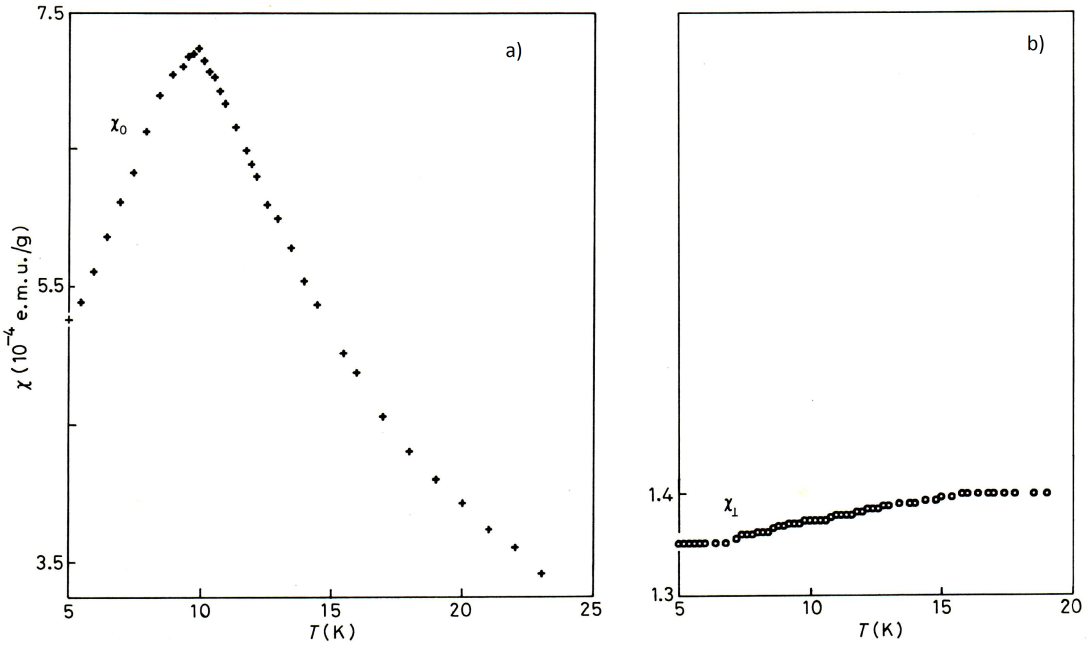

Figura 1.7: (a) Dependência com a temperatura da susceptibilidade inicial $\chi_0 = (dM/dH)_{H\to 0}$ medida para H paralelo ao eixo fácil e (b) a susceptibilidade perpendicular distintas em $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ [11, 9].

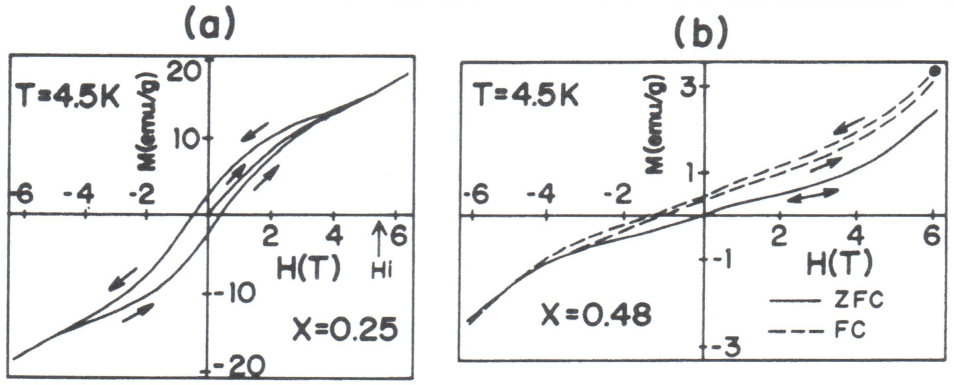

Figura 1.8: Ciclos da histerese magnética para $Fe_xZn_{1-x}F_2$ em $T = 4.5$K: (a) comportamento VS em $x = 0.25$ obtido após o protocolo ZFC; (b) $x = 0.48$, obtido em um procedimento FC. Como esperado em um sistema RFIM, não se observa o *loop* no protocolo FC [11, 9]

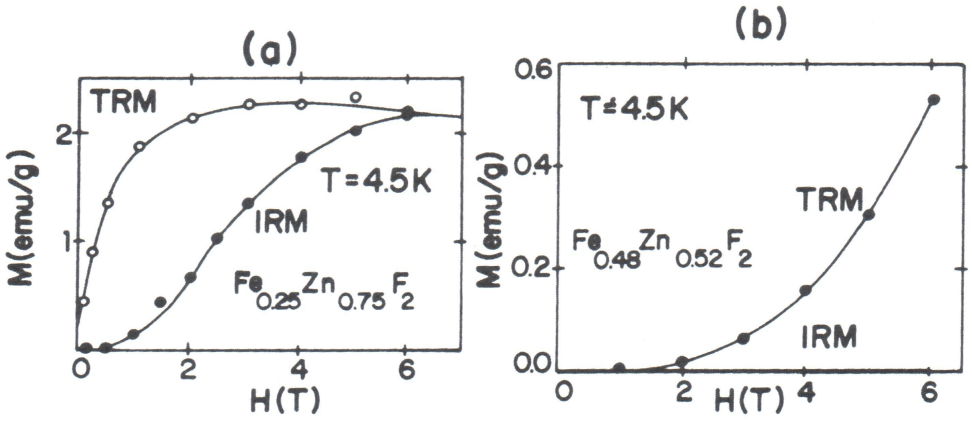

Figura 1.9: Magnetizações IRM e TRM para $Fe_xZn_{1-x}F_2$ em $T = 4.5$K: mostrando o comportamento distinto (a) VS em $x = 0.25$ e (b) $x = 0.48$ RFIM em [11, 9].

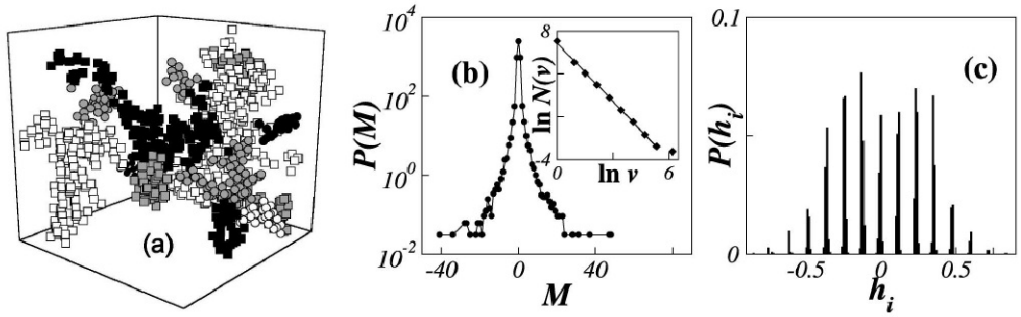

Figura 1.10: (a) Cluster percolante para $T = 8.9$K, com domínios correlacionados compostos por subdomínios AF. Distribuições médias em $T = 2.6$ K (b) da magnetização M de subdomínios AF, e no destaque, do volume v dos clusters correlacionados [linha cheia: $N(v) \propto v^{-\delta}$, $\delta = 1.82$], e (c) do campo local h_i de subrede [12].

de ordem AF local, e a presença de um campo efetivo local competitivo (negativo e positivo). Na Fig. 1.10 [12] esses domínios são mostrados em um gráfico $3D$. Observamos que a grande maioria dos domínios locais AF apresenta uma magnetização nula ou muito pequena, com distribuição fractal de volume $N(v) \propto v^{-\delta}$. Podemos destacar que o expoente obtido da lei de potência $\delta = 1.82 \pm 0.05$ é essencialmente o mesmo ($\delta = 1.8 \pm 0.3$) encontrado por Esser *et. al* [80] para a fase vítrea induzida por H para diluições moderadas, $x = 0.50$, via simulação MC baseada no hamiltoniano DAFF.

A concentração $x = 0.25$ possui características especiais no antiferromagneto $Fe_xZn_{1-x}F_2$ dada a sua proximidade com o limiar da percolação $x_p \backsimeq 0.24$. De fato, os trabalhos realizado por Montenegro e colaboradores [11, 67] mostraram evidências experimentais do comportamento típico vidro de spin do antiferromagneto diluído $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ a baixas temperaturas [1]. 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) [82]. Os pontos que definem a linha de irreversibilidade $T_i(H)$ (ou $T_{eq}(H)$) são mostrados na Fig. (1.4) e são determinados a partir da temperatura abaixo da qual as curvas de magnetização ZFC e FC tornam-se distintas. Durante um longo tempo os mecanismos microscópicos responsáveis pela indução da fase vidro de spin não foram totalmente compreendidos, sendo sugerido [82] que tal fase se devia à competição entre as interações de curto alcance, implicando na alteração no balanço das interações de troca devido à grande diluição.

Utilizando a simulação de campo médio sítio a sítio, Raposo e colaboradores [67] mostraram a importância da frustração existente no sistema $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$, 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 [83] e de dinâmica da susceptibilidade a.c., $\chi_{a.c.}$ [44]. Em particular, a análise dos dados de $\chi_{a.c.}$, realizada por Jonason e colaboradores [44], indicou a ausência de uma dinâmica crítica próxima a T_f. Entretanto, uma nova análise de dados corroborou o resultado anterior de Rezende *et al.* [61], 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 [84, 64, 85, 66, 12], usando

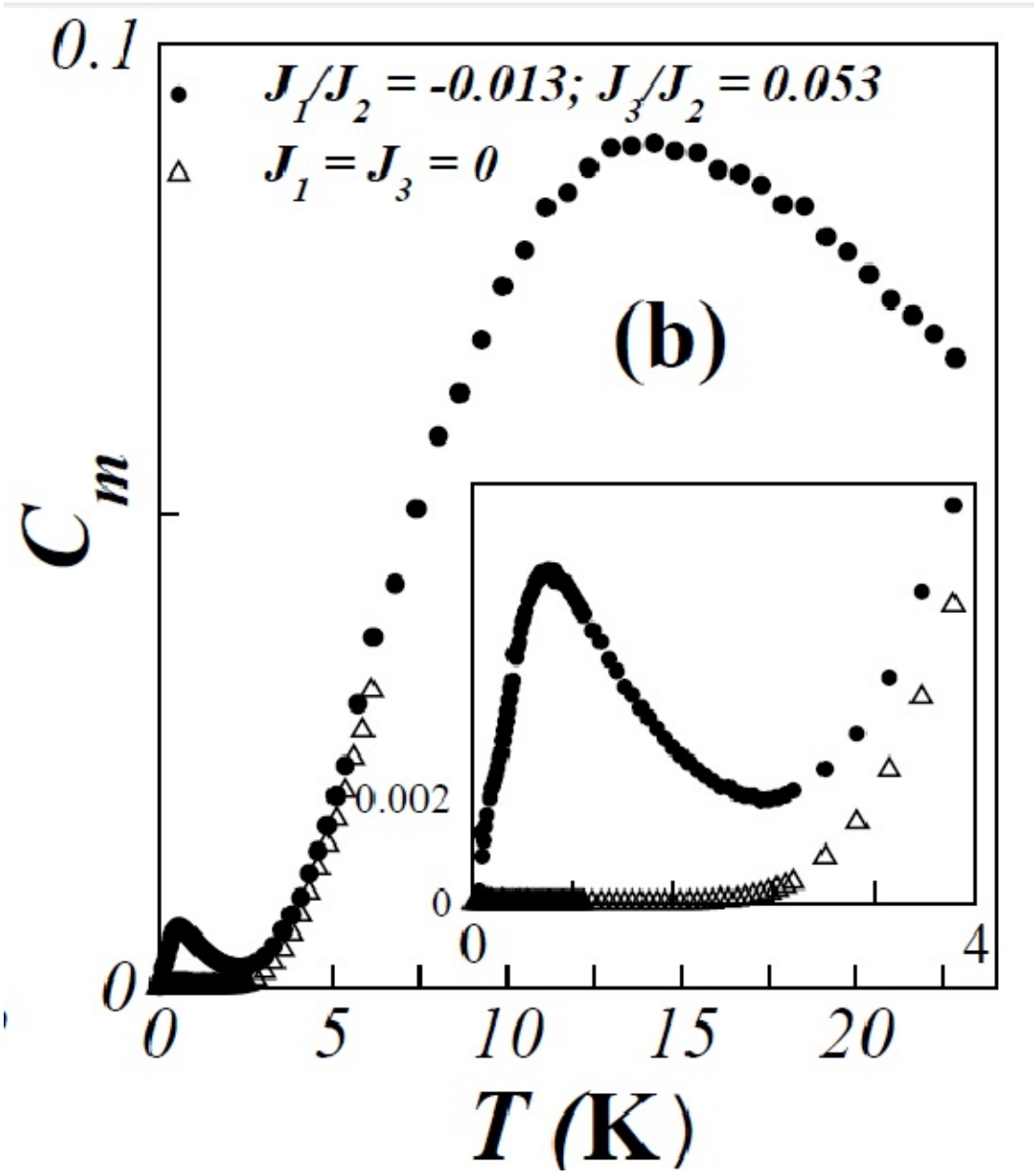

Figura 1.11: Dependência do calor específico C_m para $H = 0$, tais resultados foram obtidos via simulação MC. As situações com frustração ($J_1/J_2 = -0.013$ $J_3/J_2 = 0.053$) e sem frutração ($J_1 = J_3 = 0$) estão indicadas [12]

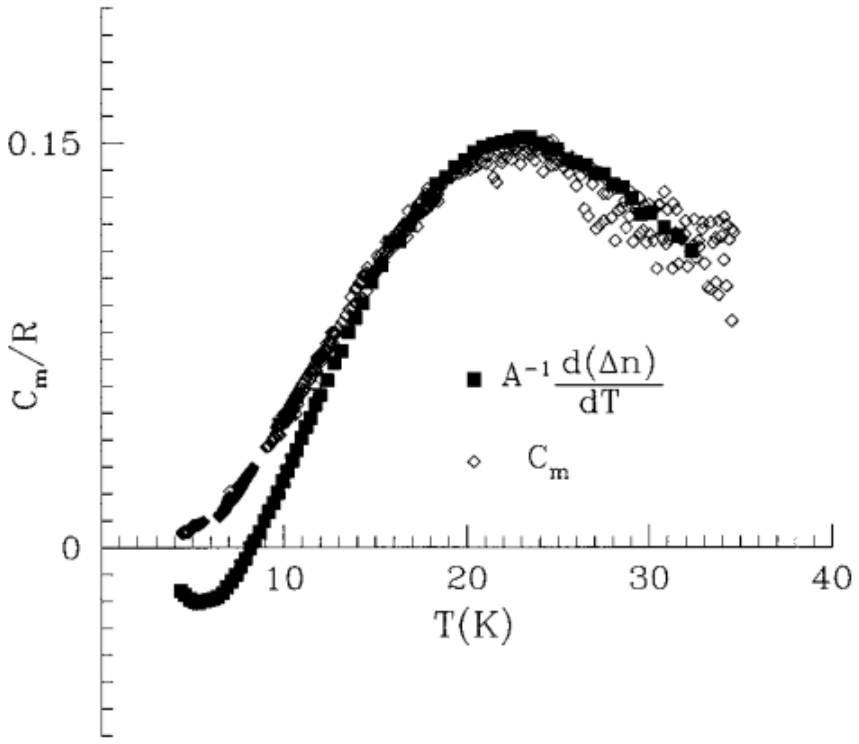

Figura 1.12: Calor específico magnético vs temperatura no VS isolante $Fe_{0.24}Zn_{0.76}F_2$ [13]

simulação MC (Fig. 1.11), evidenciou-se o comportamento típico de um vidro de spin genuíno, deixando claro a ocorrência da fase vidro de spin mesmo sem o termo de frustração J_3, sugerindo que a ausência de flutuações térmicas na abordagem dada por [86] superestimou a influência da pequena interação de frustração. Através do comportamento do calor específico ficou evidente que a frustração só apresenta algum papel relevante para baixíssimas temperaturas, $T \lesssim 1$K, como pode ser visto na medida experimental do calor específico [13] Fig. 1.12.

A análise microscópica do sistema $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ indica que a fase vidro de spin a baixas temperaturas é caracterizada pela presença de infinitos aglomerados finitos,

no limite termodinâmico, com ordem interna AF, separados por paredes de domínios e fortemente correlacionados no tempo e espaço, com magnetização virtualmente nula. O estudo da dinâmica de campo nulo, com base na magnetização remanente e função de autocorrelação temporal, realizado por Barbosa *et al.* [12] (ver Fig. 2.1), mostrou que tal composto apresenta todas as características observadas em vidros de spin de curto alcance e em acordo com o modelo de *droplets* próximo à percolação.

Na dissertação de mestrado de Brito [16], com base em simulações de Monte Carlo, conseguiu-se reproduzir, em bom acordo com os resultados experimentais obtidos por Montenegro *et.al.* [82], a dependência da história do procedimento adotado para o composto $Fe_xZn_{1-x}F_2$ em $T < T_f$. Foram realizadas medidas de ZFC e FC que permitiram a determinação da curva de irreversibilidade deste sistema. Além disso, detalhou-se a formação de platôs na curva de histerese.

No Capítulo 2, 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.

A respeito dos nossos estudos da dinâmica na presença de um campo magnético H, destacamos que os resultados das magnetizações TRM e IRM via simulação MC são de fato novos [16]. Nas simulações prévias [87] o tempo de decaimento da magnetização remanente foi estudado apenas para estados iniciais com todos os spins saturados. Nesta tese apresentamos resultados para estados iniciais com spins aleatórios. Considerando a dependência temporal da função de autocorrelação temporal de spin, também estudada em [14], novas conclusões relacionadas ao colapso dos dados de *scaling* foram obtidas em conexão com os valores de campo associados com a linha AT.

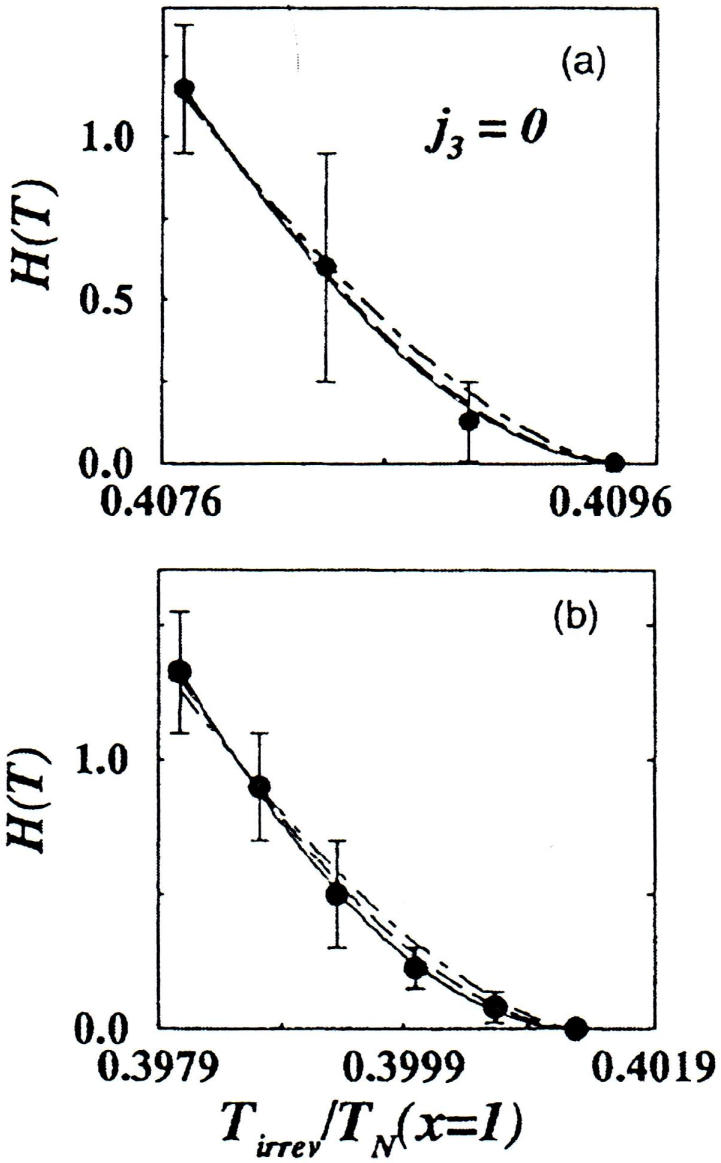

Figura 1.13: Irreversibilidade AT induzida por campo: (a) linhas tracejadas indicam a estimativa experimental do expoente de transição $\phi \approx 3.4$, a linha pontilhada indica a curva AT teórica com $\phi = 3.0$. As linhas cheias mostram os melhores *fittings* (a) na ausência da interação de frustração J_3, $\phi = 3.6 \pm 0.9$; (b) com frustração, $\phi = 3.8 \pm 0.6$.

Na ausência das flutuações térmicas a pequena interação de frustração J_3 exerce um importante papel em $H = 0$, mesmo para $T \gtrsim 1$ K. Na simulação LMF os resultados apontam para uma fase VS a campo nulo induzida por J_3. No contexto LMF a presença dos campos magnéticos $H/J_2 \gtrsim H_3 J_2 \equiv xz_3 S J_3/J_2 \simeq 0.11$ enfraquece o efeito de J_3, tal que os resultados de LMF com ou sem a presença de J_3 neste intervalo de campo são essencialmente indistinguíveis. Podemos verificar este fato na curva AT obtida via LMF com e sem J_3, como podemos ver na Fig. 1.13 [69].

1.2 Métodos e Modelos

Neste trabalho realizamos, via simulação computacional, um estudo do sistema Ising $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$, no qual nos aproximamos o máximo possível das medidas experimentais, ao mesmo tempo que tentamos compreender as propriedades microscópicas que relacionam o comportamento do sistema e as previsões teóricas dos VS Ising na presença de um campo magnético uniforme. A seguir apresentamos os procedimentos computacionais adotados neste trabalho: simulações Monte Carlo e campo médio sítio-a-sítio.

Considera-se o hamiltoniano de um sistema antiferromagnético de spins Ising ($S_i = \pm 1$) diluído aleatoriamente [20, 62] numa rede bcc de N sítios:

$$\mathcal{H}(S) = \sum_{<i,j>,l} J_l \epsilon_i \epsilon_j S_i S_j - H \sum_i \epsilon_i S_i, \tag{1.4}$$

onde o símbolo $< i, j >, l$ indica soma sobre todos os pares de vizinhos dos tipos $l = 1$, $l = 2$ e $l = 3$ interagindo respectivamente com energia de *exchange* [1] $J_1 = -0.048$ cm^{-1},$J_2 = +3.64$ cm^{-1} e $J_3 = -0.194$ cm^{-1}, como mostra a Fig.

1.1, 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 $\overline{\epsilon} = x = 0.25$ em cada subrede, no caso do estudo na fase VS. Na preparação das amostras, optamos por uma descrição em que flutuações no número dos sítios ocupados são eliminadas.

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 troca foram normalizadas pela interação inter-subredes J_2. Para a conversão, as grandezas apresentadas no texto devem ser multiplicadas por 12.75 no caso da temperatura T em Kelvin e multiplicadas por 9.49 para o campo magnético H em Tesla. O campo efetivo percebido pelos spins é dado por

$$h_i = \sum_{l_1} j_1 \epsilon_{l_1} S_{l_1} + \sum_{l_2} \epsilon_{l_2} S_{l_2} + \sum_{l_3} \epsilon_{l_3} S_{l_3} + h \ , \tag{1.5}$$

onde $j_1 = J_1/J_2 = -0.013$ e $j_3 = J_3/J_2 = +0.053$ [1]. Assim, podemos substituir a representação do hamiltoniano mostrada na Eq. (1.4) por,

$$H = \sum_i h_i S_i, \tag{1.6}$$

sendo i somado sobre todos os N spins da rede. Enfatizamos que nosso estudo numérico é baseado em um modelo microscópico, cujos valores das interações de troca entre os vizinhos mais próximos nas três direções, são tomados do material real.

1.2.1 O método Monte Carlo

Podemos utilizar dois tipos de processos durante 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 variáveis envolvidas é muito superior aos recursos computacionais disponíveis, de modo que, no caso fazemos o uso da simulação estocástica Monte Carlo, cujo processo de medição é realizado sobre as configurações estatisticamente mais relevantes (*importance sampling*) [88].

O valor médio de um observável A, $< A >$, é obtido através da expressão

$$< A >= \sum_{l=1}^{N_E} P_l A_l \ , \tag{1.7}$$

onde N_E indica o número de configurações permitidas ao sistema e P_l é a distribuição de probabilidades do sistema. No caso do modelo de Ising com N sítios, como há duas possibilidades para os valores de spin em cada sítio, e a 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 permance inalterado e é dado pela concentração $x = 0.25$. Assim, P_l neste *ensemble* é dado pelo peso de Boltzmann:

$$P_l = \frac{e^{-\beta E_l}}{\sum_{m=1}^{N_E} e^{-\beta E_m}} \ , \tag{1.8}$$

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. (1.7) estão de acordo com os valores obtidos pela termodinâmica quando o tamanho do sistema N vai ao infinito, ou seja, no limite termodinâmico, $N \to \infty$. Para N grande, torna-se então impraticável utilizar uma fórmula dessa natureza para efetuar cálculos numéricos [89]. Na tentativa de estudar sistemas (necessariamente finitos) via simulação computacional, o método Monte Carlo apresenta-se como uma opção, no qual a média da Eq. (1.7) não é feita sobre todos os possíveis estados e sim somente para os valores mais representativos, fazendo com que $< A >$ possa ser obtida como

$$< A >= \frac{1}{M} \sum_{i=1}^{M} A_i \ . \tag{1.9}$$

O problema consiste em saber as circunstâncias em que o valor esperado da grandeza A pode ser obtido, de forma satisfatória, pela (1.9). O método Monte Carlo responde a esta pergunta de maneira satisfatória, como será visto em seguida. Devemos salientar que existem métodos de extrapolação, tal como o método de escala para tamanhos finitos, os quais permitem a obtenção de valores para quantidades termodinâmicas (limite termodinâmico) com grande precisão.

A idéia do método Monte Carlo [89] 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 o sistema evolui temporalmente, ele tende a ocupar configurações mais próximas do equilíbrio, as quais podem ser utilizadas para a média da Eq. (1.9). Designando por $w(y \to y^{'})$ a probabilidade de transição entre as configurações y e $y^{'}$, pode-se escrever a equação mestra,

$$\frac{\partial}{\partial t}P(y,t) = \sum_{y'}[w(y' \rightarrow y)P(y',t) - w(y \rightarrow y')P(y,t)] \ . \tag{1.10}$$

Depois de percorrer um número suficientemente grande de elementos da sequência, as probabilidades passarão a assumir a forma mostrada na Eq. (1.8). Uma condição suficiente para o equilíbrio é dada pela equação do balanço detalhado,

$$P_0(y)w(y \rightarrow y') = P_0(y')w(y' \rightarrow y) \ . \tag{1.11}$$

Assim, as probabilidades devem ser escolhidas de tal forma que

$$\frac{w(y \rightarrow y')}{w(y' \rightarrow y)} = exp(-\beta\Delta H) \ , \tag{1.12}$$

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

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

1- Algorítmo de Metropolis - Nesse algorítmo 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,

$$F(x) = Min(x,1) \ , \tag{1.13}$$

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 Boltzamnn mostrado na Eq. (1.8); 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,

$$F(x) = \frac{x}{1+x} \ , \tag{1.14}$$

que corresponde a uma probabilidade de aceitação que independe do sinal de ΔH. Esta regra recebe o nome de dinâmica de Glauber. No nosso caso, utilizamos uma outra regra de banho térmico que não necessita de cálculo direto de energia local do spin, mas somente do campo efetivo local (h_i) a que este spin está sujeitos

$$w = \frac{\exp^{2\beta h_i}}{1+\exp^{2\beta h_i}}. \tag{1.15}$$

Escolhe-se uma configuração inicial aleatória do sistema de spins, indicando que o material encontrava-se em sua fase paramagnética, ou seja a $T > T_f$; Selecionam-se os sítios da rede, atualizando-os através do algorítmo de banho térmico. Guarda-se a configuração gerada da forma descrita e escolhe-se seqüencialmente 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 stpng* (MCS)).

Os protocolos utilizados no estudo do sistema $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ serão apresentados com maiores detalhes nos capítulos seguintes. O algorítmo de banho térmico foi empregado em nosso processo de atualização e evolução do sistema.

1.2.2 Campo médio sítio-a-sítio

Nesta seção, apresentaremos o método de simulação campo médio sítio-a-sítio (*local mean field* - LMF) e os procedimentos computacionais empregados neste contexto.

O método LMF é baseado na solução iterativa do conjunto de equações auto-consistentes envolvendo a média térmica de spins,

$$m_i =< S_i >= \frac{\sum\limits_{\{S=\pm 1\}} S_i e^{-\beta x}}{\sum\limits_{\{S=\pm 1\}} e^{-\beta x}} = tanh[h_i/(k_B T)], \tag{1.16}$$

onde h_i, o campo efetivo local, é dado por

$$h_i = -\sum_{i+\delta} J_{i,i+\delta}\epsilon_{i+\delta} m_{i+\delta} + H. \tag{1.17}$$

Dado que os estados obtidos via LMF representam um mínimo local de energia livre, o conceito geral do método consiste em seguir a evolução do sistema ao longo desse mínimo de acordo com mudanças em T e H. Flutuações térmicas não são consideradas nesta aproximação. Observamos que o caráter local das equações iterativas de campo médio, com a presença de flutuações na densidade local, particularmente na vizinhança do limiar da percolação, permite uma descrição muito mais realística das propriedades do sistema, em comparação com o chamado *virtual cristal mean field* - VCMF. De fato, neste último tem-se que $m_i = m$ para todos os spins distribuídos de modo homogêneo na amostra. A abordagem VCMF [67, 68]

não é capaz de captar as particularidades do $Fe_xZn_{1-x}F_2$ conforme discutido com detalhes em [86].

Do mesmo modo que na simulação MC, na simulação LMF o sistema é inicialmente resfriado a partir da fase PM com $T = 1.5T_f$, com pequenas variações de T ($\Delta T = 0.013T_f$). Uma mudança em T é acompanhada de acordo com o critério de convergência [67, 68, 70, 90],

$$\frac{\sum_i [(m_i)_n - (m_i)_{n-1}]^2}{\sum_i [(m_i)_n]^2} \leq 10^{-6}, \tag{1.18}$$

onde o índice n indica a n-ésima interação. Quando uma temperatura T mínima é alcançada, o sistema é aquecido com a mesma variação ΔT, e as medidas são realizadas. A média de desordem é tomada, como em nossas medidas da simulação MC, sobre 32 amostras.

Realizamos medidas da magnetização de sub-rede, $M_s(T, x)$, e do parâmetro de ordem de EA, $Q(T, x)$, definidas por:

$$M_s(T, x) = \frac{2}{N} \sum_i \epsilon_i m_i \tag{1.19}$$

com sítios i tomados sobre uma sub-rede, e

$$Q(T, x) = \frac{1}{N} \sum_j \epsilon_i < S_j^2 >_T m_i \tag{1.20}$$

com sítios j somados sobre a rede inteira. Estas duas quantidades são de suma importância no estudo dos VS, pois através da combinação M_s e Q podemos diferenciar os sistemas nas fases AF ($M_s \neq 0$ e $Q \neq 0$) e VS ($M_s = 0$ e $Q \neq 0$).

Neste trabalho, realizamos pela primeira vez medidas da magnetização M em

função de H no protocolo de histerese para o $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$, através do método LMF, com M dada por

$$M(T) = \frac{1}{N}\sum_i \epsilon_i m_i, \tag{1.21}$$

com sítios i tomados sobre a rede inteira. Nesta simulação fizemos o uso dos mesmos parâmetros e amostras utilizados no mesmo procedimento para MC.

Capítulo 2

Efeitos do Campo Magnético sobre a Dinâmica: Magnetização Remanente, Função de Correlação e *Scaling*

Evidências experimentais [44] sugerem que o composto $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ não apresenta um comportamento termodinamicamente estável na presença de um campo magnético, com decaimento da linha AT para tempos longos.

Para analisar a influência do campo magnético sobre a fase VS, estudamos a dinâmica de não-equilíbrio, via simulação de Monte Carlo, da função de autocorrelação temporal de spins e das magnetizações termo-remanente (TRM) e isotermo-remanente (IRM).

Resultados prévios, via simulação MC a campo nulo [12], mostram a dependência da $M_{rem}(t)$ para diversos valores da temperatura que nosso sistema apresenta car-

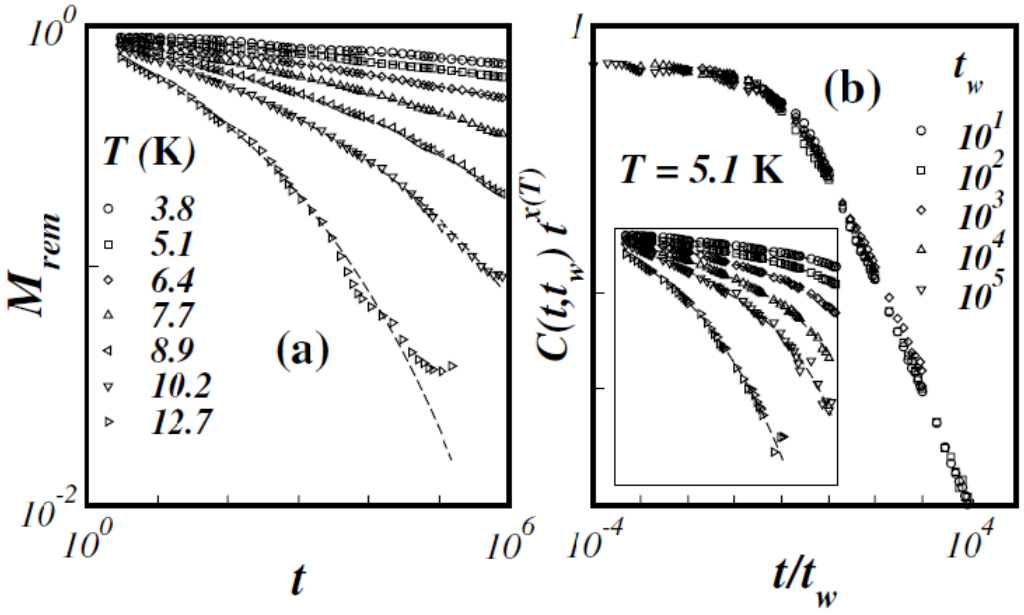

Figura 2.1: (a) dependência temporal da magnetização remanente, com melhores *fittings*: $M_{rem} \propto t^{-\lambda}$ para $T = 3.8$, 5.1 e 6.4 K; $M_{rem} \propto t^{-\lambda}\exp[-bt^{-\beta}]$ para $T = 7.7$, 8.9 e 10.2 K; $M_{rem} \propto \exp[-bt^{-\beta}]$ para $T = 12.7$ K. (b) Figura em destaque: dependência de t da função de autocorrelação para $T = 5.1$ K e $t_w = 10^a$, a =0,1,...5, com *fitting* $C \propto exp[-\omega t^{-\lambda(T)}]/t^{x(T)}$. O colapso das curvas Ct^x vs t/t_w é mostrado para $x(T = 5.1K) = 0.03$ [12].

acterísticas de uma fase VS genuína: abaixo de T_f a dinâmica congelada exibe um comportamento do tipo lei de potência; próximo a T_f a dinâmica passa a ser uma combinação entre lei de potência e uma exponencial esticada; e na fase PM a dependência temporal passa a apresentar um decaimento rápido exponencial, como podemos verificar na Fig. 2.1(a). Para a função de autocorrelação temporal da Fig. 2.1(b) observa-se o colapso dos dados para $T = 5.1$ K para $t_w = 10^a$, com a = 0,1,...5, e $H = 0$.

2.1 Dinâmica de crescimento de domínios

Durante a evolução temporal de um VS em direção ao equilíbrio, ocorre a formação e o crescimento de domínios [91]. Para sistemas puros, distantes da região crítica, o tamanho linear típico $L(t)$ desses domínios cresce, em geral, segundo uma lei de potência [91]:

$$L(t) \backsim t^n, \tag{2.1}$$

onde n depende da dimensionalidade do parâmetro de ordem. Em sistemas Ising, o tamanho típico $L(t)$ pode assumir a lei de crescimento LAC (Lifschitz-Allen-Cahn) [92, 93], $L^2 \backsim t$, ou seja, $n = 1/2$. De um modo 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:

$$t = t_0 \exp[\Delta F(L)/k_B T], \tag{2.2}$$

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

Um grande desafio em sistemas desordenados é calcular $\Delta F(L)$, ou seja, determinar a forma com que $\Delta F(L)$ escala com $L(t)$ [91]. A desordem inserida em sistemas puros, em geral, aumenta as barreiras de energia existentes nas interfaces dos domínios. O interesse consiste na compreensão de como as barreiras de energia são afetadas pela presença de desordem no sistema. No modelo de *droplets* convencional para VS [30, 29], ou seja, longe da concentração 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:

$$\Delta F(L) \propto L(t)^{\Psi}, \tag{2.3}$$

onde Ψ é o expoente que descreve como as barreiras de energia variam com a escala de comprimento. Porém, no limiar da percolação, $x \simeq x_p$, o comportamento de ΔF com $L(t)$ passa a assumir uma dependência logarítmica, resultando em [18]

$$\Delta F(L) \propto \ln(L(t)/L_0). \tag{2.4}$$

Assim, utilizando a lei de Arrhenius (2.2), tem-se que

$$\Delta F(L) \sim k_B T \ln(t/t_0), \tag{2.5}$$

implicando, portanto,

$$L(t) \sim [k_B T \ln(t/t_0)]^{\frac{1}{\Psi}} \tag{2.6}$$

para a representação de *droplets* convencional [30, 29], e

$$L(t) \sim (t/t_0)^{\frac{k_B T}{C}} \tag{2.7}$$

para $x \simeq x_p$ [94], onde C representa uma constante de proporcionalidade dependente da temperatura.

Ao se aplicar um campo magnético uniforme a energia livre devido ao campo é dada por [30, 29]

$$\Delta F_H(L) \propto H L^{d/2}. \tag{2.8}$$

Portanto, o tamanho máximo típico desses domínios, L_H, é dado, no modelo con-

vencional, por

$$L_H \sim \left(\frac{J}{H}\right)^{1/(d_s/2-y)} . \tag{2.9}$$

A fase paramagnética é caracterizada por um expoente y negativo, a fase VS por um y positivo e T_f para $y = 0$ [18]. L_H é 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 [30, 29],

$$\Delta F_J \sim J L^{d-1} \tag{2.10}$$

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 [30, 29], é

$$L_w \sim [k_B T \ln(t_w/t_0)]^{\frac{1}{\Psi}}, \tag{2.11}$$

e no limiar da percolação [94],

$$L_w \propto (t_w/t_0)^{\frac{k_B T}{C}} . \tag{2.12}$$

2.2 Função de autocorrelação temporal de spins

Uma mudança estrutural fundamental no formalismo teórico empregado no estudo dos VS foi realizada em 1975 quando Edward-Anderson [95] anunciaram para este estado particular um parâmetro de ordem que com dependência temporal. No artigo [95] eles explicam que "Haverá uma orientação de spin que resultará em uma energia potencial mínima, tal que $< S >= 0$. Contudo, há uma temperatura crítica T_c tal que os spins notem a existência deste estado, e então para $T \to 0$ o sistema estabelece o estado fundamental em questão. A representação física é simples porém requer um novo formalismo para expressá-lo."Dessa forma, introduziu-se o conceito de função de autocorrelação temporal de spins para o estudo da dinâmica dos VS.

Através de um estudo de campo médio, EA propuseram um novo parâmetro de ordem dado por

$$q(t_1, t_2) = \langle S_i(t_1) \cdot S_i(t_2) \rangle \ , \tag{2.13}$$

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 [82]. Na fase VS a campo nulo, tem-se que

$$\lim_{|t_1 - t_2| \to \infty} q(t_1, t_2) = q \ > 0, \text{ para } T < T_c, \tag{2.14}$$

$$= 0 \ , T > T_c, \tag{2.15}$$

$$= 1 \ , T = 0. \tag{2.16}$$

2.2.1 *Aging* - Envelhecimento

A propriedade de *aging* é bastante empregada durante o estudo de dinâmica dos VS, e também é encontrada em outros sitemas amorfos ou desordenados, tais como polímeros, supercondutores de altas temperaturas e sistemas ondas de densidade de cargas, onde certas quantidades mostram uma dependência da história [96]. As propriedades de não-equilíbrio de materiais vítreos, rapidamente resfriados abaixo de uma temperatura de congelamento T_g e então envelhecidos isotermicamente, manifestam-se como quantidades de dois tempos (funções respostas, susceptibilidades ou funções de correlação)[96]. O *aging* magnético implica que o sistema é sujeito a um processo de rearranjo contínuo das estruturas de spin para escalas de tempo da ordem do tempo de relaxação do sistema [44].

A função de autocorrelação temporal de spins é definida abaixo

$$C(t+t_w, t_w) = \frac{1}{N}\sum_{i}^{N} \langle S_i(t+t_w) S_i(t_w) \rangle \,, \tag{2.17}$$

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 $t+t_w$, e $< \ldots >$ denota a média sobre as amostras avaliadas. Existem formas alternativas de calcular $C(t, t_w)$. Uma delas pode ser realizada 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 $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ em sua fase VS [84, 12] e que será discutido ainda neste capítulo. 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

$$\chi_{ZFC}(t, t_w) = \frac{1}{NH} \sum_{i=1} N < S_i(t + t_w) > \ , \tag{2.18}$$

onde H é o campo magnético aplicado, de forma que

$$\chi_{ZFC}(t) = \frac{1 - C(t)}{T} \ , \tag{2.19}$$

sendo T a temperatura em que o sistema está termalizado e $C(t) \equiv C(t, t_w = 0)$. Tal relação é válida enquanto $t < t_w$, ou seja no regime de quase-equilíbrio onde o Teorema de Flutuação e Dissipação é válido [97].

2.2.2 Resultados e discussão

A seguir apresentaremos os resultados da dinâmica da função de autocorrelação temporal de spins.

Protocolo de resfriamento *quenched*

Para medidas da função de autocorrelação temporal de spins, utilizamos o protocolo de resfriamento *quenched* descrito a seguir. Nesta simulação, após definidas as matrizes configuracionais nas quais apenas 25% apresentam sítios magnéticos, passamos a garantir que as 32 configurações iniciais de spins terão orientações do tipo *Ising* aleatórias, indicando que o sistema encontra-se na fase PM. Em seguida, aplica-se um campo magnético uniforme H e as amostras são termalizadas em $T = \ 5.1K$, durante os intervalos de tempo $t_w = 10^a$ MCS, com $a = 1, 2, ...5$. Passados t_w (MCS), guardamos todas as configurações $S_i(t_w)$. Para finalizar, retiramos o campo

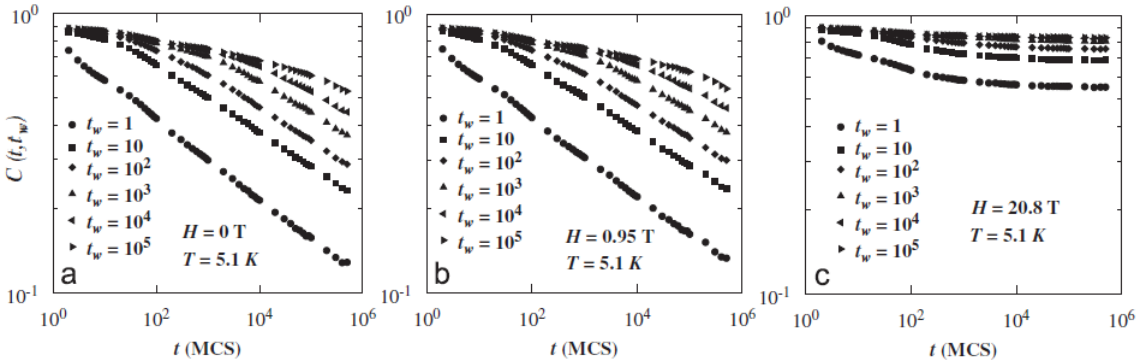

Figura 2.2: Dependência temporal, em MCS, da função de autocorrelação C para diversos valores de t_w, $T = 5.1K$, e (a) $H = 0$, (b) $H = 0.95T$ e (c) $H = 20.8T$ [14].

após o tempo t_w e deixamos o sistema relaxar livremente a campo nulo. A partir desde momento passamos a acompanhar a evolução dinâmica dos spins durante $t = 5.10^5$MCS, quando realizamos as medidas de $S_i(t, t_w)$ e consequentemente de $C(t, t_w)$.

Regime de campos baixos

Consideramos regime de campos baixos quando H apresenta valor $H \lesssim xJ_2$, onde x é a concentração de íons magnéticos. No nosso sistema, $H/J_2 \lesssim 0.25$ ou $2.43T$. Neste regime, ao final de t_w o cenário apresentado pela aplicação do campo será similar ao observado com os domínios a campo nulo. Isso é consequência do fato de que durante t_w o crescimento de domínios L_w não terá alcançado a escala típica de campo,

$$L_H \sim (J_2/H)^{1/(d_s/2-y)}, \tag{2.20}$$

ou seja, $L_w \ll L_H$. Desse modo, os resultados para $C(t, t_w)$ para H pequeno são parecidos com os resultados a $H = 0$, como pode ser visto quando comparamos as

Figs. 2.2(a) e 2.2(b). Nesse regime espera-se pouca ou nenhuma dependência de $x(t, H)$ com t_w. Na Fig. 2.3 é mostrado o ajuste do tipo

$$C(t, t_w) \propto 1/t^{x(T,H)}, \tag{2.21}$$

para $t < t_w$, $T/T_f = 0.4$, $H = 0$ e $H/J_2 = 0.4$, com $x(T, H = 0.0) = 0.04$ e $x(T, 0.4) = 0.03$. Com a evolução temporal, temos que para $t \sim t_w$ os domínios apresentam dimensões $L(t) \sim L_w$, de modo que temos um *crossover* entre os regimes de decaimento lento (quase-equilíbrio, $t \ll t_w$) e rápido (não-equilíbrio ou *aging*, $t \gg t_w$) de $C(t, t_w)$. Para $t > t_w$ o comportamento previsto pelo modelo de *droplets* perto da percolação é do tipo

$$C(t, t_w) \propto 1/t^{\lambda(T,H,t_w)}, \tag{2.22}$$

onde $\lambda(T, H, t_w)$ é o expoente que caracteriza o aging em $C(t, t_w)$ ou seja $\lambda > x$.

Como pode ser visto na Fig. 2.3, 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. Quanto maior o valor de H, maiores as 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. 2.4).

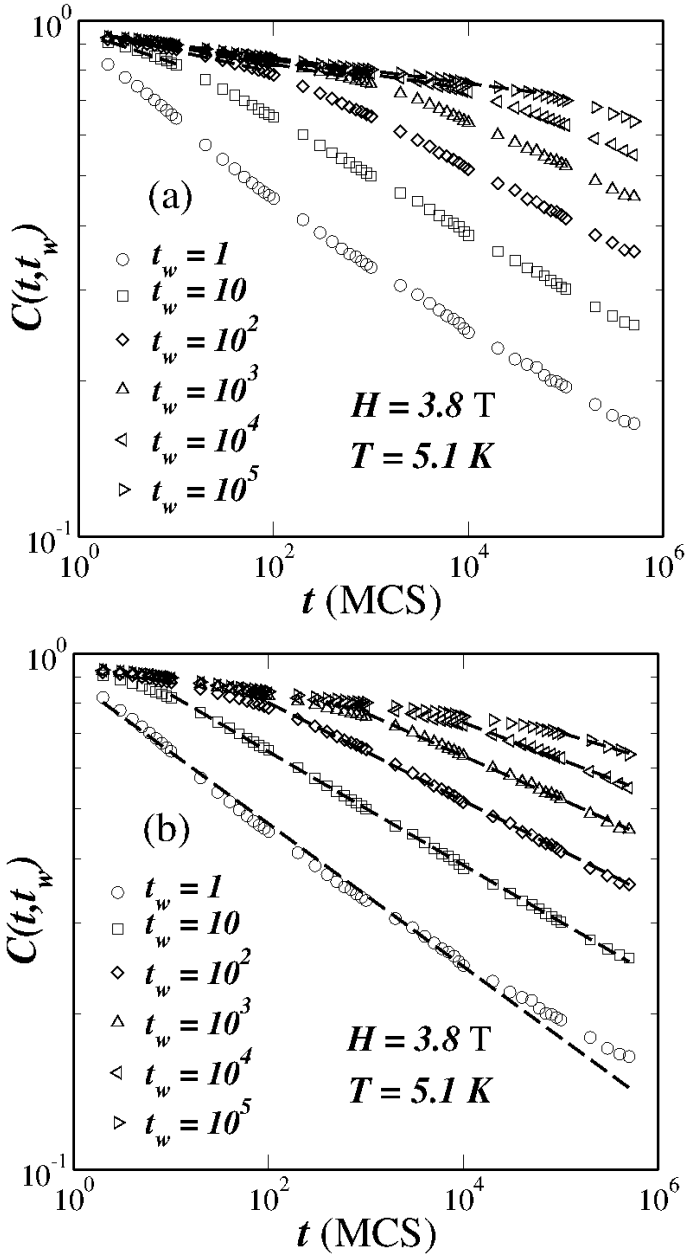

Figura 2.3: Dependência temporal (t em MCS) da função de autorrelação C para diversos valores de t_w, $T = 5.1$K e $H = 3.8$T. As linhas tracejadas são os melhores ajustes para os regimes de (a) quase-equilíbrio, $C \propto t^{-x}$, e *aging*, (b) $C \propto t^{-\lambda}$ [14].

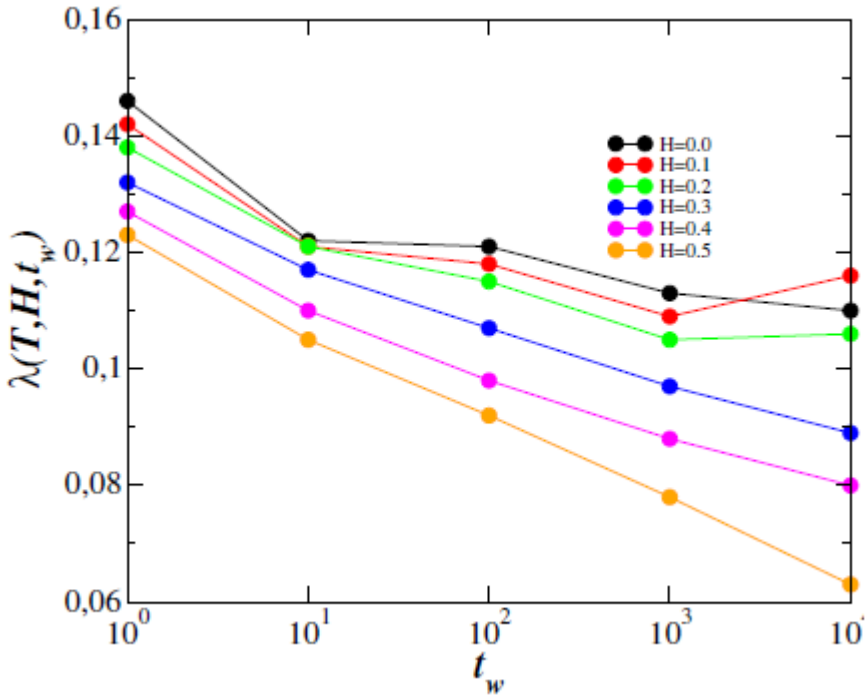

Figura 2.4: Dependência de $\lambda(T, H, t_w)$ com t_w e H.

Regime de campos intermediários

Consideramos aqui campos intermediários aqueles tais que $H \sim xJ_2$. Neste regime, ao final de t_w os estados originados pela presença do campo já começam a notar a influência de H e as medidas de $C(t, t_w)$ apresentam seus primeiros sinais de mudança para t_w pequenos. A partir deste regime passamos a depender de outros protocolos e análises para definir qual o papel do campo magnético sobre a fase VS a campo nulo, dentre eles a curva de AT e a análise microscópica das inversões dos domínios através das medidas de histerese.

Regime de campos altos

Para o regime de campos altos, onde $H \gg xJ_2$, esperamos 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. 2.2).

Em resumo, nas Figuras 2.2 e 2.3 apresentamos os resultados para $H = 0$, 0.95, 3.8 e 20.8T (respectivamente: $H/J_2 = 0, 0.1, 0.4$ e 2.2). Notamos que os resultados para $H = 0$ e campos baixos ($H < xJ_2 \approx 2.4T$) são bastante similares em todas as escalas de tempo investigadas. Para campos intermediários as medidas de C passam a apresentar os efeitos do campo, inicialmente para t_w pequenos, se tornando mais evidentes e com tendência à saturação para campos mais altos, conforme mostrado da Fig. 2.2 (c). No regime de campos baixos identificamos os comportamentos de quase-equilíbrio, $C \sim t^{-x}$ para $t \ll t_w$ com $x(T, H) \approx 0.03 - 0.04$, e *aging*, $C \sim t^{-\lambda}$ para $t \gg t_w$ com $\lambda(T, H, t_w) \approx 0.06 - 0.15$. O comportamento similar da função de autocorrelação em $H = 0$ e H no regime de campos baixos, deve ser uma consequência da grande quantidade de tempo necessária para que a influência de H se torne efetiva [54, 97]

2.2.3 *Scaling*: multiplicativo e aditivo

No artigo de Rieger [98] é mostrado que a magnetização total, $M(t, t_w)$, pode ser decomposta em uma parte quase estacionária, $M_{\rm eq}(t)$, dependente somente de t e em uma parte de *aging*, $M_{aging}(t, t_w)$. Essas decomposições podem ser de dois tipos: multiplicativa, com

$$M(t, t_w) = M_{\rm eq}(t) M_{aging}(t, t_w); \tag{2.23}$$

ou aditiva, assumindo a forma

$$M(t, t_w) = M_{\rm eq}(t) + M_{aging}(t, t_w). \tag{2.24}$$

Tal propriedade da magnetização também é evidenciada pela função de autorrelação temporal. Foi observado no trabalho de Barbosa e colaboradores [12] que a fase VS a campo nulo do sistema $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ apresenta um excelente colapso do tipo multiplicativo para o *scaling* na forma $C(t, t_w)t^{x(T,H)}$ *vs.* t/t_w. Observamos 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, $t \ll t_w$.

Tendo como motivação o trabalho de Picco *et al.* [97], no qual o *scaling* aditivo na forma $C(t, t_w) - At^{-\alpha}$ *vs.* t/t_w foi implementado, obtivemos um bom colapso dos dados para os regimes de campos baixos e intermediários. Entretanto, assim como observado por esses autores [97], um melhor colapso foi obtido em função da variável t/t_w quando escrita na forma $\ln[(t + t_w)/t_w] = \ln(1 + t/t_w)$, uma vez que na escala logarítmica dados para t maiores são "comprimidos"; tal resultado também está de acordo com o modelo de *droplets* em $x \simeq x_p$. Deve-se enfatizar, contudo, que

nenhum colapso dos dados foi conseguido, via *scaling* multiplicativo ou aditivo, no regime de campos altos, $H > xJ_2$. Isso indica que a presença de campos magnéticos intensos afeta de forma significativa a natureza da fase magnética desordenada do sistema a $x = 0.25$.

Na Fig. 2.5 apresentamos os limites de validade para os colapsos aditivo e multiplicativo da função $C(t, t_w)$ para $T = 5.1$K. Como já comentado anteriormente, obtivemos um excelente colapso das curvas em diversas escalas de tempo t_w no regime de campos baixos através de ambos os scalings [14]. Este fato tem sido indicativo de um comportamento vítreo do tipo VS de acordo com o modelo de *droplets* modificado no limiar da percolação. O expoente α obtido no *scaling* aditivo, $\alpha \approx 0.01$ assemelha-se ao encontrado para o modelo de EA-3D [97] e do VS $AgMg_{2.6}$ [99]. Na Fig. 2.5 (b) é notável o fato de que o colapso dos dados através do *scaling* aditivo não acontece mais para valores de campo que se aproximam de $H \approx J_2 \approx 9.5$T, cujo valor encontra-se na região de *crossover* entre a fase PM e a VS na curva de AT, neste regime de temperatura (Fig. 3.7). Para campos maiores a superposição das curvas na tentativa de colapso para diferentes valores de t_w passa a ser cada vez menos possível.

Finalmente, é importante salientar também que as previsões de dinâmica da função de autocorrelação pela solução de campo médio de Parisi [100], com quebra de simetria de réplicas no modelo SK [22] envolvendo a presença de hierarquias e ultrametricidade, não se efetivaram no nosso estudo do sistema $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ 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 deveriam surgir, associada à dinâmica

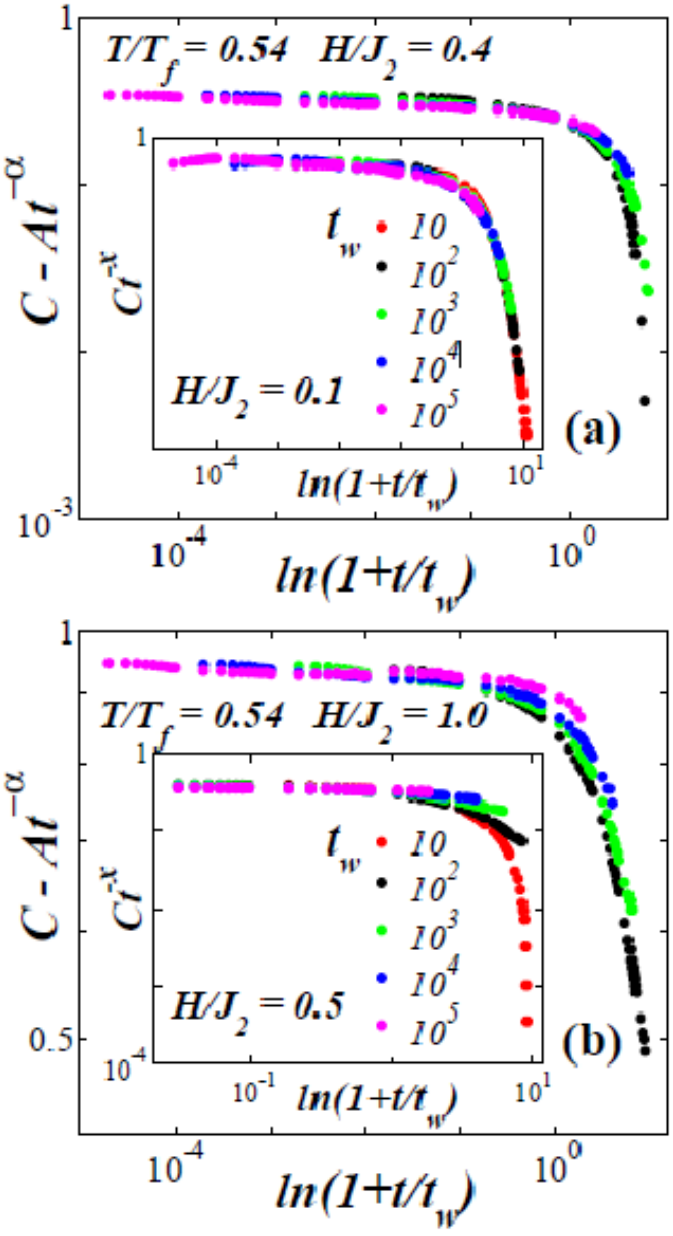

Figura 2.5: (a)Colapso dos dados da função de autocorrelação para $t_w = 10^a$ MCS, $a = 1, 2, ..., 5$, através dos *scalings* aditivo para campos intermediários (H/J_2=0.4) e, no destaque, multiplicativo ($H = J_2 = 0.1$) em $T/T_f = 0.54$. (b) Ausência de colapsos através dos *scalings* aditivo para campos altos ($H/J_2 = 1.0$) e, no destaque, multiplicativo ($H = J_2 = 0.5$) em $T/T_f = 0.54$ [14].

de $C(t, t_w)$, de acordo com a expressão

$$C(t, t_w)_{aging} = \sum_i C_i \left[\frac{f_i(t + t_w)}{f_i(t_w)} \right] \ , \tag{2.25}$$

onde a soma sobre os infinitos termos i se refere aos vários setores de tempos longos [101, 102], e as diferentes funções desconhecidas $f_i(t)$ representam mecanismos físicos que não necessitam estar necessariamente relacionados ao crescimento de domínios [98].

A conexão entre o decaimento temporal do tipo lei de potência observado da função de autocorrelação temporal de spins e a presença de barreiras de energia no limiar da concentração de percolação pode ser compreendida como segue. Do ponto de vista microscópico, devido à proximidade da percolação os spins encontram-se arranjados localmente em domínios AF com orientações reversas de acordo com a vizinhança do cluster. A distribuição $N(\upsilon, t)$ de domínios de volume υ para um tempo t é dada por

$$N \sim \upsilon^{-\delta}, \tag{2.26}$$

um resultado válido para a fase VS a campo nulo com $x = 0.25$ [63, 64, 66, 12, 80], assim como para estados vítreos com altos valores de H de um modelo AF diluído a $x = 0.50$ [80]. Denominando de $c_\upsilon(t, t_w)$ a função de autocorrelação de domínios de volume υ para o tempo t, temos o limite contínuo

$$C(t, t_w) = \int_1^{\upsilon_{máx}(t)} N(\upsilon, t) c_\upsilon(t, t_w) d\upsilon. \tag{2.27}$$

Adicionalmente, considerando a dinâmica de Arrhenius da ativação térmica [96], o tempo típico

$$t \sim exp(F_L/k_BT) \tag{2.28}$$

para domínios de tamanho L superarem as barreiras de energia logarítmicas perto da concentração de percolação, isto é,

$$F_L \sim \Delta ln(L/L_0), \tag{2.29}$$

implica que

$$L \sim L_0 t^{k_BT/\Delta}, \tag{2.30}$$

onde L_0 é um comprimento de escala microscópico e $\Delta(t)$ é a escala de energia livre para a temperatura T. Esse resultado, combinado com a integral acima e a relação de escala fractal $v \sim L^{d_f}$, resulta no decaimento da lei de potência observado para $C(t, t_w)$ com o tempo. Também mencionamos que a consideração de *droplets* padrão [30, 29, 96] para as barreiras de energia,

$$F_L \sim \Delta(L/L_0)^{\Psi}, \tag{2.31}$$

leva a uma função de autocorrelação dependente da variável dinâmica $\ln(t)/\ln(t_w)$, e a um decaimento logarítmico de $C(t, t_w)$ com o tempo. Neste sentido, nossa consideração do colapso dos dados em t/t_w é inconsistente com as ideias da dinâmica no contexto do modelo de droplets original.

Finalmente, o fato de que as barreiras logaritimicas tem sido apresentadas para $H = 0$ e também para baixos valores de H via estudos MC [50, 96, 14, 103] do modelo EA-3D e dinâmica IRM de não-equilíbrio [50] do composto Ising VS $Fe_xMn_{1-x}TiO_3$,

$x = 0.50$. No regime de diluições moderadas, contudo, a justificativa física para tais barreiras se torna menos evidente [50, 96].

2.3 Magnetização Remanente

A magnetização remanente (M_{rem}) pode ser utilizada como uma medida que indica a presença de história magnética na amostra. Para o composto $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ em $T = 4.5$K (abaixo de T_f) foi observada, uma dependência logarítmica de M_{rem} em função do tempo: $M_{rem} \sim S(T, H)ln(t)$, onde t é a variável temporal e S a constante que depende do campo magnético, H, e da temperatura, T. Neste mesmo trabalho [9] foi apresentado um estudo da M_{rem} para os dois procedimentos, ZFC e FC, para $x = 0.25$ e $x = 0.48$.

A histerese observada em $Fe_xZn_{1-x}F_2$, para $x \lesssim 0.30$ determina a existência de uma magnetização remanente abaixo da linha de irreversibilidade $T_i(H)$, que aparece quando o campo é desligado após ter atingido um valor H. Quando realizamos o procedimento ZFC a magnetização é denominada termo-remanente (TRM), enquanto que para o protocolo FC ela é chamada de isotermo-remanente (IRM).

O resultado experimental em destaque na Fig. 2.6 mostra em escala logarítmica, que dentro de duas décadas o decaimento da magnetização remanente pode ser ajustado pela lei

$$M_{rem} = M_0 - M_1 \ln t, \tag{2.32}$$

característica de processos de ativação térmica distantes da temperatura de congelamento.

A magnetização remanente, M_{rem} definida como

$$M_{rem} = \frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N} < S_i(t) > , \tag{2.33}$$

relaciona as orientações dos spins ($S_i(t)$) em um dado instante t. Segundo Montenegro [82], as medidas de IRM devem ser realizadas tão rapidamente quanto possível uma vez que esta quantidade apresenta forte dependência temporal, indicando que tal grandeza não atinge o equilíbrio abaixo de $T_i(H)$ dentro da escala de tempo experimental.

A investigação da M_{rem} se inicia a partir do resfriamento lento do sistema $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$, que se encontra na fase PM com $T = 1.5T_f$. A temperatura final utilizada foi $T = 0.28T_f$, com intervalos de $\Delta T = 0.013T_f$, onde utilizamos 3.10^4 MCS durante a termalização das amostras. No protocolo ZFC, ao se atingir $T = 0.28T_f$, aplica-se o campo H durante 50.000 MCS, retira-se o campo e realiza-se a medida de M_{rem}. O que diferencia os protocolos ZFC e FC é o fato de que no procedimento FC a etapa de resfriamento é realizada com a aplicação de H. Em ambos os casos, a evolução do sistema e as medidas são feitas a campo nulo.

Os resultados são apresentados na Fig. 2.6 para $H = 2.85T$. Um "crossover" é observado de uma lei de potência com decaimento rápido, $M_{rem} \sim t^{-\beta}$ ($\beta \approx 1$), em curtos tempos, $t \leq 10^2$MCS. Para um decaimento logarítmico lento, $M_{rem} \sim \gamma lnt$ + cte ($\gamma \approx 0,001$) em tempos longos, $10^3 \leq t \leq 10^5$ MCS. Este comportamento para tempos longos foi também observado experimentalmente em medidas do composto como mostrado no inset da Fig. 2.6, indicando que um estado termodinâmico metaestável vítreo obtido neste procedimento com campo aplicado.

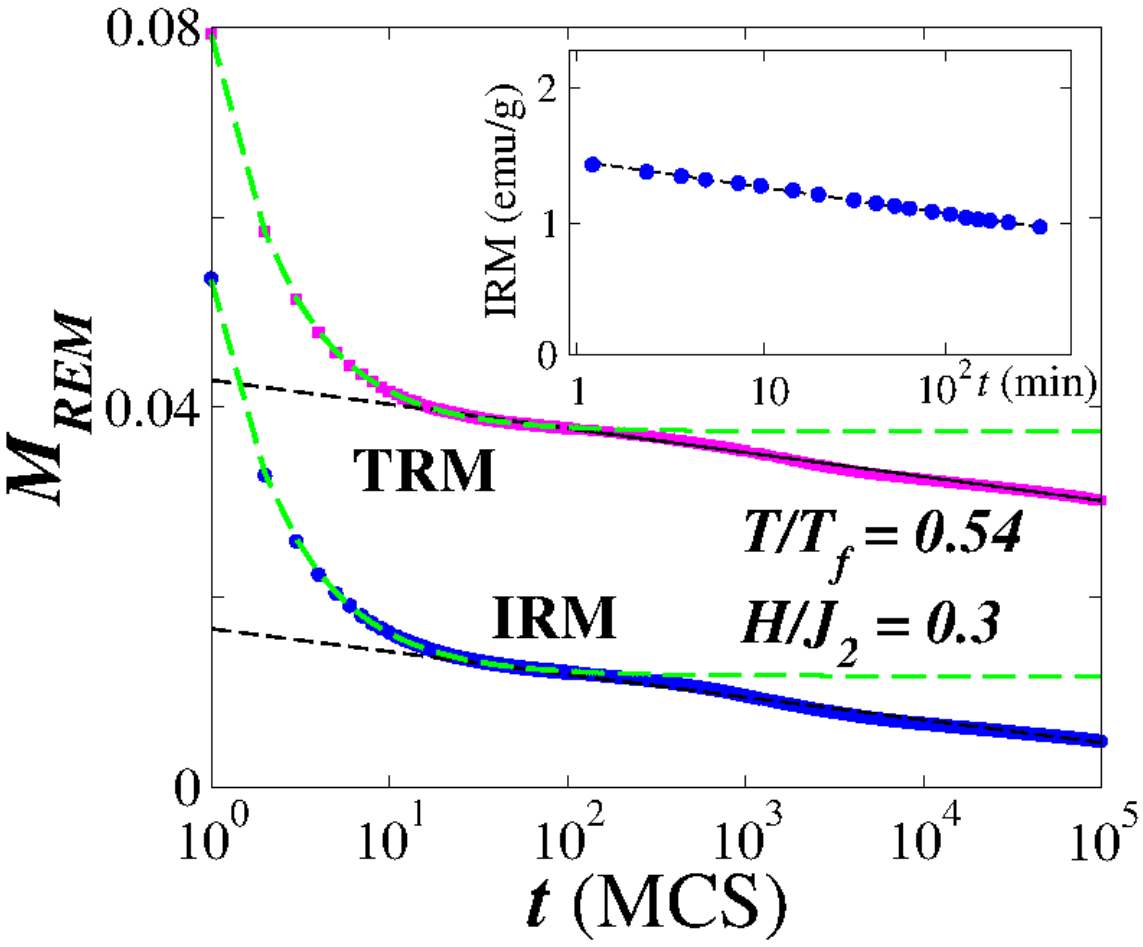

Figura 2.6: Dinâmicas das magnetizações termo-remanente (TRM) e isotermo-remanente (IRM) da amostra inteira após o desligamento do campo magnético, $H/J_2 = 0.3$ para $T/T_f = 0.38$. As linhas verdes e pretas tracejadas indicam, respectivamente, os comportamentos para tempos curtos ($M_{REM}\ t^{-\beta} + constante$) e longos ($M_{REM}\ -\gamma \ln t + constante$). O destaque mostra o decaimento logarítmico para a medida IRM experimental [9].

Capítulo 3

Histerese, Irreversibilidade e Ciclos Termodinâmicos

3.1 Histerese via Simulação Monte Carlo

Geramos os ciclos de histerese nas simulações MC a partir do resfriamento lento do sistema a campo nulo desde o estado PM até a temperatura de interesse, que por sua vez é mantida fixa enquanto variamos o campo (aumentando ou diminuindo) em intervalos $\Delta H = 0.05 J_2 \approx 0.48$T, com termalizações de 5.10^3MCS para cada valor de H. Utilizamos dois tipos de amostras distintas neste processo de medidas, a amostra inteira (AI) e o cluster percolante (CP) de cada amostra. De fato, devido a proximidade da concentração de percolação de primeiros vizinhos, $x_p \approx 0.24$, temos um grande número de pequenos clusters fractais [87, 64, 65, 66], que são mais sensíveis ao efeito do campo magnético. Em contraste, a configuração VS a campo nulo do CP, que contém tipicamente em torno de 25% de todos os spins, é mais robusta quanto à influência do campo aplicado (ver na Fig. 3.1 a distribuição

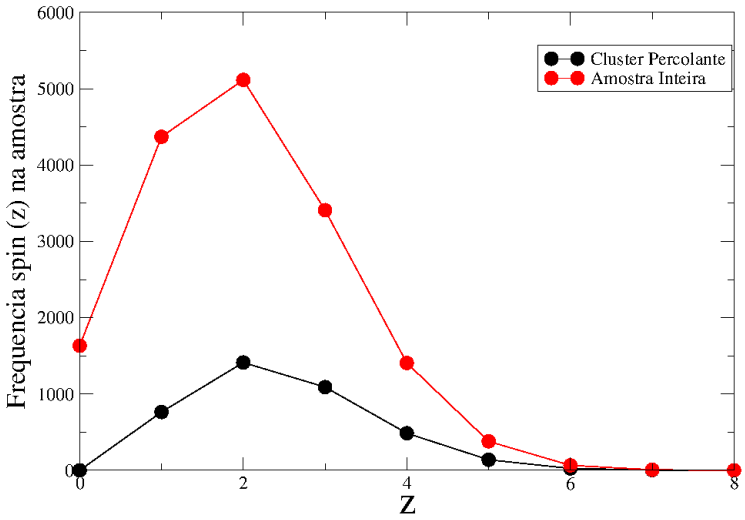

Figura 3.1: Distribuição do número de spins em função do número de coordenação z.

média do número de spins de acordo com o número de coordenação z- spins vizinhos interagindo via J_2 - para AI e CP).

A Fig. 3.2 (a) mostra o ciclo de histerese para baixa temperatura, $T = 0.013T_f$, no qual observamos que a estrutura revela platôs de magnetização em ambas amostras (AI e CP), que por sua vez estão relacionados às inversões de spin isolados induzidas pelo campo [104]. Nesta temperatura, as flutuações térmicas são desprezíveis, de forma que o comportamento do sistema passa a ser governado pela competição entre as interações AF e o campo aplicado, neste regime fortemente diluído. Neste sentido, a sequência de platôs coincide com o número de vizinhos interagindo através do acoplamento AF dominante J_2 (até $z = 8$ na rede diluída tetragonal de corpo centrado). O comportamento para campos muito baixos é mostrado na Fig. 3.3, com magnetização não nula acontecendo devido às inversões de spins desconectados (*loose spins*) e a spins nas interfaces dos domínios (que apresentam campo efetivo

local nulo), resultando em uma magnetização diferente de zero dependente do campo antes do primeiro platô do CP ser atingido. Os platôs também podem ser identificados através dos picos da susceptibilidade (dM/dH), dependente de T e H, para T muito baixas, como mostrado na Fig. 3.2.

Encontramos que o efeito de J_3 na curva de histerese está presente para campos muito baixos, $H/J_2 < 0.1$, se manifesta na forma de pequenas irregularidades em M como mostrado na Fig. 3.3. Tais irregularidades são consistentemente suavizadas quando $J_3 = 0$. Este resultado também evidencia que o papel de J_3 é relevante apenas nos regimes de T e H muito baixos, apresentando assim concordância com os dados de calor específico apresentados para a fase VS a campo nulo [12, 13].

Notamos que a região de transição entre o n-ésimo platô e o seguinte ocorre em $H/J_2 = n$, relação válida até a saturação, na qual todos os spins se alinham com o campo. Para $H/J_2 \approx H_{AT}(T \to 0)/J_2 \approx zx = 2$, o ciclo de histerese se fecha, indicando que a fase PM foi atingida nesta temperatura. O regime de irreversibilidade se torna evidente quando as medidas da magnetização têm históricos magnéticos distintos durante o aumento ou diminuição do campo magnético.

Também observamos na Fig. 3.3 uma considerável diferença nos dados da histerese da amostra inteira e cluster percolante. No CP o primeiro platô apresenta magnetização essencialmente nula, indicando que apesar da aplicação do campo magnético o CP permanece não perturbado pelos efeitos do campo até $H/J_2 \approx 1$ no regime de baixa temperatura. Nesse regime, os pequenos clusters e os spins desconectados da amostra inteira (ou com campos efetivos de exchange nulos) são susceptíveis à influência de campos de quaisquer magnitude. Para altas temperaturas a curva de histerese se torna mais suave e os platôs dão lugar a um ciclo simétrico contínuo. Outro fator observado é que os máximos das curvas dM/dH

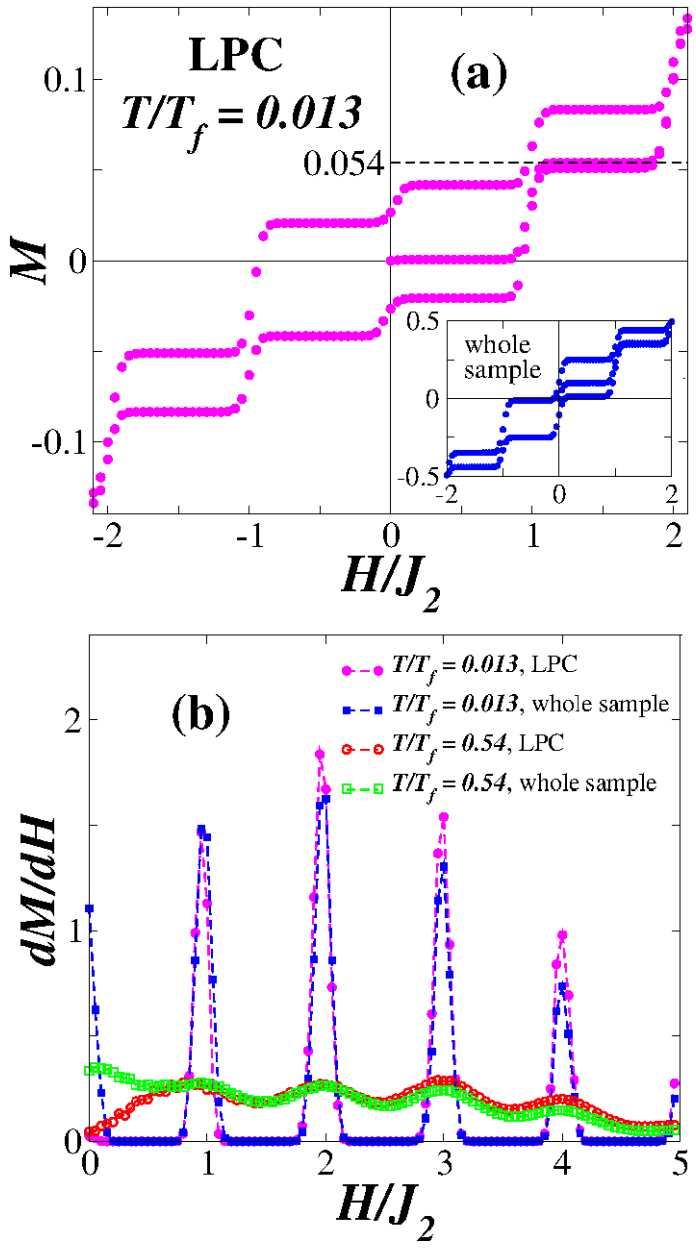

Figura 3.2: (a) Ciclos de histerese via simulação MC do cluster percolante (CP) e amostra inteira (AI), no *inset*, para $T/T_f = 0.013$, apresentando uma estrutura de platôs. (b) Susceptibilidade dependente de H e T para $T/T_f = 0.013$ (dos dados obtidos em (a)) e $T/T_f = 0.54$ [15].

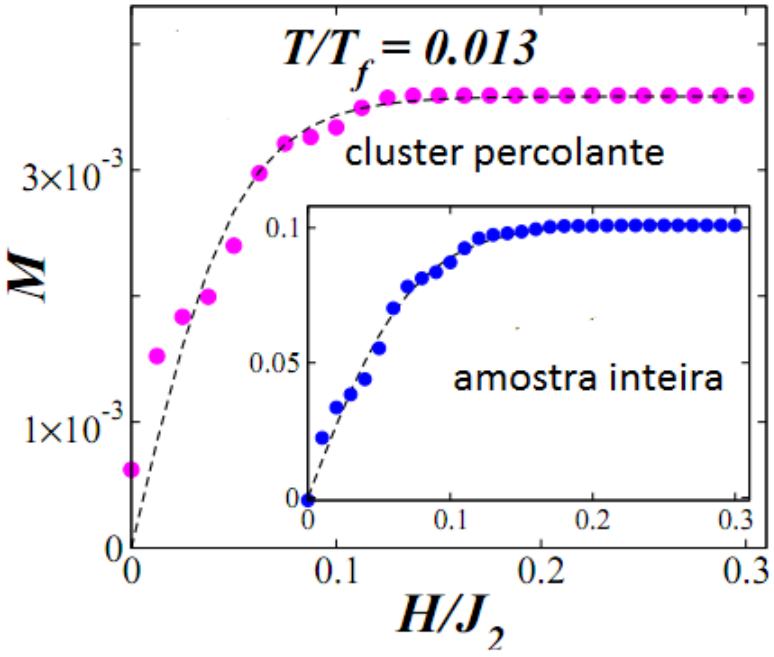

Figura 3.3: Comportamento das curvas de magnetização para campos muito baixos antes do primeiro platô ser atingido para (a) AI e (b) CP.

mostradas na Fig. 3.2(b) vão desaparecendo à medida que aumentamos a temperatura, decorrente da suavização térmica das descontinuidades entre platôs.

3.2 Ciclos *ZFC-FC* e Curvas de Irreversibilidade

Os resultados obtidos para a histerese são corroborados pela dependência térmica das curvas de magnetização FC e ZFC do cluster percolante, M_{ZFC} e M_{FC}, respectivamente, mostradas na Figura 3.4, para diversos valores de H através da simulação MC. Similarmente ao procedimento experimental, no protocolo FC (ZFC) o sistema é resfriado na presença (ausência) de um campo, do estado PM até $T = 0.013T_f$; a

partir de então é aquecido com um campo magnético uniforme aplicado; durante o aquecimento realizamos as medidas da magnetização.

Notamos que o colapso das curvas M_{ZFC} em $T \to 0$ coincide com o respectivo valor da magnetização de cada platô no ciclo de histerese. Por exemplo, as magnetizações para baixa temperatura (no CP) são nulas tanto no primeiro platô do ciclo de histerese, Fig. 3.2, quanto no colapso de M_{ZFC} em $T \to 0$, como mostra a Fig. 3.4. No entanto, a magnetização atinge valor 0.054 no segundo platô do ciclo de histerese, do mesmo modo que o segundo colapso mais baixo das curvas M_{ZFC}. Para campos no regime de transição entre platôs consecutivos, a M_{ZFC} para baixa temperatura assume valores intermediários com respeito aos pontos de convergência das magnetizações, como podemos ver na Fig. 3.4, para $H/J_2 = 1$.

A linha de irreversibilidade, que diferencia a fase com comportamento vítreo ou metaestável da fase PM, é determinada a partir da temperatura dependente de H abaixo da qual os valores de M_{ZFC} e M_{FC} começam a diferir [20, 11]. Conforme Brito [16], definiu-se, para os dados apresentados, T_i como sendo a média aritmética entre as duas temperaturas referentes ao extremo máximo, $T_i(H)_{Max} = T_i(H)+\Delta T_i(H)/2$, e mínimo, $T_i(H)_{Min} = T_i(H) - \Delta T_i(H)/2$, da região de encontro das curvas FC e ZFC (como podemos ver na Fig. 3.6), onde $T_i(H)_{Min}$ é aquela cuja diferença entre as magnetizações $M_{FC} - M_{ZFC}$ é menor que os erros em M_{FC} e M_{ZFC}, e $T_i(H)_{Max}$ é aquela cuja diferença entre as magnetizações $M_{FC} - M_{ZFC}$ é maior que o módulo da diferença entre os erros em M_{FC} e M_{ZFC}. Seguindo este procedimento, foram obtidos os pontos $T_i(H)$ e construíram-se as linhas de estabilidade para o CP (Fig. 3.4) e AI (Fig. 3.5).

Os resultados conjuntos para a AI e CP são mostrados na Fig. 3.7, além das medidas obtidas experimentalmente para o composto $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ [11, 9]. Em

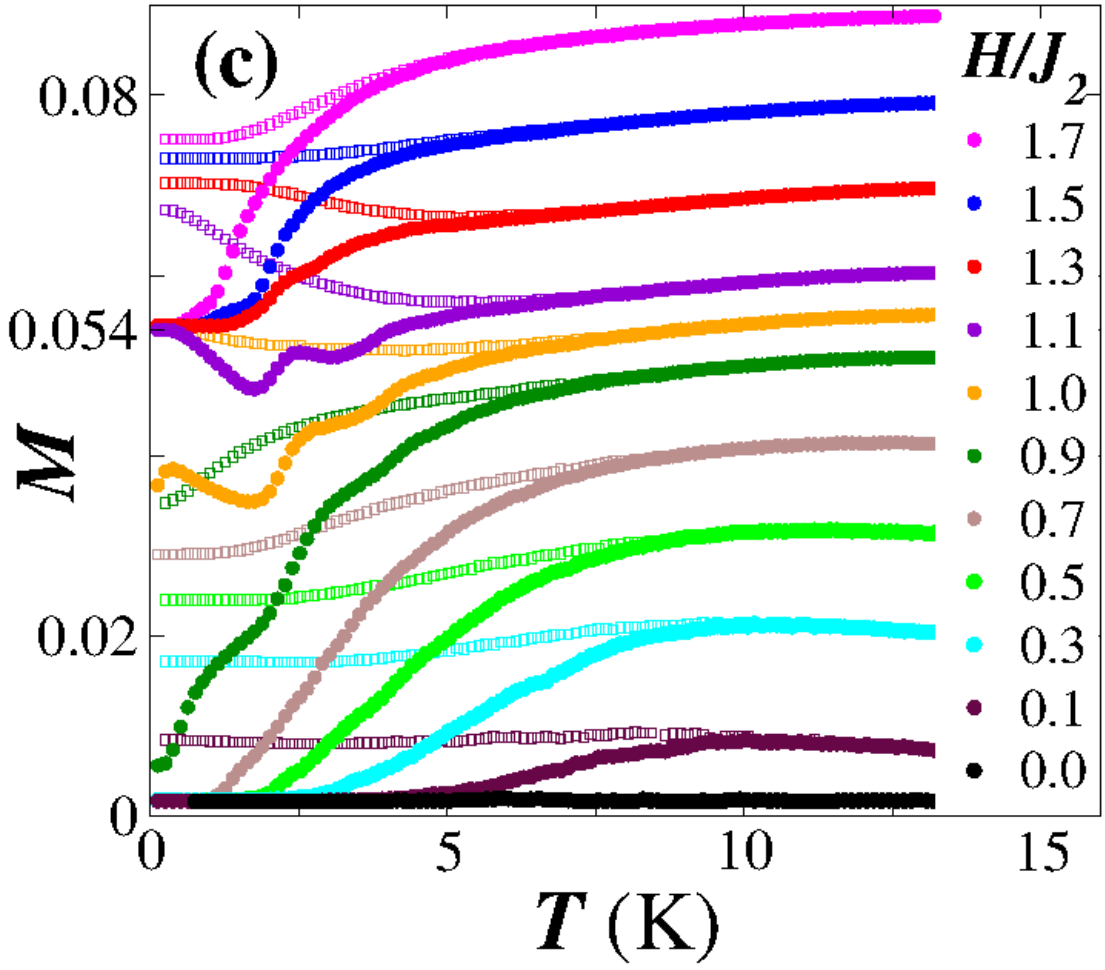

Figura 3.4: Dependência térmica das magnetizações ZFC (círculos cheios) e FC (quadrados abertos) para o CP com diferentes H, via simulação MC. Ocorrem colapsos de M_{ZFC} para baixas T no primeiro ($H/J_2 < 1$) ou segundo platôs ($1 < H/J_2 < 2$), ou seja, $M = 0$ e $M = 0.054$, respectivamente.

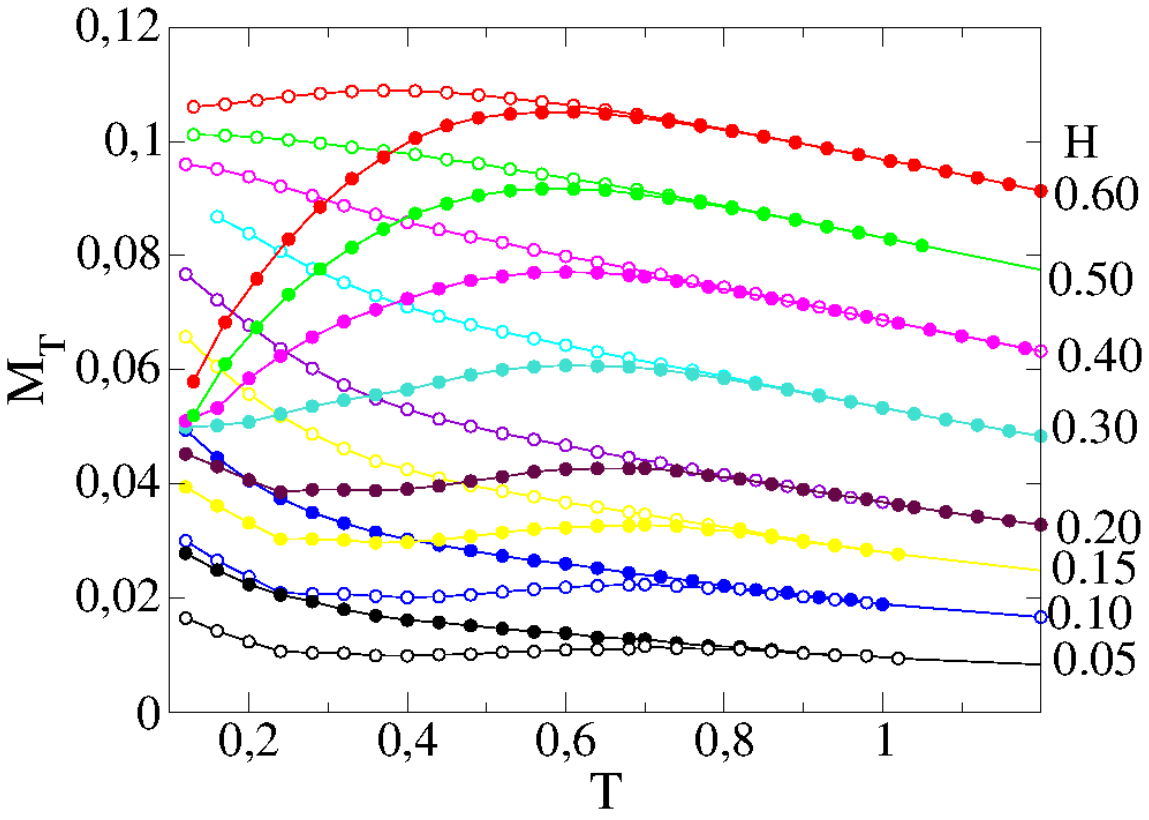

Figura 3.5: Dependência térmica das magnetizações ZFC (círculos fechados) e FC (círculos abertos) para a AI com diferentes H, via simulação MC [16].

particular notamos no destaque que $H_{AT}(T = 5.1\text{K}) = 1.1J_2 \approx 10.5\text{T}$, um valor que encontra-se próximo do regime no qual o *scaling* aditivo da função de autocorrelação temporal deixa de existir, como discutido no capítulo anterior. O expoente numérico de AT, determinado a partir do melhor ajuste da relação de *scaling* $T_0 - T \propto H_{AT}^{-2/\phi}$, implica $\phi = 3.4 \pm 0.6$, um valor em acordo com a medida experimental [11, 9] $\phi = 3.4 \pm 0.2$ e um pouco maior que o valor previsto pelo modelo de campo médio $\phi = 3$ [25].

Contudo, é possível que este resultado reflita apenas o estado termodinâmico vítreo ou metaestável do tipo VS [19, 21, 44], como verificado empiricamente [44] no composto $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ através do decaimento da linha AT para tempos longos. Neste sentido, nossas observações do comportamento vítreo na presença de um campo podem estar relacionado à escala de tempo finito típica da simulação MC, um resultado consistente com o cenário de droplets.

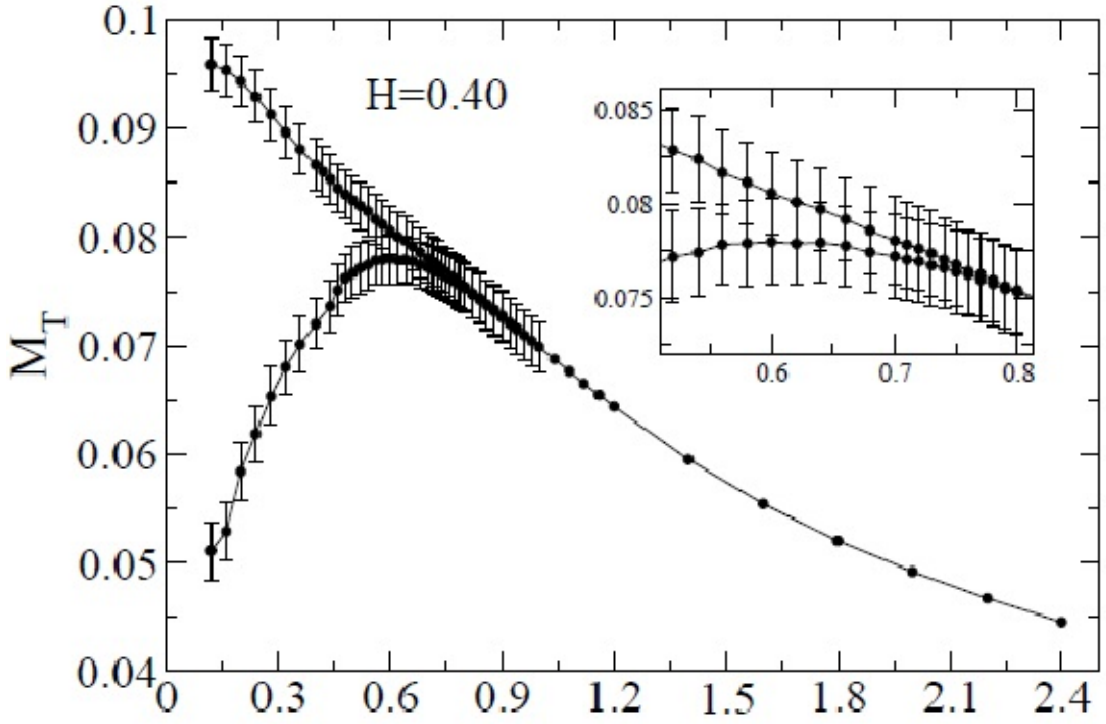

Figura 3.6: Resultado de simulação MC para o $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ no ciclo ZFC-FC para $H/J_2 = 0.4$. O detalhe mostra a região de encontro da curva FC com a curva ZFC [16].

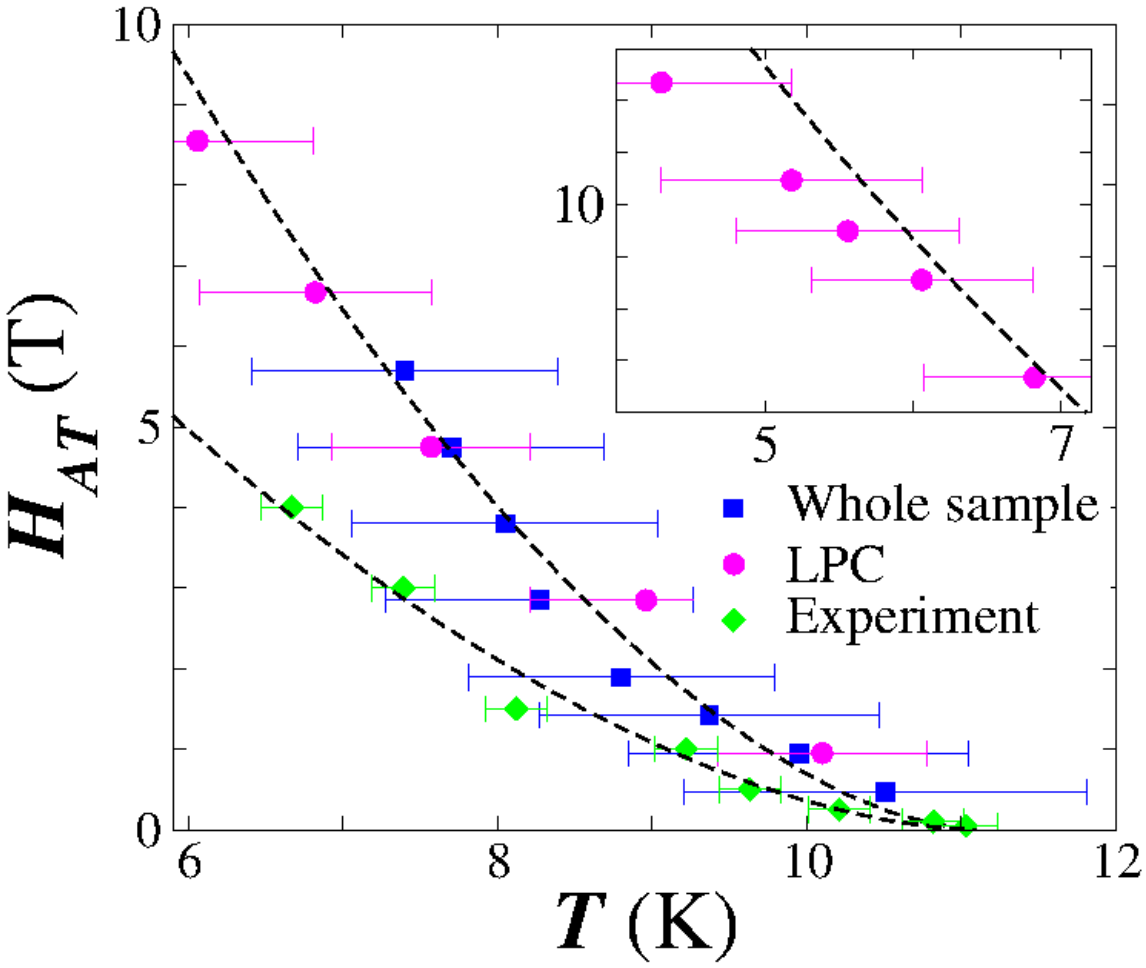

Figura 3.7: Curva de irreversibilidade para o cluster percolante a partir dos dados obtidos na Fig. 3.4 e para a amostra inteira na Fig. 3.5, via simulação MC. As linhas tracejadas mostram o melhor *fitting* para os dados experimentais e numéricos, obtendo para ambos os casos $\phi = 3.4 \pm 0.6$ [15].

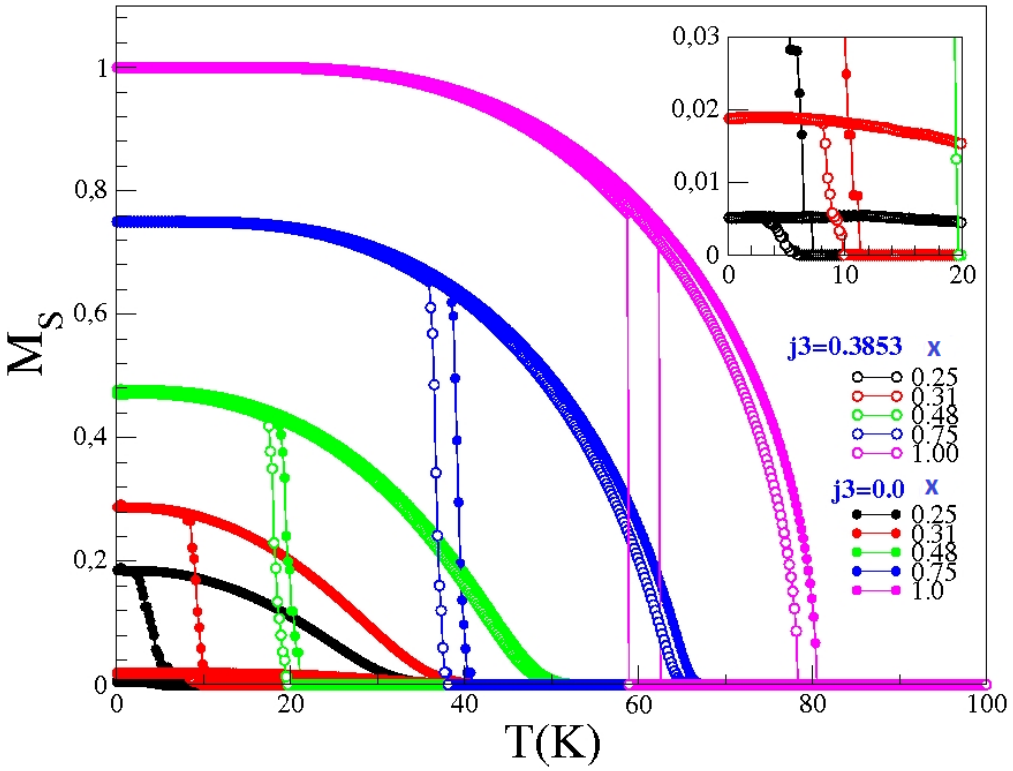

Figura 3.8: Magnetização dependente da concentração via simulação LMF para temperatura final $T/T_f = 0.013$.

3.3 Simulação Campo Médio Sítio-a-Sítio

Apresentamos a seguir os resultados da simulação LMF para medidas de magnetização de sub-rede ($M_s(x)$) - Fig. 3.8 - dependentes da temperatura e da concentração magnética, bem como do parâmetro de EA $Q_s(x)$ - Fig. 3.9 . Tais medidas foram realizadas através de um protocolo ZFC e realizadas durante o resfriamento e aquecimento das amostras.

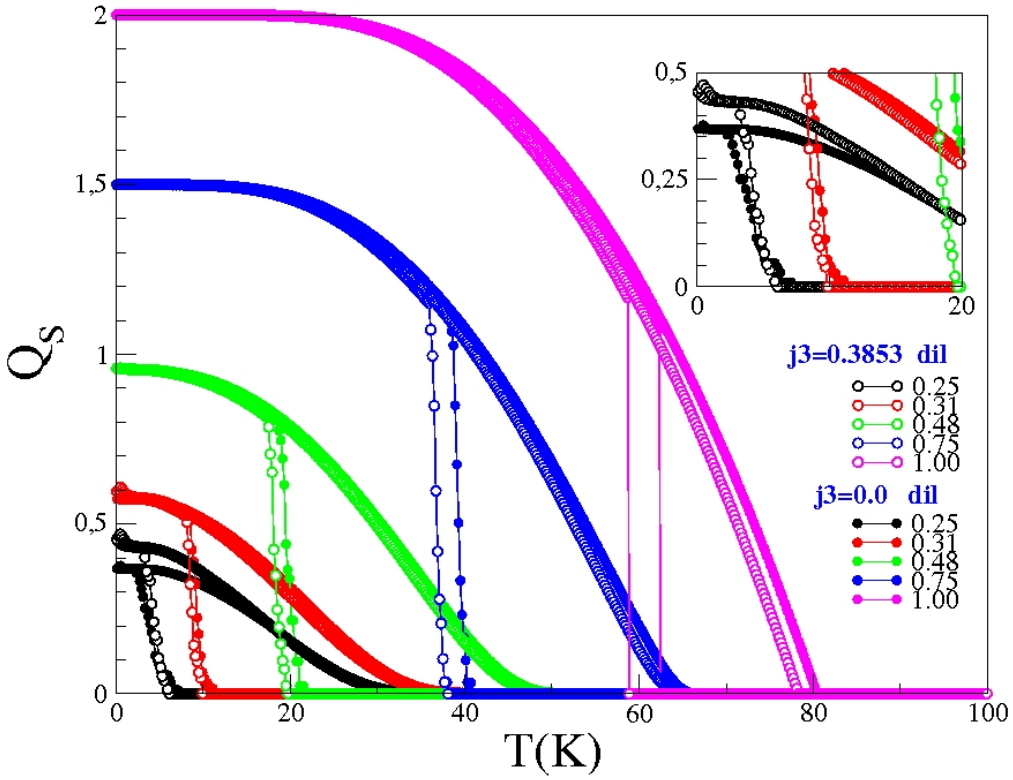

Figura 3.9: Parâmetro de EA dependente da concentração via simulação LMF para temperatura final $T/T_f = 0.013$.

Histerese

A estrutura de platôs da Fig. 3.2 é também capturada pela técnica LMF (veja Fig. 3.10), com o detalhe de que aqui o efeito da interação de frustração J_3 é mais pronunciado. Em altas temperaturas, o ciclo de histerese manifesta um aspecto mais suave, como pode ser visto na Fig. 3.4, tornando-se completamente fechado e reversível no regime de altas temperaturas na fase PM, como observado experimentalmente no composto $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ [11, 9]. Um ciclo de histerese contínuo foi observado para o modelo de EA- $3D$ e também para VS Ising $Fe_{0.5}Mn_{0.5}TiO_3$ em $T \approx 0.3T_f$ [105]. Podemos observar os efeitos da temperatura no ciclo de histerese a partir da Fig. 3.11 obtido a partir da AI via LMF. Essas evidências também são notadas a partir da ampliação dos picos da susceptibilidade, dM/dH, quando diminuímos a temperatura - ver Fig. 3.13 (compare com os dados da Fig. 3.2(b)).

3.4 Estabilidade do Parâmetro de EA

No contexto LMF, é também interessante verificar a estabilidade da fase VS na presença da pequena interação de frustração J_3 e do campo magnético externo uniforme. Por algum tempo um intenso debate ocorreu [67, 68, 69, 3] sugerindo que a pequena frustração poderia ser o mecanismo responsável pela fase VS no composto $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$. Entretanto, considerando os números de coordenação $z_2 = 8$ e $z_3 = 4$, relativos à vizinhança dos spins interagentes via J_2 e J_3 respectivamente, a razão entre estas energias $z_2J_2/z_3J_3 \approx 37.4$, mostrando que a distribuição energética decorrente de J_3 é muito inferior à de J_2. O efeito de J_3 nas medidas descritas abaixo decorre do fato de que, no método LMF, o efeito de flutuações térmicas não é considerado. Contudo, Ambas as medidas da magnetização local e do parâmetro de

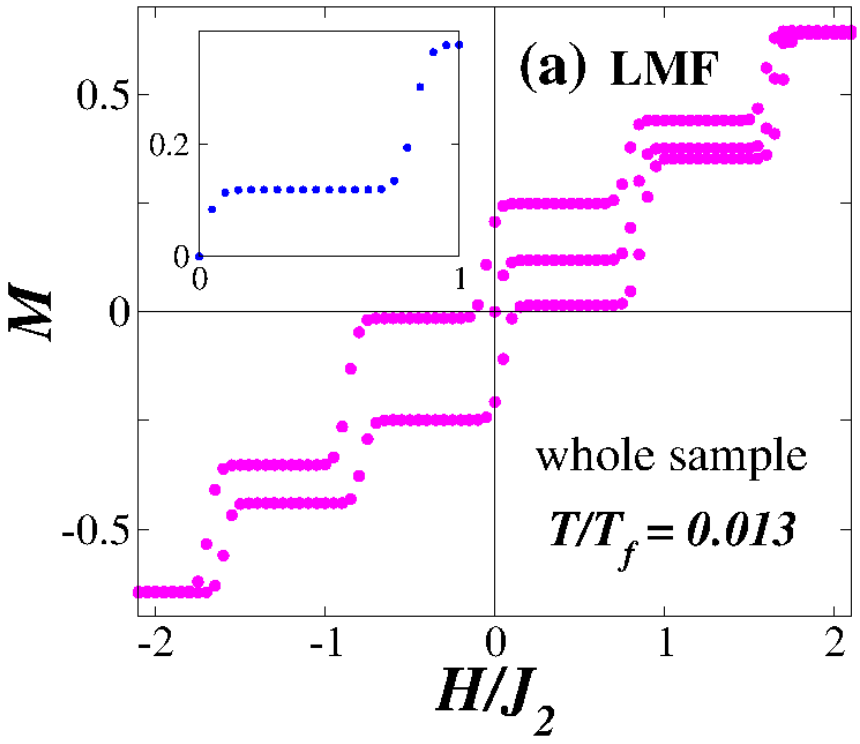

Figura 3.10: Ciclo de histerese da amostra inteira via simulação LMF para $T/T_f = 0.013$ evidenciando a estrutura de platôs. No detalhe mostramos o regime $H/J_2 < 1$.

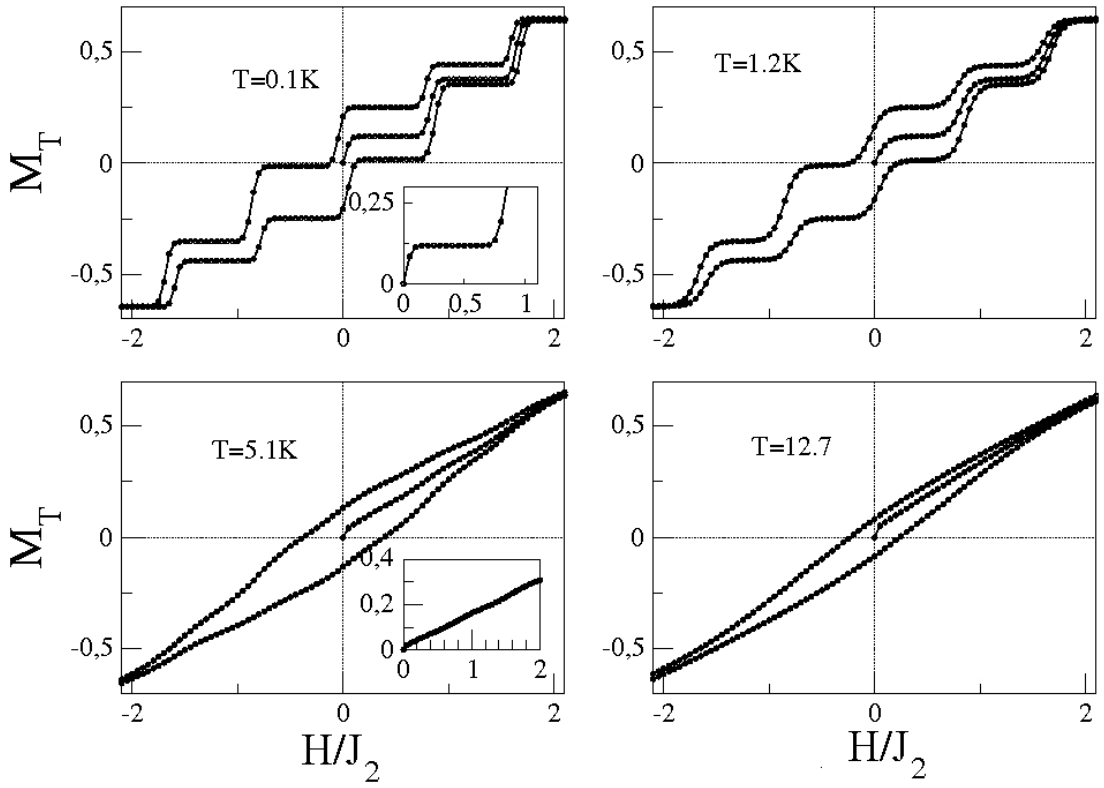

Figura 3.11: Ciclos de histerese obtidos via simulação LMF para T = 0.1, 1.2, 5.1 e 12.7K.

ordem de EA a campo nulo [95],

$$q = \frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N}[m_i^2], \tag{3.1}$$

resultaram em valor nulo $J_3 = 0$, indicando que, de acordo com a aproximação de LMF, a fase VS em $H = 0$ ocorre somente se $J_3 \neq 0$ (ver Fig. 3.14). Contudo, a fase VS manifestada pela presença de J_3 e $H = 0$ na técnica LMF desaparecena presença de um campo, como mostra a Fig. 3.14 através uma mudança quantitativa do parâmetro q. Este efeito ocorre, até mesmo para campos baixos, após o protocolo FC. De fato, apenas a campo nulo $q_{J_3} - q_0$ é positivo para $x = 0.25$ (Fig. 3.14) e negativo para $x = 0.48$ (Fig. 3.15). O valor negativo encontrado para qualquer valor de H, em $x = 0.48$, resulta do fato que na simulação LMF o acoplamento frustrado inverte poucos clusters AF, neste regime de diluição moderada. Em ambos os casos, qualquer campo altera o estado com $H = 0$.

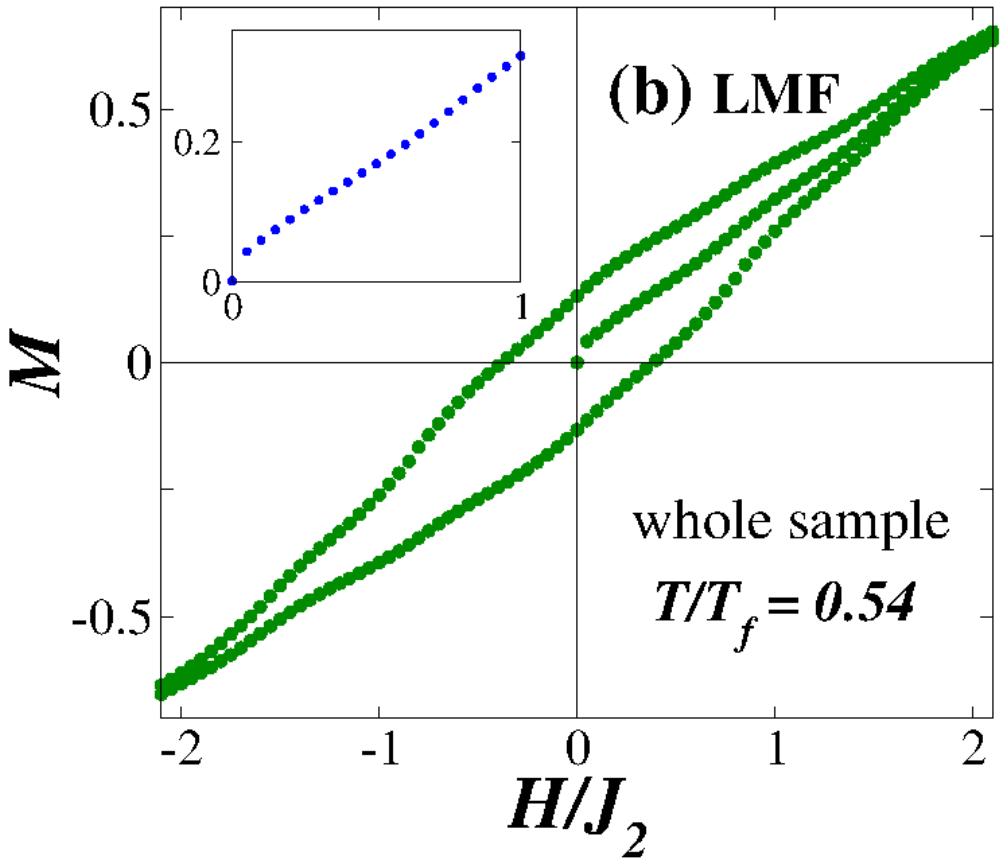

Figura 3.12: Ciclo de histerese da amostra inteira via simulação LMF para $T/T_f = 0.54$ mostrando que estrutura de platôs é suavizada. No detalhe temos o regime $H/J_2 < 1$. [15]

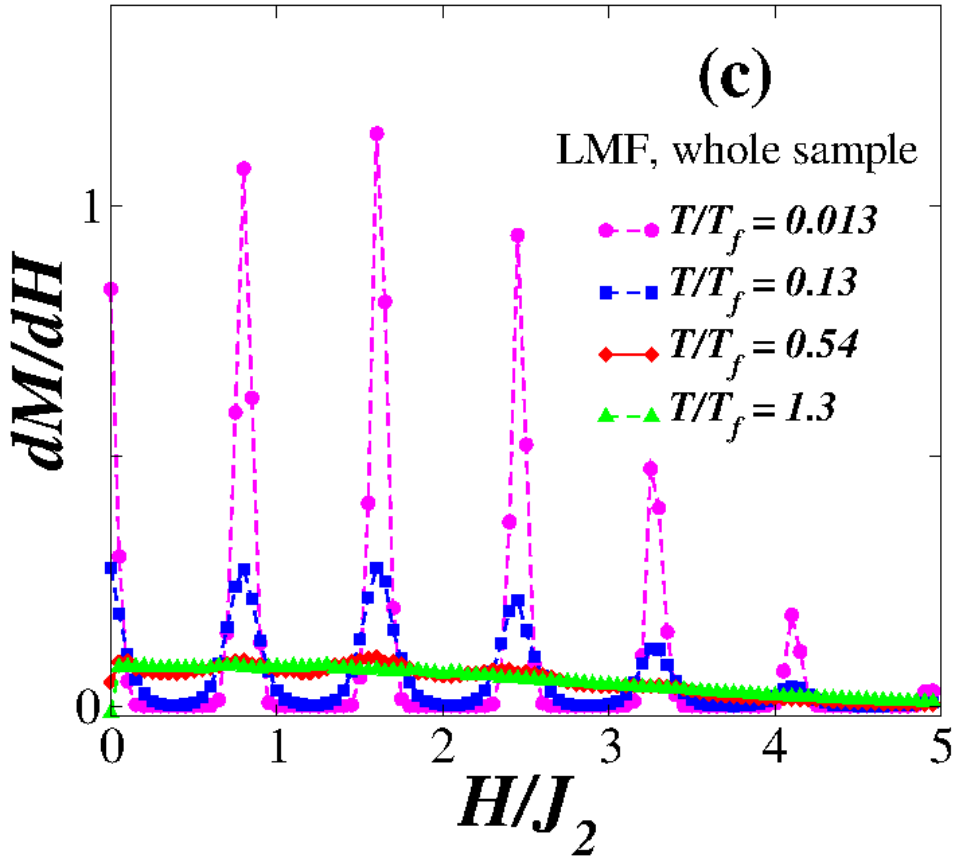

Figura 3.13: Susceptibilidade dependente de T e H da amostra inteira para $T/T_f = 0.013$ (dos dados da Fig. 3.10), 0.13, 0.54 (dos dados da Fig. 3.4) e 1.3 [15].

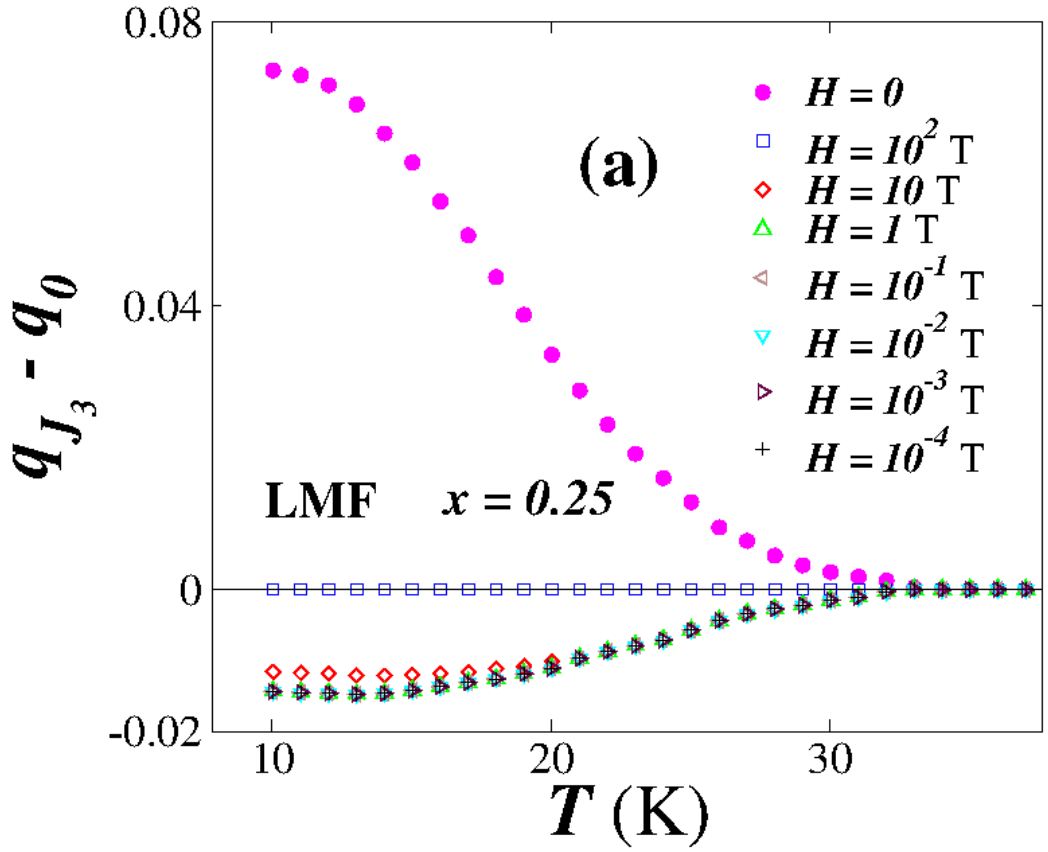

Figura 3.14: Estabilidade do parâmetro de EA da amostra inteira considerando a pequena interação de frustração J_3 após o procedimento FC, via simulação LMF com comportamentos VS a campo nulo e vítreo para $H \neq 0$ em $x = 0.25$ [15].

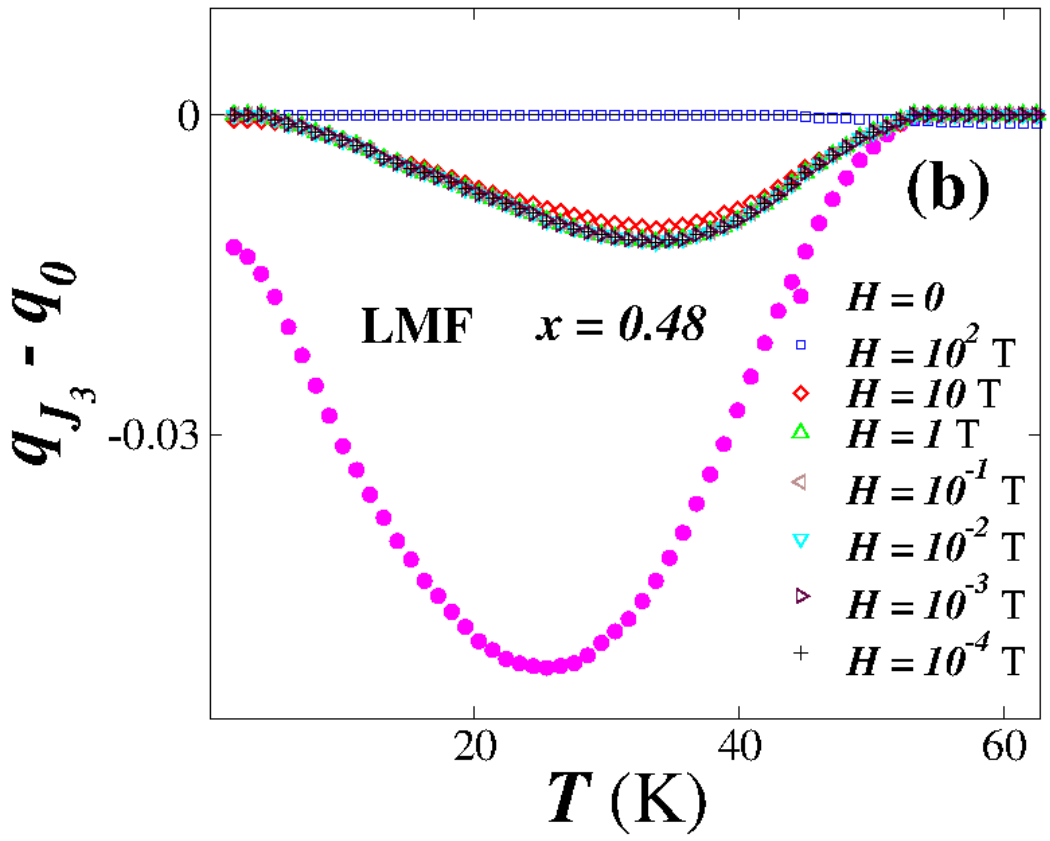

Figura 3.15: Estabilidade do parâmetro de EA da amostra inteira considerando a pequena interação de frustração J_3 após o procedimento FC, via simulação LMF com comportamentos REIM a campo nulo e RFIM para $H \neq 0$ em $x = 0.48$ [15].

Capítulo 4

Análise Microscópica

Nesta seção apresentamos os resultados MC que nos permitem fazer uma análise microscópica da magnetização e das configurações de spin sob o efeito de um campo magnético uniforme.

Com o intuito de compreender melhor os mecanismos de competição que levam às descobertas apresentadas anteriormente, analisamos em separado as contribuições $M(z)$, dos spins com $z \leq 8$ vizinhos interagentes via J_2, para a magnetização total $M = \sum_{z=0}^{8} M(z)$. Mostramos na Fig. 4.1 resultados da simulação para o CP, para os quais a contribuição dos spins desconectados ($z = 0$) é ausente, para $T = 0.013T_f$ e $T = 0.54T_f$. As Figs. 4.1 e 4.2 indicam que os platôs observados em baixas temperaturas, são sucessivamente induzidos para spins com $z = 1$, $z = 2$ e etc. Esta sequência de platôs possui uma correspondência direta com a sequência de picos (T baixa) de susceptibilidade, conforme mostrado na Fig. 3.2(b). Observamos que um comportamento não trivial surge com a alta conectividade entre os spins ($z \geq 4$). De fato, Quando os spins apresentam uma alta conectividade, ou seja $z \geq 4$, as inversões com H ocorrem no sentido inverso ao campo aplicado devido ao forte acoplamento

AF J_2 local. Como consequência, uma contribuição negativa ($M(z) < 0$) emerge deste cenário. Tal efeito é amplificado na presença da desordem térmica, como podemos ver na Fig. 4.2 Destacamos que a ordem AF de curto alcance local tem sido provada experimentalmente no composto $Fe_{0.25}Zn0.75F_2$ via espectroscopia Mossbauer e espalhamento de nêutrons. Adicionalmente, pela comparação das Figs. 4.1 e 4.2 concluímos que os spins isolados, com $z = 0$, são essencialmente responsáveis pelo aparecimento do primeiro platô da AI para $H/J_2 \leq 1$ e $T = 0.013T_f$. Por outro lado, para temperaturas mais altas $T = 0.54T_f$, evidências da suavização dos platôs levam a um ciclo de histerese contínuo típico, observado também experimentalmente no composto $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ [11, 9].

Os resultados acima podem ser verificados na Figs. 4.3 e 4.4 nos quais a magnetização $M(z)$, normalizada pelo seu valor de saturação $M_s(z)$, é apresentada em função do número de coordenação z para $T = 0.13T_f$ e $T = 0.54T_f$, para diversos valores de campo magnético.

Dois efeitos podem ser notados em concordância com a discussão apresentada. Primeiro, para baixa temperatura, $T = 0.013T_f$ e campo $H/J_2 = \frac{2z+1}{2}$ no centro do z-ésimo platô não nulo, a saturação da magnetização é atingida para spins com conectividade $\leq z$. O mecanismo de competição das inversões reversas de spin para o campo é também observado para spins altamente conectados, $z \geq 4$. Estes efeitos são minimizados quando a desordem térmica passa a atuar, como vemos na Fig. 4.2 para $T = 0.54T_f$. As evidências das Fig. 4.1 e 4.2 também são corroborados pela simulação LMF, como podemos observar na Fig. 4.5.

Para finalizar nossa análise global do efeito do campo magnético sobre a configuração microscópica de spins no CP, a Fig. 4.6 apresenta a configuração VS a campo nulo do CP, de uma das 32 amostras avaliadas, no regime de baixa temper-

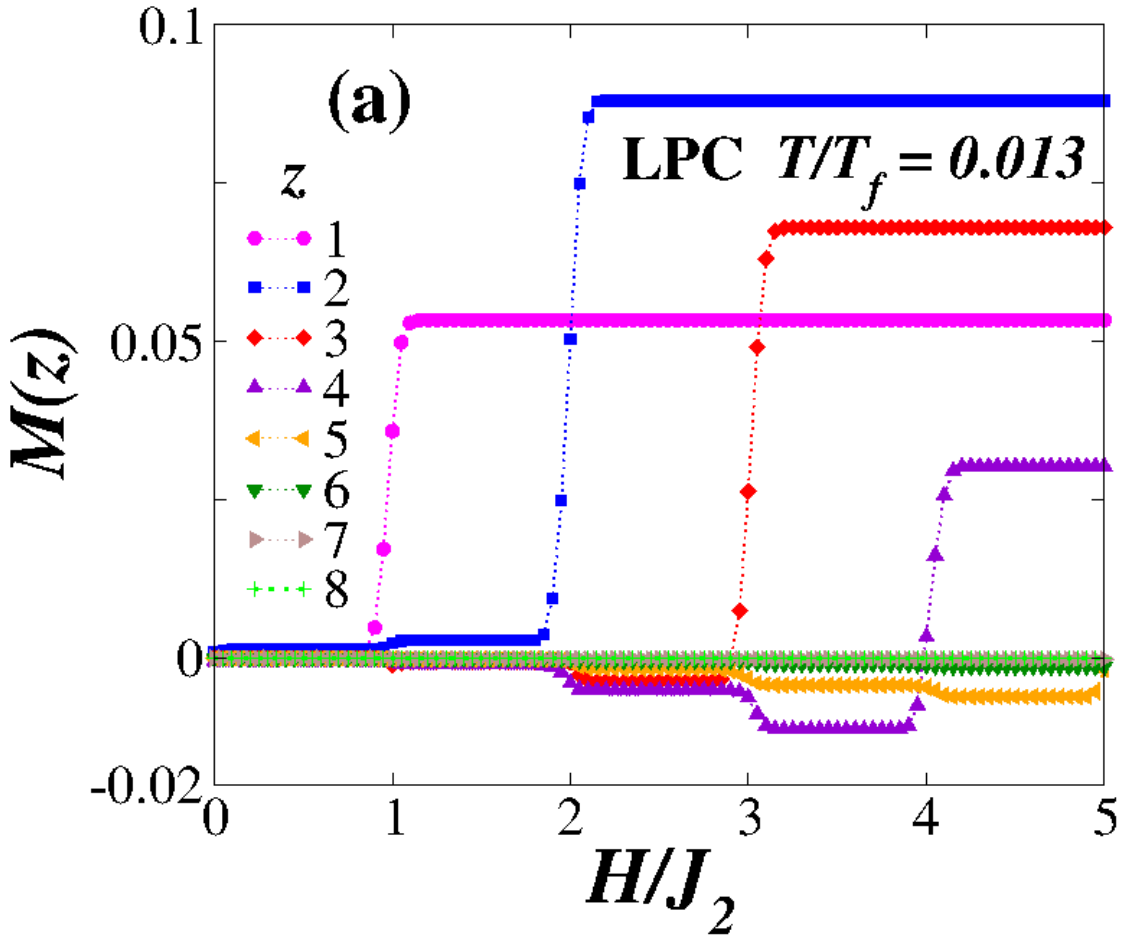

Figura 4.1: Magnetização parcial ($M(z)$) de spins com $z \leq 8$ vizinhos interagentes via J_2, no cluster percolante, como função de H, através da simulação MC para $T = 0.013T_f$ [15].

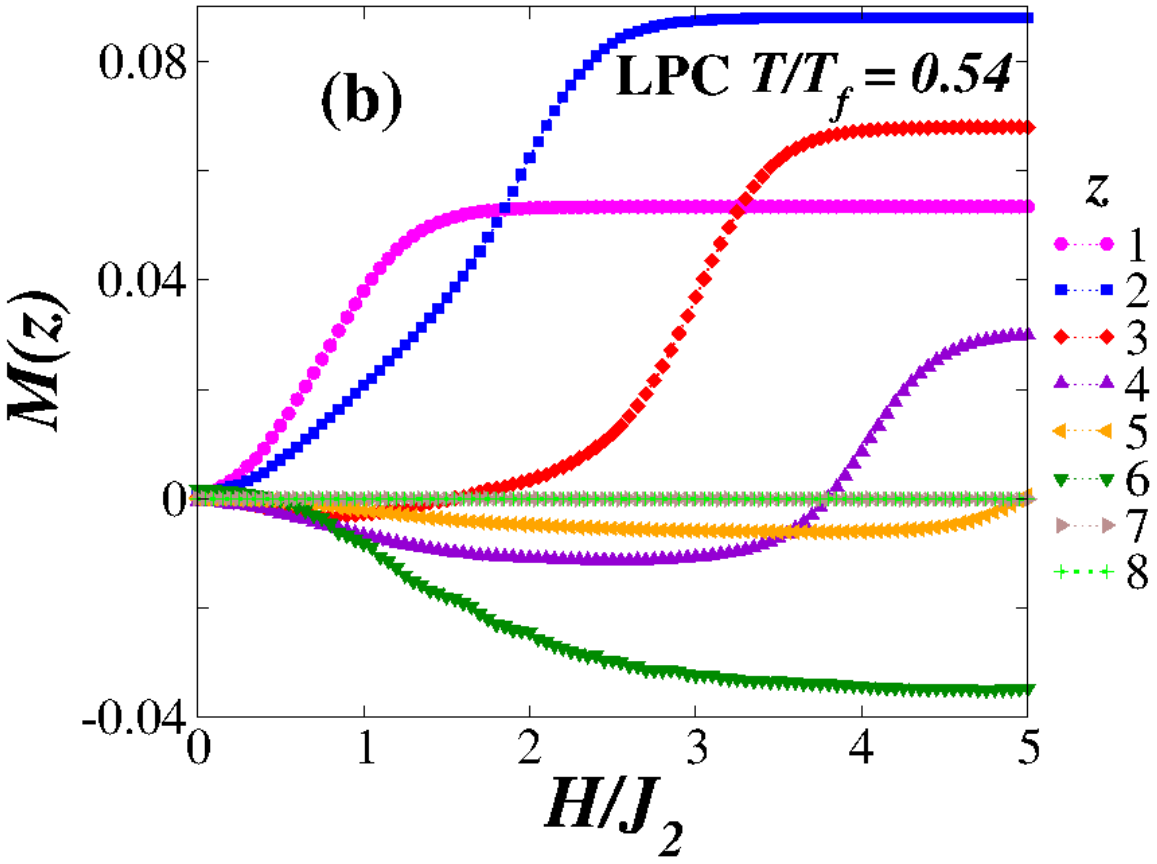

Figura 4.2: Magnetização parcial ($M(z)$) de spins com $z \leq 8$ vizinhos interagentes via J_2, no cluster percolante, como função de H, através da simulação MC para $T = 0.54T_f$ [15].

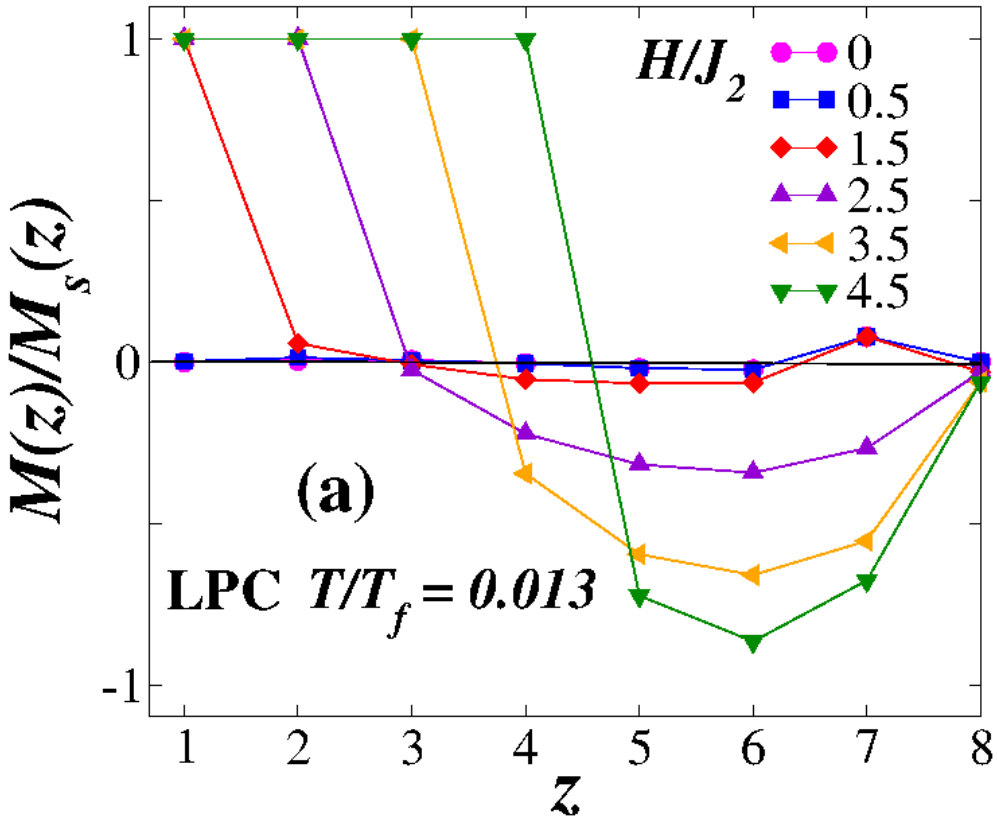

Figura 4.3: Magnetização parcial normalizada pelo seu valor de saturação, $M(z)/M_s(z)$ de spins com $z \leq 8$ vizinhos interagentes via J_2, no cluster percolante, como função de z para diversos valores de campo H, através da simulação MC para $T = 0.013T_f$ [15].

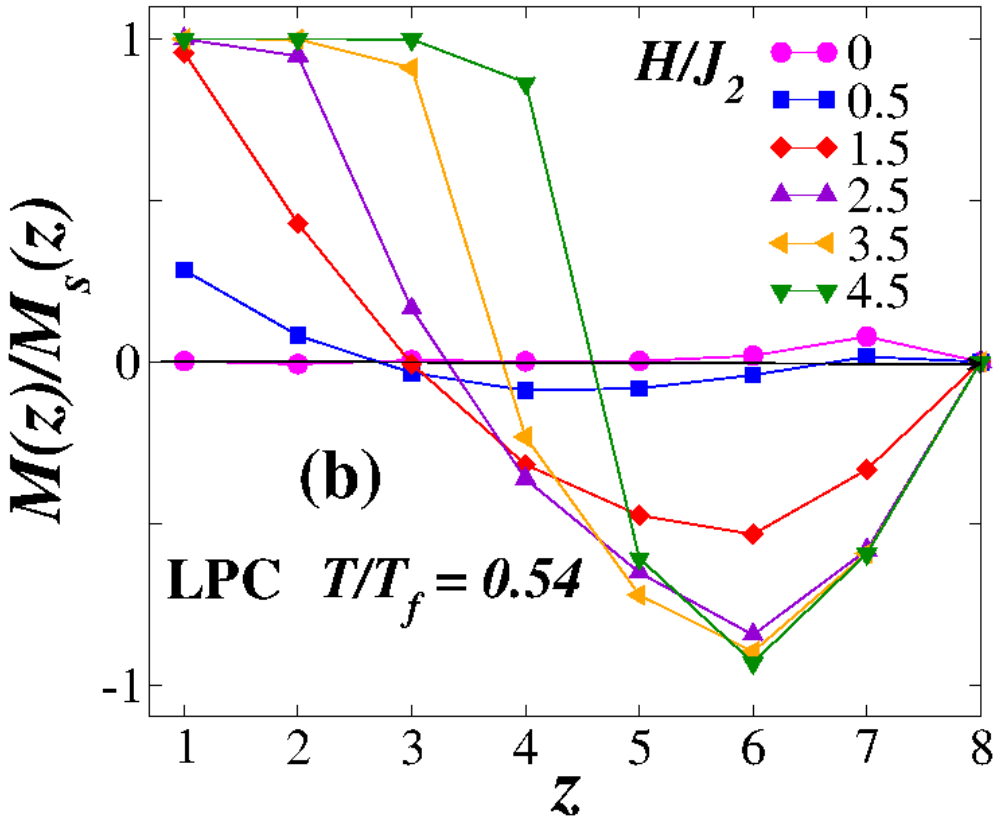

Figura 4.4: Magnetização parcial normalizada pelo seu valor de saturação, $M(z)/M_s(z)$, de spins com $z \leq 8$ vizinhos interagentes via J_2, no cluster percolante, como função de z para diversos valores de campo H, através da simulação MC para $T = 0.54T_f$ [15].

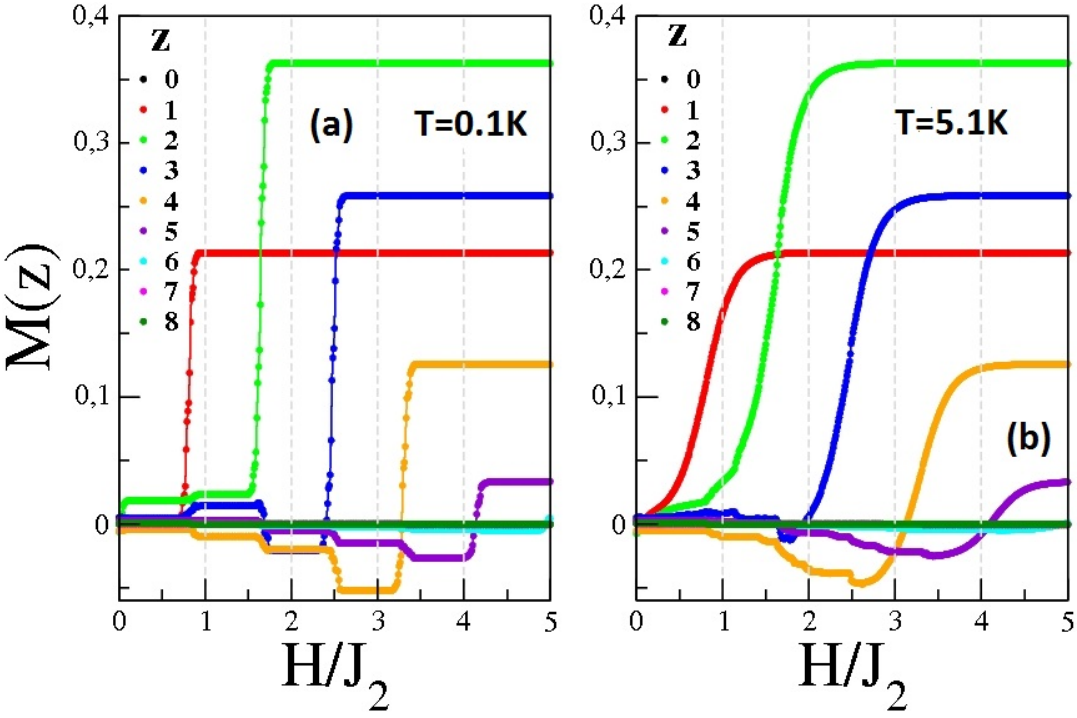

Figura 4.5: Magnetização parcial ($M(z)$) de spins com $z \leq 8$ vizinhos interagentes via J_2, para o cluster percolante, como função de H, através da simulação LMF para (a) $T = 0.013T_f = 0.1$K e (b) $T = 0.54T_f = 5.1$K.

atura $T = 0.013T_f$, via simulação MC. Como mostrado nas referências [12, 64, 66, 87], devido a proximidade da concentração de percolação, os spins estão localmente arranjados em domínios AF fractais com orientações reversas de spin de acordo com sua vizinhança. Conforme a dinâmica presente e estudos de histerese, configurações de baixas temperaturas permanecem essencialmente não perturbadas pelo efeito do campo, $H/J_2 \approx 1$. Contudo, o efeito combinado do campo magnético e da desordem térmica, mostrado na Fig. 4.7 para $H/J_2 = 1$ e $T = 0.54T_f$, promove inversões coletivas de spin com respeito à configuração a campo nulo da Fig. 4.6, conforme esperado pela teoria de *droplets*.

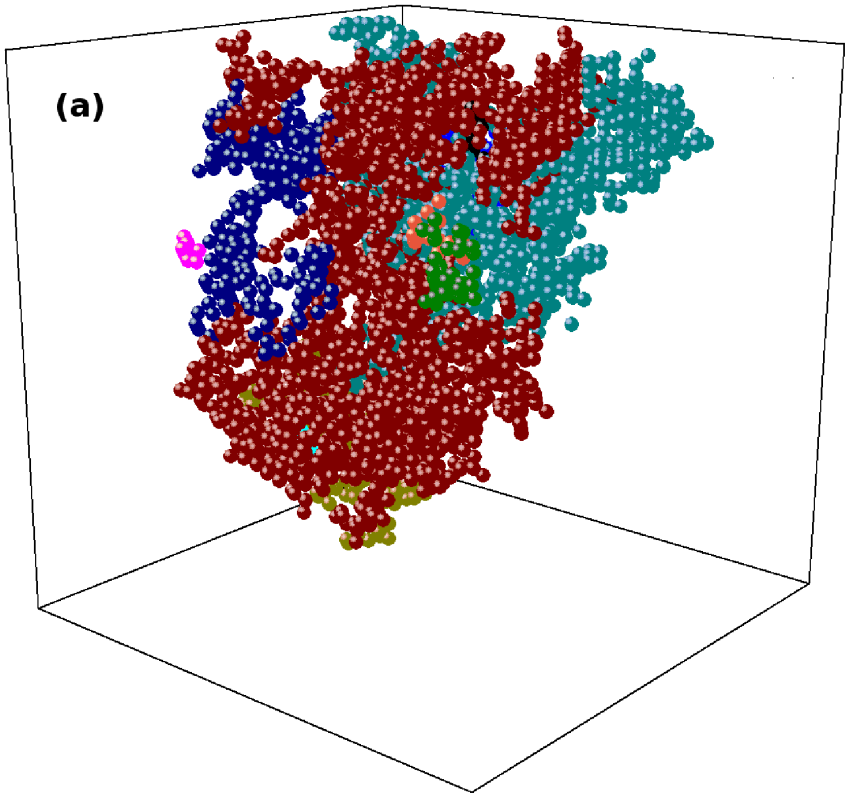

Figura 4.6: Configuração microscópica de spins do CP de um VS a $T/T_f = 0.013$ e $H = 0$. Símbolos com distintas cores diferenciam domínios AF localmente conectados, com orientações reversas de acordo com a sua vizinhança [15].

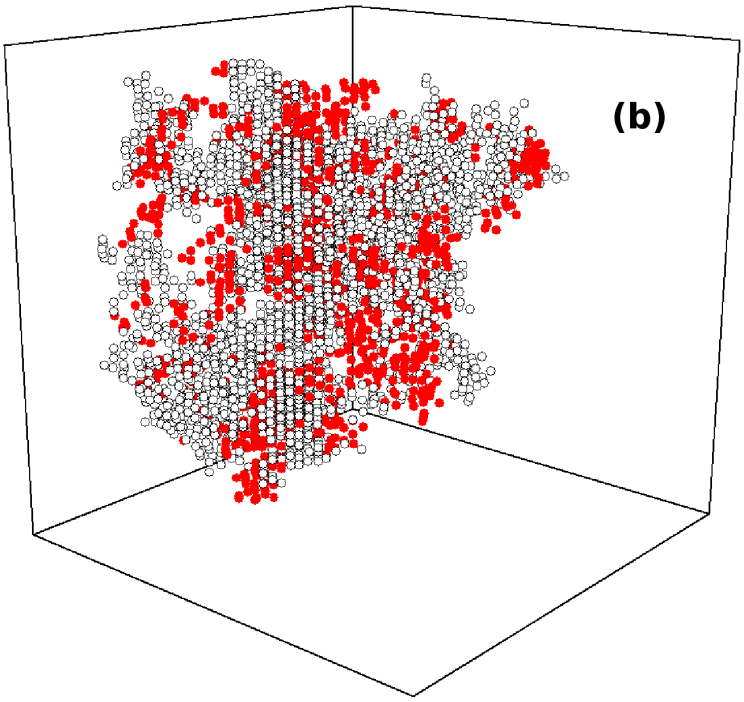

Figura 4.7: Em vermelho temos os *droplets* de spin reversos com relação à configuração de spin apresentada em 4.6, induzidos pela desordem térmica e campo magnético, em $T/T_f = 0.54$ e $H/J_2 = 1$ [15]

Capítulo 5

Conclusão e Discussão

O comportamento do composto $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$, um AF desordenado Ising no limiar da percolação, tem sido bastante estudado em baixas temperaturas e $H = 0$, bem como na presença do campo magnético [38, 11, 9, 40, 41, 20, 12]. Enquanto dados a campo nulo sugerem uma fase VS, o decaimento da linha AT [44] para tempos longos indica um estado termodinâmico metaestável vítreo induzido pelo campo H, em concordância com as previsões da teoria de *droplets* [106].

Enfatizamos que nossos estudos via simulações MC e LMF levaram em conta o hamiltoniano microscópico, com a presença de acoplamentos de spin de curto alcance [20, 62, 1] obtidos a partir do composto $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$, ao invés das usuais distribuições estocásticas das interações de troca.

Como previamente sugerido pelos estudos via MC [12, 64, 87, 66] dos comportamentos termodinâmico, dinâmico, crítico e microscópico (em $H = 0$ na proximidade da percolação - $x_p \approx 0.24$) confirmam a fase VS caracterizada pela ativação de domínios fractais sobre barreiras de energia logarítmicas [26, 27, 28, 29, 30], em contraste com a barreira de energia convencional com lei de potência que apresenta

domínios compactos de acordo com o modelo de *droplets* original [26, 27, 28, 29, 30]. As barreiras logarítmicas de energia também implicam na justificativa física [96, 80]: o decamimento temporal dado por uma lei de potência da função de autocorrelação de spins, com um colapso das curvas para distintos valores de t_w em $H/J_2 \lesssim 1$, conforme discutido no Capíutlo 2.

Em conexão com as descobertas empíricas do decaimento da linha de AT [38], o estado termodinâmico metaestável vítreo com $H \neq 0$ apresenta"*droplets*"de spins reversos em comparação com a fase VS a campo nulo e sugerimos estar relacionado à escala de tempo finito típica dos resultados da nossa simulação. Curiosamente, uma fase vítrea instável na presença de H foi encontrada [107] para o modelo de Ising AF diluído em uma rede bcc quando a concentração se aproxima da concentração de percolação, via métodos de otimização em $T = 0$. Desse modo, podemos conceber a idéia [54, 55, 96] de que uma grande quantidade de tempo pode ser necessária para a relaxação efetiva da fase metaestável termodinâmica com comportamento do tipo VS através da aplicação de um campo magnético externo, com o surgimento de domínios maiores e o decamimento da linha AT.

Por fim, concluímos de nossos resultados sobre o sistema $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$, do tipo Ising aleatoriamente diluído sob efeitos de um campo uniforme que: (i) para temperaturas muito baixas, o comportamento do sistema é dominado pela competição entre as interações antiferromagnéticas, presente entre as subredes, e o campo aplicado; (ii) com o aumento da temperatura, o estado termodinâmico vítreo ou metaestável na presença do campo é consistente com a representação de *droplets* de ativação térmica de clusters fractais correlacionados sobre barreiras de energia logarítmicas perto da concentração de percolação de primeiros vizinhos.

Referências Bibliográficas

[1] M. T. Hutchings, B. D. Rainford e H. J. Guggenheim, J. Phys. C **3**, 307 (1970).

[2] F. C. Montenegro, U. A. Leitão, M. D. Coutinho-Filho e S. M. Rezende, J. Appl. Phys. **67** 5243 (1990).

[3] V. Jacarino and A. R. King, *New Trends in Magnetism* ed. M. D. Coutinho-Filho e S. M. Rezende, World Scientific, Singapure, 1989.

[4] F.C. Montenegro, A. R. King, V. Jaccarino, S. J. Hand e D. P. Belanger, Phys. Rev. B **44**, 2155 (1991).

[5] F. C. Montenegro, S. M. Rezende e M. D. Coutinho-Filho, Rev. Bras. de Fis. (1991).

[6] F. C. Montenegro, A. R. King, V. Jaccarino, S-J. Han e D. P. Belanger, Phys. Rev. B **44**, 2155 (1991).

[7] D. P. Belanger, W. E. Murray Jr., F. C. Montenegro, A. R. King, V. Jaccarino e R. W. Erwin, Phys. Rev. B **44**, 2161 (1991).

[8] A. M. Rosales, F. C. Montenegro e J. M. Ferreira , Europhys. Lett. **50**, 264 (2000).

[9] F. C. Montenegro, S. M. Rezende e M. D. Coutinho-Filho , Europhys. Lett. **8**, pp. 383-388 (1989).

[10] L. L. L. Sousa, L. R. S. Araújo, F. L. A. Machado, F. C. Montenegro, and S. M. Rezende, J. Phys. Conf. Series **200**, 032069 (2010).

[11] F. C. Montenegro, S. M. Rezende e M. D. Coutinho-Filho, J. Phys. (Paris), Colloq. **49**, C8-1007 (1988).

[12] P. H. R. Barbosa e E. P. Raposo e M. D. Coutinho-Filho, Phys. Rev. Lett. **91**, 197207-1 (2003).

[13] W. Barber, D. P. Belanger, Phys. Rev. B **61**, 8960 (2000).

[14] K.A.P. de Lima, E. P. Raposo, and M. D. Coutinho-Filho, Physica A **386**, 644 (2007).

[15] K. A. P. de Lima, J. B. Brito, P. H. R. Barbosa e E. P. Raposo e M. D. Coutinho-Filho, Phys. Rev. B **85**, 064416 (2012).

[16] 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).

[17] J. A. Mydosh, *Spin Glasses: An Experimental Introduction* (Taylor and Francis, 1993).

[18] D. S. Fisher e J A. Hertz, *Spin Glasses* (Cambridge University Press, 1991).

[19] M. Mezard, G. Parisi e M. A. Virasoro, *Spin Glass Theory and Beyond* (World Singapure, 1987).

[20] A. P. Young, *Spin Glasses and Random Fields* editado por A. P. Young (Directions in Condensed Matter Physics **12**, World Scientific 1997).

[21] C. de Dominicis e I. Giardina, *Random Field and Spin Glasses: A Field Theory Approach* (Cambridge University Press, 2006); *Spin Glasses: Statics and Dynamics* (Springer, Berlin, 2009).

[22] D. Sherrington e Scott Kirkpatrick , Phys. Rev. Lett. **35**, 1792 (1975).

[23] G. Parisi , J. Phys. A **13**, 1101 (1980).

[24] G. Parisi , Phys. Rev. Lett. **50**, 1946 (1983).

[25] J. R. L. de Almeida, D. J. Thouless , J. Phys. A: Math. Gen. 11 , 983 (1978).

[26] L. McMillan, Phys. Rev. B **30**, 476 (1984).

[27] A. J. Bray e M. A. Moore, J. Phys. C **17**, L463 (1984).

[28] A. J. Bray e M. A. Moore, Phys. Rev. Lett. **58**, 57 (1987).

[29] D. S. Fisher e D. A. Huse, Phys. Rev. B **38**, 1601 (1986).

[30] D. S. Fisher e D. A. Huse, Phys. Rev. Lett. **56**, 373 (1988).

[31] A. J. Bray e S. A. Roberts, J. Phys. C **13**, 5405 (1980).

[32] J. E. Green, M. A. Moore e A. J. Bray, J. Phys. C **16**, L815 (1983).

[33] G. Migliorini e A. N. Berker, Phys. Rev. B **57**, 426 (1998).

[34] T. Temesvàri e C. De Dominicis, Phys. Rev. B **65**, 224420 (2002).

[35] T. Temesvàri e C. De Dominicis, Phys. Rev. Lett. **89**, 097204 (2002).

[36] M. Sasaki, K. Hukushima, H. Yoshino e H. Takayama, Phys. Rev. Lett. **99**, 137202 (2007).

[37] T. Temesvàri, Phys. Rev. B **78**, 220401(R) (2008).

[38] F. C. Montenegro, S. M. Rezende e M. D. Coutinho-Filho, J. Appl. Phys. **63**, 3755 (1988).

[39] H. A. Katori e A. Ito, J. Phys. Soc. Jpn. **63**, 3122 (1994).

[40] S. M. Rezende, F. C. Montenegro, M. D. Coutinho-Filho, C. C. Becerra e A. J. Paduan-Filho, J. Phys. (Paris) Colloq. **49**, C8-1267 (1988).

[41] F. C. Montenegro, S. M. Rezende e M. D. Coutinho-Filho, Rev. Bras. Fís. **21**, 192 (1991).

[42] J. B. M. da Cunha, J. H. de Araujo, L. Amaral, A. Vasquez, J. T. Moro, S. M. Rezende e M. D. Coutinho-Filho, Hyper. Inter. **54**, 489 (1990).

[43] J. B. M. da Cunha, J. H. de Araujo, L. Amaral, A. Vasquez, J. T. Moro, S. M. Rezende e M. D. Coutinho-Filho, Rev. Bras. Fís. **21**, 115 (1991).

[44] K. Jonason, C. Djurberg, P. Nordblad e D. P. Belanger, Phys. Rev. B **56**, 5404 (1997).

[45] L. W. Bernadi, H. Yoshino, K. Hukushima, H. Takayama, A. Tobo e A. Ito, Phys. Rev. Lett. **86**, 720 (2001).

[46] P. E. Jonsson, H. Yoshino, P. Nordblad, K. A. Katori e A. Ito, Phys. Rev. Lett. **88**, 257204 (2002).

[47] P. E. Jonsson and H. Takayama, J. Phys. Soc. Jpn. **74**, 1131 (2005).

[48] P. E. Jonsson, H.A. Katori, A. Ito, and H. Takayama, Prog. Theor. Phys. Suppl. **157**, 38 (2005).

[49] P. E. Jonsson, H. Takayama, H.A. Katori, and A. Ito, J. Magn. Magn. Mater. **310**, 1494 (2007).

[50] J. Mattsson, T. Jonsson, P. Nordblad, H.A. Katori, and A. Ito, Phys. Rev. Lett. **74**, 4305 (1995); P. E. Jonsson, H. Takayama, H. A. Katori, and A. Ito, Phys. Rev. B **71**, 180412(R) (2005).

[51] E. R. Grannan e R. E. Hetzel , Phys. Rev. Lett. **67**, 907 (1991).

[52] E. Marinari, C. Naitza e F. Zuliani , J. Phys. A **31** 6355 (1998).

[53] E. Marinari, C. Naitza, F. Zuliani, G. Parisi, M. Picco e F. Ritort , Phys. Rev. Lett. **81** 1698 (1998).

[54] H. Takayama and K. Hukushima, J. Phys. Soc. Jpn. **73**, 2077 (2004); *ibid.* **76**, 013702 (2007); M. Sasaki, K. Hukushima, H. Yoshino, and H. Takayama, J. Magn. Magn. Mater. **310**, 1514 (2007).

[55] A. P. Young and H. G. Katzgraber, Phys. Rev. Lett. **93**, 207203 (2004); H. G. Katzgraber and A. P. Young, Phys. Rev. B **72**, 184416 (2005); F. Krzakala, Prog. Theor. Phys. Suppl. **157**, 77 (2005); T. J

[56] Recentemente, foi descoberto por A. Sharma e A. P. Young, Phys. Rev. E **81**, 061115 (2010), que existe uma linha AT para sistemas Ising, da mesma forma que para modelos de spin vetoriais, na presença de um campo magnético não uniforme, que por sua vez é aleatório na direção.

[57] J. Houdayer and O. C. Martin, Phys. Rev. Lett. **82**, 4934 (1999).

[58] E. Marinari, G. Parisi, and F. Zuliani, Phys. Rev. Lett. **84**, 1056 (2000); F. Krzakala, J. Houdayer, E. Marinari, O. C. Martin, and G. Parisi, *ibid.* **87**, 197204 (2001).

[59] J. Lamarcq, J.-P. Bouchaud, and O. C. Martin, Phys. Rev. B **68**, 012404 (2003).

[60] A. Pagnani, G. Parisi, and M. Ratiéville, Phys. Rev. E **68**, 046706 (2003).

[61] F. C. Montenegro, M. D. Coutinho-Filho e S. M. Rezende, J. Appl. Phys. **8** (1988).

[62] D. P. Belanger, Bras. J. Phys. **30**, 682 (2000).

[63] P. H. R. Barbosa, E. P. Raposo e M. D. Coutinho-Filho, J. Appl. Phys. **87**, 6531 (2000).

[64] P. H. R. Barbosa e E. P. Raposo e M. D. Coutinho-Filho, Materials Science Forum, 373-376, (2001).

[65] P. H. R. Barbosa e E. P. Raposo e M. D. Coutinho-Filho, Physica A. **295**, 140 (2001).

[66] P. H. R. Barbosa e E. P. Raposo e M. D. Coutinho-Filho, J. Magn. Magn. Mater. **226-230**, 1293 (2001).

[67] E. P. Raposo, M. D. Coutinho-Filho e F. C. Montenegro , Europhys. Lett. **29**, pp. 507-511 (1995).

[68] E. P. Raposo, M. D. Coutinho-Filho e F. C. Montenegro , J. Magn. Magn. **154**, L155 (1996).

[69] E. P. Raposo e M. D. Coutinho-Filho, J. Appl. Phys. **81**, 5279 (1997).

[70] E. P. Raposo and M. D. Coutinho-Filho, J. Appl. Phys. **83**, 6311 (1998); Phys. Rev. B **57**, 3495 (1998).

[71] A. R. King, V. Jacarino, T. Sakakibara, M. Motokawa e M. Date, J. Magn. Magn. Mater. **31-34**, 1117 (1983).

[72] J. Stout e E. Catolono, J. Chem. Phys. **23**, 2013 (1955).

[73] F. C. Montenegro, S. M. Rezende e M. D. Coutinho-Filho, Phys. Rev. B **44**, 2155 (1991).

[74] F. C. Montenegro, D. P. Belanger, Z. Slanic e J. A. Fernandes-Baca, Phys. Rev. B **61**, 14681 (2000).

[75] P. H. R. Barbosa e E. P. Raposo e M. D. Coutinho-Filho, Phys. Rev. B **72**, 092401 (2005).

[76] S. Fishman e A. Aharony, J. Phys. C **12**, L729 (1979).

[77] J. L. Cardy, Phys. Rev. B **29**, 507 (1984).

[78] Z. Slanic e D. P. Belanger, J. Magn. Magn. Mater. **186**, 65 (1998).

[79] J. R. L. de Almeida e R. Bruinsma, Phys. Rev. B. **37**, 7267 (1987).

[80] J. Esser, U. Nowak e K. D. Usadel , Phys. Rev. B **55**, 5866 (1997).

[81] U. Nowak e K. D. Usadel , Phys. Rev. B **44**, 7426 (1991).

[82] 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).

[83] D. P. Belanger e H. Yoshizawa, Phys. Rev. B **47**, 5051 (1993).

[84] 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).

[85] P. H. R. Barbosa e E. P. Raposo e M. D. Coutinho-Filho, J. Appl. Phys. **8**7, (2000).

[86] 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).

[87] P. H. R. Barbosa, E. P. Raposo e M. D. Coutinho-Filho, J. Appl. Phys. **87**, 6531 (2000).

[88] M. E. J. Newmann and G. T. Barkema, *Monte Carlo Methods in Statistical Physics* (Claredon Press-Oxford, 1999).

[89] S. R. A. Salinas, *Introdução à Física Estatística* (Edusp, São Paulo, 1997).

[90] M. Soukoulis, K. Levin, and G. S. Grest, Phys. Rev. Lett. **48**, 1756 (1982); Phys. Rev. B **28**, 1495 (1983); C. M. Soukoulis, G. S. Grest, and K. Levin, Phys. Rev. Lett. **50**, 80 (1983); C. M. Soukoulis, K. Levin, and G. S. Grest, *ibid.* **56**, 1148 (1986).

[91] D. Chowdhury e B. Biswal, *Annual Review of Computational Physics I* (editado por D. Stauffer, Singapure World Scientific 1994).

[92] I. M. Lifshitz e V. V. Slyozov, J. Phys. Chem. Solids **19**, 35 (1962).

[93] S. M. Allen e J. W. Cahn, Acta Metall. **27**, 1085 (1979).

[94] C. L. Henley, Phys. Rev. Lett. **18**, 2030 (1985).

[95] S. F. Edwards e P. W. Anderson , J. Phys. F **5** (1975).

[96] H. Rieger, J. Phys. A **26**, L615 (1993); B. Steckemetz, M. Schreckenberg, and H. Rieger, Europhys. Lett. **27**, 485 (1994); H. Rieger, in *Annual Review of Computational Physics II*, edited by D. Stauffer (World Scientific, Singapore, 1995), p. 295; Physica A **224**, 267 (1996); J. Kisker, L. Santem, M. Schreckenberg, and H. Rieger, Phys. Rev. B **53**, 6418 (1996); H. Rieger, Phase Transitions **77**, 497 (2004).

[97] M. Picco, F. Ricci-Tersenghi e F. Ritort, Eur. Phys. B **91**, 211 (2001).

[98] H. Rieger, Phase Transitions. **77** (5-7), 497-523.

[99] E. Vincent, J. Hammann, M. Ocio, J.-P. Bouchaud, and L. F. Cugliandolo, in *Complex Behavior in Glassy Systems*, Procedings of the XIV Sitges Conference, 1996, edited by M. Rubí and C. Perez-Vicente (Springer, Berlin, 1997), p. 184.

[100] G. Parisi , Phys. Rev. Lett. **43**, 1754 (1979).

[101] L. F. Cugliandolo e J. Kurchan , J. Phys. A **27**, 5749 (1994).

[102] J. Bouchaud, L. F. Cugliandolo, J. Kurchan e M. Mèzard, World Scientific Singapure, pp. 161-224 (1998).

[103] T. Komori, H. Yoshino, and H. Takayama, J. Phys. Soc. Jpn. **68**, 3387 (1999).

[104] Uma estrutura similar de platôs foi encontrada experimentalmente no comportamento do tipo *random field* para o composto $Fe_xZn_{1-x}F_2$ no regime de moderadas diluições, $x = 0.50$ and $x = 0.73$: A. R. King, V. Jaccarino, T. Sakakibara, M. Motokawa, and M. Date, Phys. Rev. Lett. **47**, 117 (1981); J. Appl. Phys. **53**, 1874 (1982). See, also, Y. Shapira and V. Bindilatti, Appl. Phys. Rev. **92**, 4155 (2002).

[105] H. G. Katzgraber, F. Pázmándi, C. R. Pike, K. Liu, R. T. Scalettar, K. L. Verosub, and G. T. Zimányi, Phys. Rev. Lett. **89**, 257202 (2002); H. G. Katzgraber, D. Hérisson, M.

[106] L. McMillan, Phys. Rev. B **30**, 476 (1984); A. J. Bray and M. A. Moore, J. Phys. C **17**, L463 (1984); Phys. Rev. Lett. **58**, 57 (1987); D. S. Fisher and D. A. Huse, *ibid.* **56**, 1601 (1986); Phys. Rev. B **38**, 373 (1988).

[107] A. Glaser, A. C. Jones, and P. M. Duxbury, Phys. Rev. B **71**, 174423 (2005).