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

DISSERTAÇÃO DE MESTRADO

HISTERESE E IRREVERSIBILIDADE EM VIDRO DE SPIN ISING PRÓXIMO AO LIMIAR DE PERCOLAÇÃO: $Fe_xZn_{1-x}F_2$

por

Janete Batista de Brito

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

Banca Examinadora:

Prof. Mauricio Domingues Coutinho Filho (Orientador-UFPE)
Prof. Ernesto Carneiro Pessoa Raposo (UFPE)
Prof. Frederico Cavalcanti Montenegro (UFPE)
Prof. Edvaldo Nogueira Junior (UFBA)

Recife - PE, Brasil
Novembro - 2003

Brito, Janete Batista de
Histerese e irreversibilidade em vidro de spin ising próximo ao limiar de percolação: $Fe_xZn_{1-x}F_2$ / Janete Batista de Brito - Recife : O Autor, 2003.
xiii, 77 folhas : il., fig., tab.

Dissertação (mestrado) - Universidade Federal de Pernambuco. CCEN. Física, 2003.

Inclui bibliografia.

1. Mecânica estatística. 2. Vidros de spin. 3. Método Monte Carlo. 4. Histerese. 5. Linha Almeida-Thouless. I. Título.

530.13 CDD (22.ed.) FQ2008-044

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

Parecer da Banca Examinadora de Defesa de Dissertação de Mestrado

Janete Batista de Brito

HISTERESE E IRREVERSIBILIDADE EM VIDRO DE SPIN ISING PRÓXIMO AO LIMIAR DE PERCOLAÇÃO: $Fe_xZn_{1-x}F_2$

A Banca Examinadora composta pelos Professores Mauricio Domingues Coutinho Filho (Presidente e Orientador), Ernesto Carneiro Pessoa Raposo (Co-orientador), Frederico Cavalcanti Montenegro, todos da Universidade Federal de Pernambuco e Edvaldo Nogueira Junior da Universidade Federal da Bahia consideram o candidato:

( ) Aprovado com Distinção (X) Aprovado ( ) Reprovado

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 aos onze dias do mês de novembro de 2003.

Prof. Mauricio Domingues Coutinho Filho
Presidente e Orientador

Prof. Ernesto Carneiro Pessoa Raposo
Co-orientador

Prof. Frederico Cavalcanti Montenegro

Prof. Edvaldo Nogueira Junior

Dedico esta dissertação à toda minha família, em especial ao meu Pai Veríssimo, minha irmã Jane e em memória da minha mãe Júlia.

Agradecimentos

Tenho muito agradecer a tantos, espero poder contemplar a todos aqui neste espaço.

Ao Prof. Maurício pela exelente orientação, pela confiança, entusiasmo e dedicação com o nosso trabalho.

Ao Prof. Ernesto obrigada pela co-orientação, sempre disposto ao pronto atendimento das minhas solicitações.

A Renê, se eu pudesse ele seria meu segundo co-orientador, sua ajuda ao longo da realização deste trabalho foram fundamentais para o desempenho satisfatório, obrigada, muito obrigada.

Ao Prof. Paulo Henrique (UFPI), pelos os programas sem os quais não teria realizados este trabalho obrigada também pela as orientações iniciais.

Aos amigos aqui conquistados, Pedro Hugo, Cássia, Leonardo (obrigada pela força nessa fase final), Gustavo Camelo, Mário Henrique, Alexandre Carvalho, aos amigos Cubanos, Ernesto e Roberto e também ao amigos colombianos, José José e Luiz Arturo.

A Ricardo Alexandre, meu anjinho, pela amizade, carinho compreensão, paciência e companheirismo principalmente nos momentos difícieis, se eu venci voçê tem uma parte significativa na minha vitória.

A Dona Fátima e Seu Pedro, obrigada pela sempre boa acolhida na sua casa.

A Rubens e Robson e Eveline minha quase "família" neste mais de 2 anos.

Ao Gustavo, sempre amigo, sempre presente.

Raquel, Ulisses, Memória, Roberto e Fernanda meus amigos do Piauí, mesmo distantes sempre se fizeram presentes.

Ao meu Pai a pessoa mais importante na minha vida. A Jane, a distância nos fez aprender como é ser irmã e amigas.

A todos funcionários DF, em especial Ana Caldeira, sempre amiga e prestativa.

À CAPES, CNPq, Finep e Facepe pelo apoio financeiro.

Resumo

Na presente dissertação realizamos estudos através de simulação computacional, utilizando o método Monte Carlo (MC) do antiferromagneto (AF) diluído $Fe_xZn_{1-x}F_2$, próximo da região de percolação ($x = 0.24$) e na presença de um campo magnético externo H. O sistema AF $Fe_xZn_{1-x}F_2$ mostra-se para $x = 0.25$ com características típicas de um Vidro de Spins (VS's) genuíno, com uma temperatura crítica bem definida. Por meio de um modelo microscópico adequado para a descrição de AF diluídos, em que as razões entre as constantes de trocas medidas no sistema são consideradas, mostramos através da ultilização da simulação MC que, para baixas temperaturas, o sistema $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ possui uma forte dependência com a história da medida ou do procedimento numérico utilizado. Os valores obtidos através das medidas da magnetização, quando resfriamos a campo magnético nulo e posteriormente aquecemos com campo magnético não-nulo (ciclo ZFC), são diferentes dos valores quando a medida é feita com resfriamento e aquecimento com campo magnético não nulo ou finito (ciclo FC). Em particular, estudamos a dependência temporal das magnetizações remanentes associadas aos dois ciclos, FC e ZFC, após a retirada do campo magnético. Essa forte dependência com a história evidenciou-se, também, nos resultados que obtivemos para as curvas de histerese e para a linha de Almeida-Thouless, com os resultados sendo comparados com os obtidos experimentalmente e por outros métodos teóricos.

Palavras Chave: Vidros de Spin, Método Monte Carlo, Modelo de Ising, Antiferromagneto, Ciclo FC e ZFC, Linha Almeida-Thouless, Histerese, Magnetização Remanente.

Abstract

In this dissertation we study, through a Monte Carlo (MC) computer simulation, the diluted antiferromagnet (AF) $Fe_xZn_{1-x}F_2$ near the percolation region ($x = 0.24$) and in the presence of an external magnetic field H. The system AF $Fe_xZn_{1-x}F_2$ reveals for $x = 0.25$, with typical charactersitics of a genuine spin glass (SG), with a well defined critical temperature. Through a microscopic model suitable to describe diluted AF's, in which the reasons between the constants of exchange measurements in the system are considered, we show through simulation that for low temperatures the system $Fe_xZn_{1-x}F_2$ has a strong dependence with the history of measurements or the used numerical procedures. The values obtained through magnetization measurements when we cool the null magnetic field and later we heat with not-null magnetic with field (ZFC cycle) are different from the ones obtained when this measurement is done with cooling and heating with not-null or finite magnetic field (FC cycle). In particular, we study the time dependence of the remanent magnetizations associated with the two refered cycles, FC and ZFC, after the withdrawal of the magnetic field. This strong dependence with history was proven, also, in the results we got for the curves of histeresis and the line of Almeida-Thouless. Our data are compared with results obtained by experiment and by other theoretical methods.

Keywords: Spin Glasses, Monte Carlo Methods, Ising Model, Antiferromagnet, FC and ZFC Cycle, line of Almeida-Thouless, Histeresis e Remanent Magnetization.

Sumário

1 Introdução **2**

1.1 Sistemas Desordenados 2

1.1.1 Modelo de Ising 3

1.2 Vidros de spin 7

1.2.1 Definição, características e propriedades 7

1.2.2 Alguns modelos teóricos 10

2 O Antiferromagneto Desordenado $Fe_xZn_{1-x}F_2$ **17**

2.1 O Antiferromagneto FeF_2 18

2.2 O Antiferromagneto Diluído $Fe_xZn_{1-x}F_2$ 21

2.3 Dinâmica de Sistemas Desordenados ou Diluídos 22

2.3.1 Dinâmica do Antiferromagneto Diluído $Fe_xZn_{1-x}F_2$ 25

2.4 Comportamentos REIM e RFIM no $Fe_xZn_{1-x}F_2$: $(0.4 < x < 1.0)$ . . 29

2.5 A Fase Vidro de Spin do $Fe_xZn_{1-x}F_2$ 32

2.5.1 Irreversibilidade do $Fe_xZn_{1-x}F_2$: $x = 0.31$ e $x = 0.25$ 32

2.5.2 Histerese do $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ 37

2.5.3 Magnetização Remanente no $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ 38

3 Método Monte Carlo Aplicado ao Antiferromagneto Diluído $Fe_xZn_{1-x}F_2$ 41

3.1 O Método Monte Carlo 42

3.2 Implementação do Método Monte Carlo ao Sistema $Fe_xZn_{1-x}F_2$ . . . 46

4 Descrição MC da Irreversibilidade e Histerese de um Vidro de Spin Ising Próximo ao Limiar da Percolação: $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ 50

4.1 Ciclos FC-ZFC, Irreversibilidade e Linha de Almeida-Touless 51

4.2 Histerese e Irreversibilidade 55

4.3 Simulação MC para Magnetização Remanente: Ciclos FC-ZFC e Relaxação 60

5 Conclusões e Perspectivas 66

Referências Bibliográficas 68

Lista de Figuras

1.1 Gráfico da energia livre F de um vidro de spin em função da coordenada ϕ do espaço de fase que mede a projeção do estado considerado em um estado ordenado particular, segundo a versão de Parisi [84] para o modelo de SK [14]. O gráfico menor mostra a situação de um ferromagneto Ising para comparação [74]. Está configuração é semelhante à prevista por Fisher e Huse [16, 89] usando o modelo de "gotas" para o VS's. 14

2.1 Célula unitária da rede tetragonal centrada (BCC) do isolante FeF_2 mostrando os três tipos de interações de troca J_l entre os íons Fe^{+2} pimeiros vizinhos, ao longo das várias direções da estrutura cristalina [22]. A configuração AF está indicada pelo arranjo de spins. 18

2.2 Diagrama de fases H *vs* T do FeF_2, [90] mostrando as fronteiras de fases $AF - SF$ e $AF - PM$, representadas pelas linhas cheias, e as linhas de estabilidade representadas pelas linhas tracejadas. 20

2.3 Magnetização (M) *vs* temperatura (T) para o FeF_2 nas proximidades da temperatura de transição $T_c(H)$. As setas indicam a posição aproximada de $T_c(H)$ para cada valor de campo. As linhas tracejadas indicam a inclinação da curva acima e abaixo de $T_c(H)$ [67] 21

2.4 Evolução esquemática do diagrama H *vs* T para o composto $Fe_xZn_{1-x}F_2$ com x. Observe que, para um determinado valor de campo e concentração x, a linha $T_{eq}(H)$ começa a mudar sua curvatura, indicando a mudança de comportamento RFIM-VS. Este ponto marca o fim da linha $T_c(H)$ onde deixa de existir a ordem AF de longo alcance, [29, 93]. 23

2.5 (fig.da esquerda) χ *vs* T, medidas Jonason e colaboradores [117]. Os pontos quadrados pretos indicam a posição máxima da χ, na análise de Barbosa e colaboradores [78, 20], os círculos pretos são os máximos encontrados por Jonason e colaboradores [117]; (fig. da direita) χ *vs* T, dados de Rezende e colaboradores [68] 28

2.6 (fig. da esquerda)Tempo de relaxação, t, em função da temperatura T, associado ao máximo da susceptibilidade, com o melhor ajuste de pontos, segundo Jonason e colabodores [117];(fig. da direita) Gráfico semi-log do tempo máximo de relaxação t em função da temperatura T [78]. Observa-se que o melhor ajuste não é uma linha reta. 28

2.7 Curvas de Histerese, $M \times H$, para o composto $Fe_{0.48}Zn_{0.56}F_2$: (Fig. da esquerda) ciclo FC com presença de laço assimétrico; (Fig. da direita) Ciclo FC, apresentando reversibilidade e ausência de laço na histerese. 30

2.8 Diagrama $H \times T$ mostrando a curva de irreversibilidade para o $Fe_{0.48}Zn_{0.52}F_2$, com expoente $\phi = 1.4$. 31

2.9 Diagrama H *vs* T para o $Fe_{0.31}Zn_{0.69}F_2$, mostrando a mudança de comportamento de fraca irreversibilidade (linha 1) para forte irreversibilidade (linha 2) na magnetização [35, 66]. 32

2.10 (a) Dependência da magnetização com a temperatura do $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$, para os procedimentos ZFC e FC, em vários campos aplicados. (b) Linha de irreversibilidade H *vs* T, a linha tracejada indicam a estimativa experimental [12], com expoente $\phi = 3.4$; A linha traço-pontilhada indicam o valor AT[13] ($\phi = 3.0$); as linhas cheias indicam o melhor ajuste das curvas LMF, $\phi = 3.8 \pm 0.6$. O dados (a) e (b) foram obtidos através de simulação campo médio sítio-a-sítio (LMF) . 34

2.11 Dependência da magnetização com a temperatura do $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$, para os procedimentos ZFC e FC, em vários campos aplicados. 35

2.12 Linha de irreversibilidade H *vs* T, mostrando a dependência de $T_i(H)$, a linha sólida é um ajuste de $T_i - T_0 \sim H^{2/\phi}$, onde $\phi = 3.4$. A linha pontilhada é linha de Almeida-Touless (AT) [13], com $\phi = 3$. O dados (a) e (b) foram obtidos experimentalmente por Montenegro e colaboradores [41, 66]. 36

2.13 (a) Histerese em $T = 5.1K$ e no detalhe $T = 1.3K$. (b) Dependência com T do calor específico C_m e $H = 0$, para os casos $J_3/J_2 = 0$, $J_3/J_2 = 0.053$. 36

2.14 M *vs* H para o $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ em $T = 4.5$K. (Fig. da Esquerda) Resultado experimental [12]. (Fig. da Direita) Método Monte Carlo [13]. O *inset* mostra o surgimento de uma estrutura de degraus no ciclo de histerese em $T = 1.13$K. 37

2.15 (Fig. da Esquerda) Magnetização Remanente do composto $(Fe_{0.15}Ni_{0.85})_{75}P_{16}B_6Al_3$, para várias temperaturas, aqui $M_S = M_0 t^{-m} \exp[-(t/\tau_p)^{1-n}$ Granberg e colaboradores [114]; (Fig. da Direita) Dependência Temporal da Magnetização Remanente (M_{Rem}), após um ciclo ZFC, $M_{rem} \sim S(T,H)ln(t)$, conforme Montenegro e colaboradores [41, 66]. 40

2.16 Magnetização Isoremanente e termorremanente (IRM e TRM) para o $Fe_xZn_{1-x}F_2$. (a) $x = 0.25$, comportamento VS; (b) $x = 0.48$, comportamento REIM. 40

4.1 Resultados de simulação MC para o composto $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$, mostrando a dependência com a temperatura das magnetizações para os ciclos FC-ZFC, para vários campos aplicados: (a) $J_3/J_2 = 0.053$; (b) $J_3/J_2 = 0$; (c) e (d) Exibem os ciclos FC-ZFC para $H = 0.3$ e $H = 0.05$, para os casos com e sem a frustação, J_3. Nota-se que a influência de J_3 é maior em baixas temperaturas e baixos campos magnéticos. 52

4.2 Resultados de simulação MC para o composto $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$: (a) Ciclo FC-ZFC para H=0.4, o detalhe mostra a região de encontro da curva FC com a curva ZFC. (b) Linha AT de irreversibilidade induzida pelo campo. A linha tracejada indicam nossa estimativa da simulacão MC com expoente $\phi = 3.4 \pm 0.6$ e $T_i(0) = 0.94 \pm 0.4$. A Linha cheia representa a linha Almeida-Thouless [83], $\phi = 3.0$. Nessa figura utilizamos as medidas MC com $J_3 = 0$, os quais foram realizadas com melhor resolução na proximidade de $T_i(H)$. 54

4.3 Histerese do sistema $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ para várias temperaturas obtida por simulação MC. Observe a presença de laço simétrico para $T < T_i(H)$. Para $T > T_i(H)$ a medida que T aumenta percebe-se a dependência linear para altas temperaturas e baixos campos. 56

4.4 Histerese do $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$, obtida experimentalmente por Montenegro e colaboradores [67, 41]. Compare com as Fig.4.3. 57

4.5 (a) Resultados de simulação MC para a magnetização em função da temperatura num ciclo ZFC. O detalhe mostra que mesmo variando H a magnetização para T muito baixa é praticamente constante. (b) Ciclo de histerese do composto $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ em $T \ll T_f$. Pode-se observar a formação de degraus com magnetizações bem definidas. O detalhe mostra que a variação de H nos degraus não altera o valor da magnetização. 59

4.6 Gráfico Log-Log da M_{Rem} de sub-rede em função do tempo, obtida por simulação MC por Barbosa e colaboradores [78]. As linhas contínua correspodem aos ajustes dos pontos. 62

4.7 Resultados de simulação MC para M_{Rem} para os procedimentos FC (TRM) e ZFC (IRM), para tempos iniciais observa-se um comportamento de lei de potência $M_{rem} \sim t^{-\alpha}$ e para tempos longos nota-se um comportamento logaritmico para a $M_{Rem} \sim -\beta ln(x)$ 62

4.8 Resultados de simulação MC para M_{Rem} para o procedimento FC (TRM). (a) Campos baixos. (b) Campos altos. 63

4.9 Resultados de simulação MC para M_{Rem} para o procedimento ZFC (IRM). (a) Campos baixos. (b) Campos altos. 63

4.10 Dependência dos expoentes α e β com o campo H 64

4.11 Resultados de simulação MC, mostrando a dependência da M_{Rem} com os campo H, para diferentes tempos de relaxação. 65

Capítulo 1

Introdução

1.1 Sistemas Desordenados

O entendimento do estado da matéria condensada foi um dos temas dominantes da física no século 20, tendo início quando van der Waals estudou a transição líquido-gás e Weiss desenvolveu a teoria do campo médio para o ferromagnetismo. Sabe-se hoje que a matéria em suas diferentes fases é caracterizada por diferentes propriedades de simetria. Os materiais sólidos reais sempre apresentam algum tipo de desordem "congelada" (*quenched*), seja na forma de defeitos ou impurezas, ou mesmo nas suas propriedades estruturais. Em algumas classes de materiais essas características dominam completamente a física do sistema. De fato, isso já havia sido observado há séculos atrás quando metalúrgicos constataram que a mistura de carbono e ferro, em proporções adequadas, adquiria especial dureza; temos, hoje, que ligas e vidros, podem ser quimicamente projetados de modo a apresentar propriedades diferentes de um material puro ou com estruturas periódicas. Portanto,

além de sua significância para materiais reais, a presença de desordem ou frustação desafia os métodos e idéias dos físicos teóricos e experimentais, em contraposição aquelas concebidas no contexto de sistemas puros com invariância translacional. Nesse sentido, materias reais e modelos físicos apresentando desordem ou frustação, tais como: os Vidros de Spin (VS's), o modelo de Ising com interações de troca (*Random Exchange Ising Model* - REIM) e campo aleatórios (*Random Field Ising Model* - RFIM), bem como antiferromagnetos desordenados; encontram-se não totalmente entendidos, apesar do grande progresso e do esforço científico realizado, principalmente, nessas duas últimas décadas [36]. Um completo entendimento dos mecanismos responsáveis por tais propriedades envolve o conhecimento de muitas áreas da física, que vai desde a física estatística de sistemas aleatórios frustados e vítreos a redes neurais.

Neste contexto, o antiferromagneto (AF) Ising, aleatoriamente diluído e com uma estrutura tridimensional, $Fe_xZn_{x-1}F_2$ é certamente um dos compostos mais interessantes [101]. Onde o rico diagrama de fases inclui regiões paramagnéticas, (AF), (REIM), (RFIM) e (VS's) que depende da concentração x de íons magnéticos, do campo aplicado H e da temperatura T. Nessa dissertação apresentaremos uma modelagem microscópica para a descrição da fase (VS's) observada neste composto [66, 67, 41] .

1.1.1 Modelo de Ising

Modelos teóricos são comumente utilizados para a descrição e caracterização de sistemas magnéticos, bem como suas possíveis realizações experimentais.

Um dos modelos mais utilizados no estudo de sistemas magnéticos é o modelo

de Ising, cuja Hamiltoniana em uma de suas formas mais gerais é dado por:

$$\mathcal{H} = -\sum_{<i,j>} J_{i,j} S_i S_j - \sum_i h_i S_i - H \sum_i S_i, \tag{1.1}$$

onde $S_i = (\pm 1)$ é o spin do i-ésimo sítio de uma rede d-dimensional, $J_{i,j}$ é a da interação de troca entre os spins nos sítios i e j e h_i e H são os campos magnéticos local e externo, respectivamente.

No caso de h_i e H nulos e uma constante de interação somente entre pares de spins primeiros vizinhos e $J > 0$, esta Hamiltoniana descreve o caso do modelo de Ising ferromagnético puro. Quando a dimensão da rede é maior que a dimensão crítica inferior ($d_l = 1$), este modelo prevê uma transição de fase de segunda ordem entre a fase ferromagnética (F) e a fase paramagnética (PM) a uma temperatura $T = T_c \neq 0$. Onde o parâmetro de ordem da transição é a magnetização média por spin, $M =< S_i >$, que é nula acima de T_c e não nula abaixo de T_c, onde $< ... >$ significa uma média térmica. Os expoentes críticos do modelo de Ising ferromagnético puro foram obtidos tanto experimentalmente quanto teoricamente, por meio de técnicas como a de simulação Monte Carlo e expansões em séries [6].

Random Exchange Ising Model-**REIM**. Quando a amplitude e/ou o sinal de $J_{i,j}$ entre pares de vizinhos variam aleatoriamente de acordo com uma determinada distribuição de probabilidade e $h_i = H = 0$, temos o modelo Ising de trocas aleatórias (REIM). Para $J_{i,j} > 0$ e $h_i = H = 0$, o REIM pode ser de duas formas:

(i) Diluição por sítio: Neste caso $J_{i,j} = J\mathcal{E}_i\mathcal{E}_j$, com $\mathcal{E}_i = 0$ ou 1 sendo uma variável de ocupação que dos sítios não magnéticos e magnéticos, respectivamente. Essa ocupação obedece a uma determinada distribuição de probabilidade de ocupação

$P(\mathcal{E}_i)$, que pode ser, por exemplo, uma distribuição bimodal:

$$P(\mathcal{E}_i) = p\delta(\mathcal{E}_i - 1) + (p-1)\delta(\mathcal{E}_i) \tag{1.2}$$

(ii) Diluição por ligação: Agora $J_{i,j} = J\mathcal{E}_{i,j}$ é uma variável aleatória com $\mathcal{E}_{i,j} = 0$ ou 1, indicando se existe ou não uma ligação entre qualquer par de sítios $\mathcal{E}_{i,j}$ primeiros vizinhos i e j. Neste caso, temos ainda que J é uma constante e as ligações entre pares de spins obedecem, por exemplo, uma distribuição bimodal,

$$P(\mathcal{E}_{i,j}) = p\delta(\mathcal{E}_{i,j} - 1) + (p-1)\delta(\mathcal{E}_{i,j}) \tag{1.3}$$

.

(iii) Uma outra distribuição também comumente usada é a gaussiana em que:

$$P(J_{i,j}) = (1/\sqrt{2\pi J}\exp(-J_{i,j}^2/J^2), \tag{1.4}$$

com média nula e variância J^2.

O parâmetro de ordem do REIM é o mesmo do Ising puro. O diagrama de fases do REIM já está bastante estabelecido [79]. Em Magnetos aleatórios próximo da concentração de percolação, a dinâmica crítica pode apresentar características pouco comuns, o que nos revela o surgimento de domínios devido à natureza auto-similar dos domínios (*clusters*).

No modelo *Random Field Ising Model*-**RFIM**: $J_{i,j}$ é mantido constante e um campo local h_i é introduzido. Com $H = 0$ a distribuição de probabilidade $P(h_i)$ é de simetria par, desse modo os campos apontam para cima e para baixo aleatoriamente com média nula. O comportamento desse modelo é governado pela competição en-

tre as interações de troca que tendem a alinhar os spins ferromagneticamente e a tendência desses spins se alinharem com seus campos aleatórios locais descorrelacionados. Em simulação Monte Carlo a distribuição mais usada é a bimodal, que para esse modelo pode ser descrita da seguinte forma:

$$P(h_i) = \frac{1}{2}\,\delta(h_i - h) + \frac{1}{2}\,\delta(h_i + h), \tag{1.5}$$

onde metade dos spins experimentam um campo positivo de amplitude h. Na construção desse modelo também pode-se usar a distribuição gaussiana.

Assim como o REIM, o RFIM tem o mesmo parâmetro de ordem do sistema Ising puro. Para $(h_i^2) \gg J$ temos que a desordem prevalece e o sistema encontra-se na fase PM. Contudo, se $(h_i^2) \ll J$ temos a existência de uma ordem de logo alcance na presença de campos aleatórios para sistemas tridimensionais, mas não para sistemas bidimensionais [46].

Experimentalmente é impossível aplicar um campo local h_i que varie aleatoriamente ponto a ponto em materiais reais. Fishmann e Aharony [81] verificaram entretanto, que campos aleatórios locais podem ser gerados aplicando-se um campo magnético baixo em um antiferromagneto fraca ou moderadamente diluído. Assim, apesar do RFIM ser um modelo teórico, sabe-se que ele descreve a física de uma ampla classes de sistemas [98], que incluem transição de fases estruturais, misturas de fluidos binários em meios porosos, dentre outras.

No modelo *Diluted Antiferomagnet in a Field*-**DAFF** ou antiferromagneto Ising diluído na presença de um campo magnético uniforme, a Hamiltoniana é dada por:

$$\mathcal{H} = \sum_{<i,j>} J\mathcal{E}_i\mathcal{E}_j - S_iS_j - H\sum_i \mathcal{E}_iS_i. \tag{1.6}$$

Para $J > 0$ temos o estado fundamental antiferromagnético e $\mathcal{E}_i = 0$ ou 1 é a variável de ocupação do sítio i, com média $\bar{\mathcal{E}}_i = x$ ou $[\mathcal{E}_i] = x$. Se o campo for nulo temos o comportamento típico de REIM, para campos baixos e fraca diluição. As flutuações na concentração local de sítios magnéticos em cada sub-rede tendem a favorecer o alinhamento da sub-rede mais populada com a direção do campo, gerando dessa forma campos efetivos locais que competem com a ordem de longo alcance global AF. Portanto, controlando H é possível distinguir as propriedades de REIM's das de RFIM's, bem como caracterizar a mudança do comportamento (*crossover* REIM-RFIM). O estudo de sistemas DAFF nos permite, portanto, a realização experimental e teórica de sistemas RFIM [81, 11].

1.2 Vidros de spin

1.2.1 Definição, características e propriedades

Podemos definir Vidros de Spins (VS's) como um sistema magnético em que os momentos magnéticos estão congelados em direções aleatórias, abaixo de uma certa temperatura de congelamento T_f (*freezing*). A posição aleatória dos átomos magnéticos e a natureza das interações produzem acoplamentos F ou AF entre os momentos magnéticos. Para que tenhamos tais estados de desordem congelada dois ingredientes são necessários: (i)Competição ou frustação entre os momentos, ou seja, ausência de uma única configuração estável ou de energia mínima, tal que que esta configuração não trivial de spin seja unicamente favorecida por todas as interações, (ii) e segundo que tais interações deva no mínimo ser parcialmente aleatórias.

A teoria dos vidros de spin surgiu da necessidade de se explicar uma série de

resultados experimentais relacionados inicialmente a ligas metálicas diluídas. Muitos acreditavam que o comportamento vidro de spin dependiam sensivelmente de características particulares desta classe especial de sistemas. Agora sabe-se, contudo, que não é assim, pois os estados VS's podem também ser encontrados em isolantes magnéticos, como por exemplo, o composto $Fe_xZn_{x-1}F_2$, que vamos estudar neste trabalho, e também nos materiais amorfos.

A descrição de "desordem congelante" nos sugere que estamos diante de um estado onde a magnetização espontânea local $m_i =< S_i >$ em um dado sítio i é não nula, porém a magnetização média $M = N^{-1}\sum_i m_i = 0$, assim como qualquer magnetização "*staggered*". Como já mencionado, o primeiro exemplo de um sistema VS's consistiu de ligas diluídas de metais de transição magnéticos com metais nobres hospedeiros [12]. O indício de que sistemas VS's exibiam efeitos cooperativos de longo alcance, e portanto uma transição de fase, foi observado por Canella e Mydosh [12] no início dos anos 70 do século passado, de um máximo em T_f nas medidas de susceptibilidade ac no metal Cu fracamente diluído com Mn. Experimentos de espalhamentos de nêutrons, entretanto, mostraram que esta não era uma transição de fase usual, visto que não se observara nenhum pico de Bragg, associado a um ordenamento magnético de longo alcance. A partir de então, sistemas VS's passaram a ser o foco de inúmeras pesquisas teóricas e experimentais.

Pelo lado experimental os sistemas que exibem comportamento VS são hoje classificados em dois grandes grupos: os metálicos, que são constituídos de metais nobres hospedeiros, fracamente diluído com íons de metais de transição, (Au com Fe), por exemplo, e os compostos isolantes, em que uma fração dos íons magnéticos são aleatoriamente substituídos por íons não-magnéticos, geralmente caracterizados pelo seu caráter cristalino e anisotrópico, cujo Eu_xSr_{1-x} é um representante típico.

Os VS's metálicos também são caracterizados por interações de longo alcance, conhecidas por interações do tipo RKKY, os quais apresentam um comportamento que decai com uma lei de potência e oscila entre valores negativos e positivos, dependendo somente da distância entre os núcleos atômicos magnéticos:

$$J(R) = J_0 \frac{\cos\left(2k_F R + \phi_0\right)}{\left(k_F R\right)^3}, \tag{1.7}$$

onde R representa a distância entre os núcleos atômicos magnéticos, J_0 e ϕ_0 são constantes e k_F é módulo do vetor de onda de Fermi do metal nobre puro.

O estudo experimental de sistemas VS's requer, além da boa caracterização das amostras e do uso de instrumentos de alta sensibilidade, um adequado procedimento experimental para que a resposta da medida não leve a uma interpretação dúbia. A necessidade de rigor no tratamento experimental deve-se principalmente ao fato desses sistemas apresentarem uma relaxação lenta, dessa forma os efeitos de não-equilíbrio estão presentes em todas as escalas de tempo. Em face dos diversos experimentos a que um material é submetido, uma dúvida se faz presente: quais propriedades um material deve ter para que o mesmo possa ser classificado como um VS's? Hoje existe um consenso de que além do congelamento dos momentos magnéticos abaixo de T_f, dentro da escala de observação experimental, o material deve apresentar as seguintes propriedades:

(i) magnetização (M) e susceptibilidade (χ) dc dependentes da história, para temperaturas abaixos de T_f, ou seja, M e χ medidas após resfriamento a campo nulo (*zero field cooling*-ZFC) apresentam resultados diferentes dos obtidos após resfriamento com campo aplicado (*field coling*-FC);

(ii) desvios da lei de Curie na susceptibilidade dc para $T \geq T_f$;

(iii) presença de ciclos de histerese com campo magnético para $T < T_f$;

(iv) remanências na magnetização, isto é, termoremanência (TRM) medida após ciclo FC e isoremanência(IRM) após ciclo ZFC, ambas com relaxação lenta;

(v) cúspide na susceptibilidade ac (χ_{ac}) para baixos campos e frequências, que se arredonda à medida em que se intensifica o campo aplicado e cuja localização tende para temperaturas mais baixas com a diminuição da frequência;

(vi) ausência de anomalia no calor específico próximo de T_f;

(vii) ausência de picos de Bragg nas medidas de espalhamento de nêutrons;

(viii) criticalidade na susceptibilidade não-linear.

1.2.2 Alguns modelos teóricos

A descrição de um modelo capaz de reproduzir as características experimentais do VS's tem sido até hoje um desafio. Embora já existam muitas propostas que avançaram no estudo de VS's, ainda não existe um modelo único que seja capaz de reunir todas as informações microscópicas suficientes à reprodução de todas as características de um VS's. Na criação de um modelo teórico para o VS's devemos ter em mente os ingredientes microscópicos e/ou estocásticos que sejam capazes de reproduzir as características experimentais e também possa nos conduzir a um estado fundamental VS's [13]. Os resultados experimentais em VS's metálicos, onde as interações entre os momentos magnéticos (spins) são do tipo RKKY, sugerem que estes devem ter uma competividade local nas interações entre os spins e um certo grau de desordem. A competividade local entre as interações leva ao efeito conhecido por "frustação", ou seja, de que não existe uma configuração única de spins que seja capaz de satisfazer a todas as essas ligações simultaneamente.

A seguir, dissertaremos brevemente sobre alguns dos modelos teóricos mais co-

mumente utilizados para a descrição de sistemas VS.

Modelo de Edwards-Anderson (EA). Em 1975, Edwards e Anderson (EA) [14] deram um grande passo na tentativa de explicar as propriedades experimentais dos sistemas VS's. Propuseram um modelo (modelo EA) em que a desordem e a frustação eram introduzidas através de uma distribuição de probabilidades para as interações entre pares de spins aleatórias. Seja, por exemplo, o hamiltoniano de Ising, Eq.(1.1), para o caso em que as interações $J_{i,j}$ entre os pares de spins são aleatórias e simetricamentes distribuídas em torno do zero, isto é, tenham momentos $[J_{i,j}] = 0$ e $[J_{i,j}^2] = J^2$, de acordo com a gaussiana:

$$P(J_{i,j}) = \frac{1}{\sqrt{2\pi J}} \exp\left(\frac{-J_{i,j}^2}{2J^2}\right). \tag{1.8}$$

Pode-se também usar uma distribuição de probabalidades bimodal ou uma distribuição onde temos $\pm J$, considerada mais adequada para o tratamento dos VS's isolantes.

No modelo de EA a magnetização total a campo nulo não é o parâmetro de ordem, uma vez que o seu valor também é nulo, devido ao congelamento de spins em direções aleatórias. Então EA propuseram um novo parâmetro de ordem, (parâmetro de ordem de EA), que leva em conta o efeito deste congelamento através de uma função de autocorrelação temporal de spins:

$$q_{EA} = lim_{t\to\infty} lim_{N\to\infty} [< \vec{S}_i(0) \cdot \vec{S}_i(t) >] = [< S_i >^2], \tag{1.9}$$

onde t é o tempo, N é o número de spins e $[...]$ e $< ... >$ representam médias sobre a desordem e térmica respectivamente. Se instante t_1 no o spin da posição i possui uma dada orientação, S_i na fase ordenada, haverá uma grande probabilidade dele estar

nessa mesma posição no instante $t_2 > t_1$, ou seja, $q_{EA} \neq 0$. Na fase paramagnética (altas temperaturas), a orientação local dos spins é totalmente aleatória, e $q_{EA} = 0$.

Um tratamento de campo médio deste modelo foi capaz de prever uma transição de fase de segunda ordem a uma temperatura T_f, caracterizada por um pico na susceptibilidade, de acordo com observações experimentais, além de outras propriedades de VS's [13]. O modelo de EA passou então a ser o modelo VS's mais estudado. De fato, investigações teóricas e numéricas baseadas no modelo de EA têm possibilitado importantes avanços na busca de esclarecimentos sobre as propriedades de sistemas VS's reais [13].

Modelo de Sherrington-Kirkpatrick (SK). Usando como ponto de partida o modelo EA, Sherrington e Kirkpatrick (SK) propuseram um modelo no qual as interações são de longo alcance, de forma que cada spin interage igualmente com todos os outros. A hipótese de longo alcance, embora não represente nenhum sistema real, permite uma abordagem de campo médio para que o problema possa ser tratado de forma exata. A solução do modelo SK foi obtida através do chamado truque das réplicas, obtendo-se também um parâmetro de ordem VS's não nulo abaixo de T_f, bem como um "cúspide" na susceptibilidade para $T_i = J$. Utilizando variáveis de spins Ising ($S_i = \pm 1$), as constantes de troca aleatórias continuam seguindo uma distribuição gaussiana, ou seja:

$$P(J_{i,j}) = \frac{1}{\sqrt{2\pi J}} \exp\left[\frac{-(J_{i,j} - J_0)^2}{2J^2}\right], \tag{1.10}$$

onde neste caso,

$$J_0 = \frac{\tilde{J}_0}{N}, \tag{1.11}$$

e o desvio padrão,

$$J = \frac{\tilde{J}}{N}, \tag{1.12}$$

são devidamente escalados. Na solução desse modelo SK notaram que é necessário calcular o valor médio da energia livre, ao invés do valor médio da função de partição. Fazendo-se a média sobre a distribuição de probabilidades diretamente na função de partição somos levados a um problema em que as constantes $J_{i,j}$ entram em equilíbrio térmico da mesma forma que os spins S_i. Esses sistemas são conhecidos como sistemas "recozidos" (*quenched*), e a amostra é resfriada muito rapidamente quando preparada e os acoplamentos adquirem valores aleatórios, porém fixos.

Almeida e Thouless (AT) [83] mostraram que a solução de SK era instável para $H = 0$ e $T < T_f$ e as soluções SK para $H \neq 0$ são estáveis acima da linha:

$$\frac{T_f(0) - T_f(H)}{J} = \left(\frac{3}{4}\right)^{1/3} \left(\frac{H}{J}\right)^{2/3}, \tag{1.13}$$

conhecida como linha AT.

Parisi [84], ao introduzir o conceito de "quebra de simetria de réplicas", foi capaz de obter um grande número de soluções estáveis a partir das equações de campo médio para $T < T_f$. Assim, a linha de AT passou a delimitar a fronteira acima da qual a solução de SK é correta e abaixo da qual vale a solução de quebra de simetria de réplicas de Parisi, a qual está associada a uma estrutura de muitos mínimos no espaço de fase e aos processos de irreversibilidades do sistema.

Modelo de "Gotas¨ ou (*Droplets*). No estudo teórico do VS's seu estado é caracterizado por um tipo de ordem, que abaixo de T_f os spins "congelam" cooperativamente em direções aleatórias, ou seja, o sistema não apresenta ordem de longo alcance convencional (F ou AF) e sua dinâmica é extremamente lenta. Uma

possível consequência da desordem e da frustação é o aumento na complexidade da fase VS's, a degenerecência do estado fundamental, o que proporciona uma energia livre no espaço de fase com uma estrutura de muitos máximos e mínimos locais (estados metaestáveis), separados entre si por altas barreiras de energia, como mostra a Fig.(1.1).

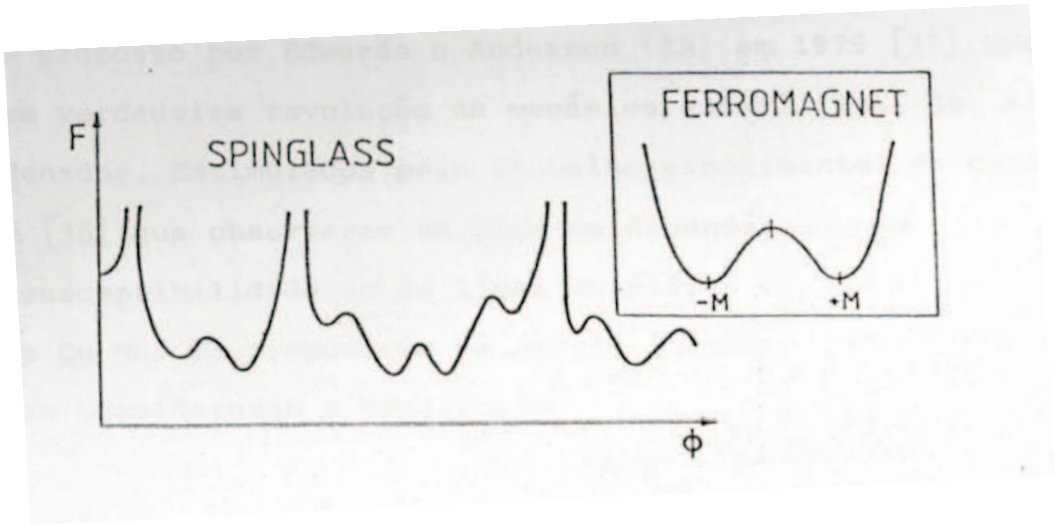

Figura 1.1: Gráfico da energia livre F de um vidro de spin em função da coordenada ϕ do espaço de fase que mede a projeção do estado considerado em um estado ordenado particular, segundo a versão de Parisi [84] para o modelo de SK [14]. O gráfico menor mostra a situação de um ferromagneto Ising para comparação [74]. Está configuração é semelhante à prevista por Fisher e Huse [16, 89] usando o modelo de "gotas" para o VS's.

No entanto, Fisher e Huse [16, 89], defendem que apesar da complexidade do sistema, o estado fundamental do VS's a $H = 0$, com interação de curto alcance, é apenas duplamente degenerado como em um ferromagneto puro, veja detalhe da Fig.(1.1), e que qualquer campo $H \neq 0$ é capaz de destruir a fase VS's. Esta modelagem fenomenológica é conhecida como "modelo de Gotas (*droplets*)" e é bastante diferente do que foi proposto por Parisi em sua solução de campo médio do modelo

de SK.

O modelo de "gotas", proposto por Fisher e Huse [16, 89], foi fundamentado em estudos numéricos, incluindo teoria de escala e grupo de renormalização. Segundo Fisher e Huse os domínios de spins reversos (*droplets*) em relação ao estado fundamental, induzidos por campos ou por flutuações térmicas, têm relaxação extramente lenta e os estado VS's de equilíbrio só é atingido no limite de tempos infinitos. Neste modelo admite-se que as excitações de ordem mais baixa, numa escala de comprimento L são *droplets* compactos, com cerca de L^d spins invertidos coerentemente, com um custo energético proporcional a L^θ, com $0 < \theta < (d-1)/2$. A energia dos *droplets* na escala L apresenta-se amplamente distribuída, com peso baixo para a energia zero. Os restantes dos *droplets* estão termicamentes ativados, com energias de excitações menores ou da ordem de $k_B T$. Em consequência, as correlações temporais decaem com $r^{-\theta}$ e a susceptibilidade não-linear diverge na fase de baixas temperaturas, o que tem um papel muito importante nas propriedades de equilíbrio da fase ordenada VS's. A dinâmica das excitações de *droplets* é governada pela ativação térmica sobre as barreiras de energia cujas alturas escalam com L^ψ, com $\theta \leq \psi \leq (d-1)$. De acordo com este modelo, uma fase VS à $T \neq 0$ será prevista somente para $\theta > 0$ e superfície dos *droplets* muito rugosas, com dimensão fractal $d < D_f < (d-1)$. O fato das barreiras de energia livre termicamente ativadas escalarem com L^ψ, dá origem a uma dinâmica extremamente lenta. Fisher e Huse [87, 86], mostraram que autocorrelações de spins decaem como $(\ln T)^{-\theta/\psi}$ para tempos curtos e a susceptibilidade não linear diverge com a frequência quando $\omega \to 0$, como uma potência de $\ln \omega$. Finalmente, o fato de qualquer campo magnético não-nulo ser capaz de destruir a fase VS faz este modelo se contrapor com previsão do modelo de SK, o que implica em uma interpretação dinâmica para a linha de AT,

no sentido que esta tende a desaparecer no limite de longos tempos de observação. Os modelos descritos acima para VS's são ditos estocásticos [20], com distribuição de probabilidades $P(J_{ij})$ interações entre os spins.

Em nosso trabalho, entretanto, realizamos simulações MC a partir do hamiltoniano DAFF *microscópico* [42], adequado para a descrição do composto $Fe_xZn_{1-x}F_2$, incorporando inclusive, os valores experimentalmente medidos das interações de troca entre os spins. Desse modo, esperamos investigar por meio dessa descrição microscópica a ação da desordem e da frustação na formação da fase vítrea e sua conexão com a chamada fase "vidro de spin canônica".

Capítulo 2

O Antiferromagneto Desordenado $Fe_xZn_{1-x}F_2$

O antiferromagneto (AF) diluído $Fe_xZn_{1-x}F_2$, com seu rico diagrama de fases, constitui um excelente sistema magnético desordenado, que pode ser estudado através de modelos teóricos. Apesar do esforço de teóricos e experimentais, ainda não se tem um completo entendimento dos mecanismos microscópicos responsáveis por todas as manifestações dos variados comportamentos observados neste sistema [101, 36].

Neste capítulo discutiremos as propriedades magnéticas características do sistema $Fe_xZn_{1-x}F_2$, dando um enfoque especial para a fase vítrea, com a concentração, x, de íons magnéticos de Fe^{+2}, próxima do limiar de percolação, $x_p = 0.24$. Além disso, abordaremos os resultados experimentais, e os de modelagens teóricas.

2.1 O Antiferromagneto FeF_2

O sistema FeF_2 é um AF isolante com estrutura cristalina tetragonal de corpo centrada (BCC) do tipo rutila, Fig.(2.1), possuindo uma forte anisotropia de modo a fazer com que seus spins se orientem ao longo de um eixo fácil. Esse sistema constitui uma realização experimental quase perfeita de um sistema Ising tridimensional, onde as interações de troca entre íons são de primeiros vizinhos. Do ponto de vista estrutural, o FeF_2 é isomorfo ao composto diamagnético ZnF_2 e aos compostos magnéticos MnF_2 e CoF_2. Na estrutura do FeF_2 cada íon de Fe^{+2} tem seis íons de F^- como seus vizinhos mais próximos. A campo magnético nulo, o FeF_2 sofre uma transição AF-PM a uma temperatura de Néel, $T_N = 78.4K$ [23, 24].

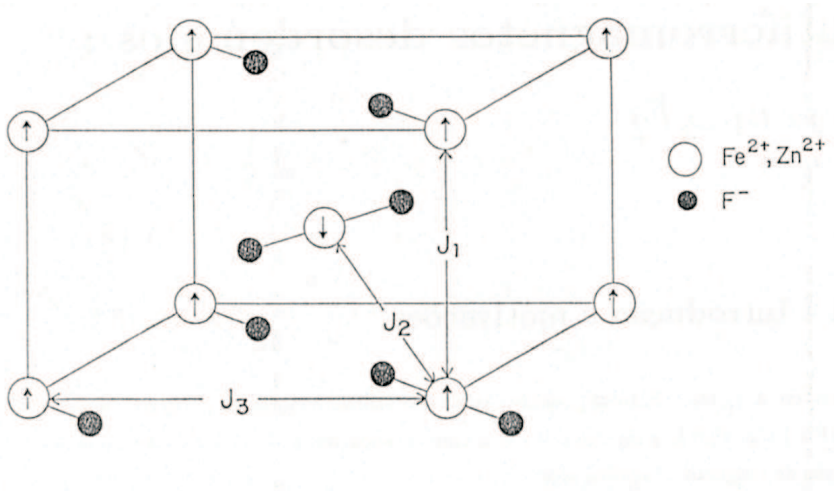

Figura 2.1: Célula unitária da rede tetragonal centrada (BCC) do isolante FeF_2 mostrando os três tipos de interações de troca J_l entre os íons Fe^{+2} pimeiros vizinhos, ao longo das várias direções da estrutura cristalina [22]. A configuração AF está indicada pelo arranjo de spins.

A Hamiltoniana do sistema é dado por:

$$\mathcal{H} = \sum_{<m,\delta_l>} \sum_{l=1,2,3} J_l \, \vec{S_m} \cdot \vec{S}_{m+\delta_l} + \sum_i \mathcal{H}_s^i + \mathcal{H}_{dip}, \tag{2.1}$$

onde o primeiro termo leva em conta as interações de troca (*exchange*) entre pares de spins Heisenberg ($S = 2$) vizinhos de sub-redes diferentes ($l = 2$) e pares de vizinhos na mesma sub-rede ($l = 1, 3$). O segundo termo,

$$\mathcal{H}_s^i = -DS_{iz}^2 + E(S_{ix}^2 - S_{iy}^2), \tag{2.2}$$

leva em conta os efeitos de campo cristalino e o acoplamento spin-órbita dos íons Fe^{+2} (simetria ortorrônica), que é dominado pela forte anisotropia de íon único do sistema. O terceiro termo da Hamiltoniana representa a contribuição das fracas interações dipolares magnéticas.

Hutchings e colaboradores [22], mediram experimentalmente os principais parâmetros da Hamiltoniana: $J_1 = -0.048 \pm 0.060 cm^{-1}$, $J_2 = +3.64 \pm 0.10 cm^{-1}$, $J_3 = +0.194 \pm 0.060 cm^{-1}$ e $D = 6.46 \pm 0.29 cm^{-1}$. As possíveis contribuições do termo dipolar foram incluídas, e as contribuições dos vizinhos mais distantes foram ignoradas. Então temos que a interação AF J_2, veja a Fig.(2.1) é a dominante, enquanto que o pequeno acoplamento planar AF J_3 pode ser responsável pela presença de frustação no sistema.

O sistema AF FeF_2 puro apresenta-se bem caracterizado, com expoentes críticos que o colocam na mesma classe de universalidade do modelo de Ising $3D$ [25]. O diagrama de fases AF-PM e *AF-spin-flop*, [97, 26, 90] está representado na Fig.(2.2). Os círculos abertos representam os dados de magnetização [24], através dos quais os ajustes com linhas cheias foram efetuados. A fronteira AF-PM é representada pelas

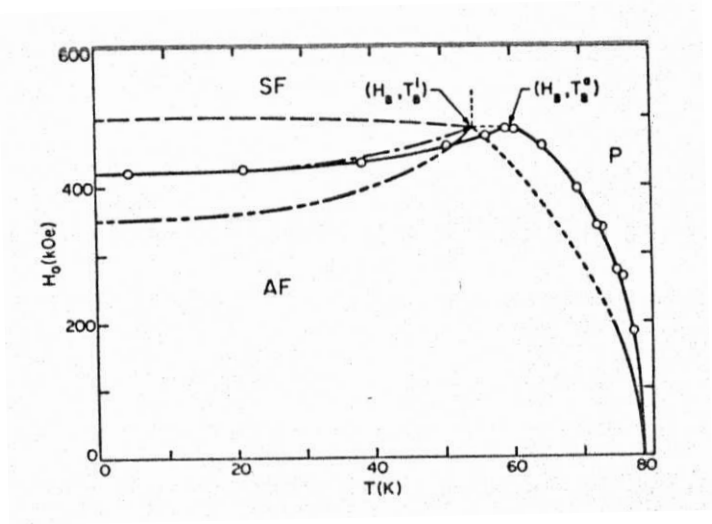

Figura 2.2: Diagrama de fases H *vs* T do FeF_2, [90] mostrando as fronteiras de fases $AF-SF$ e $AF-PM$, representadas pelas linhas cheias, e as linhas de estabilidade representadas pelas linhas tracejadas.

linhas tracejadas. A três linhas tracejadas na parte superior da Fig.(2.2) indicam os pontos críticos: *Spin-Flop* (SP) (H_{SF}) pela linha tracejada com pontos; O limite de estabilidade de fase AF(H_c^{AF}) é indicado pela linha simples tracejada; O limite de estabilidade de fase *Spin-Flop* (SP) (H_c^{SF}) representada pela linha tracejada com dois pontos. A linha de transição de fase de primeira ordem *AF-spin-flop*(SP) encontra a linha de transição de segunda ordem *AF-P* num ponto bicrítico (H_B, T_B). A linha de estabilidade (linha cheia), que separa as fases AF e *spin-flop* (SP) apresenta pouca variação com a temperatura.

Montenegro [67] mostrou que a aplicação de um campo magnético inferior a 50K e na direção do eixo fácil, não modifica de forma apreciável a temperatura de transição, o que é esperado acontecer para um antiferromagneto puro, com forte anisotropia uniaxial como é o caso do sistema FeF_2, veja Fig.(2.3).

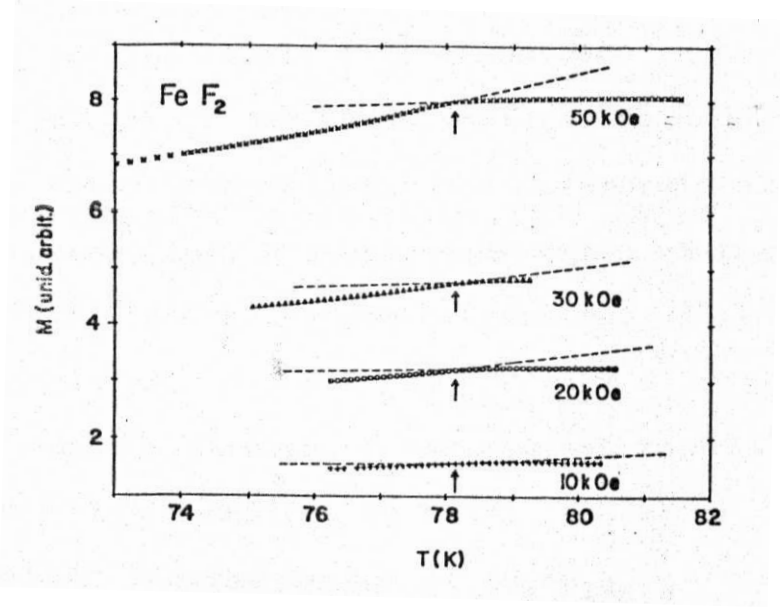

Figura 2.3: Magnetização (M) *vs* temperatura (T) para o FeF_2 nas proximidades da temperatura de transição $T_c(H)$. As setas indicam a posição aproximada de $T_c(H)$ para cada valor de campo. As linhas tracejadas indicam a inclinação da curva acima e abaixo de $T_c(H)$ [67]

.

2.2 O Antiferromagneto Diluído $Fe_xZn_{1-x}F_2$

A introdução da desordem em um sistema pode ser feita através do processo de diluição por sítio, que venha a ser a substituição aleatória de íons magnéticos por outros tipos de íons magnéticos ou não-magnéticos. Este é o procedimento geralmente usado experimentalmente para produzir cristais desordenados. No caso do antiferromagneto FeF_2 essa desordem pode ser introduzida, substituindo-se uma fração $1-x$ dos íons magnéticos Fe^{+2} por íons não-magnéticos Zn^{+2}. Apesar do íon Zn^{+2} não ser magnético, ele possui propriedades químicas similares ao do íon

Fe^{+2}. Dessa forma o sistema $Fe_xZn_{1-x}F_2$ ainda pode ser modelado através de um sistema Ising $3D$ [22], pois podemos levar em conta a forte anisotropia de íon único, para toda a extensão da concentração x e campos magnéticos H baixos.

O Hamiltoniano Ising do sistema diluído $Fe_xZn_{1-x}F_2$ é escrito como:

$$\mathcal{H}' = \frac{\mathcal{H}}{J_2} = \sum_{<i,i+\delta_l>} j_l \mathcal{E}_i \mathcal{E}_{i+\delta_l} \mathcal{S}_i \mathcal{S}_{i+\delta_l} - g\mu_B H \sum_i \mathcal{E}_i \mathcal{S}_i, \tag{2.3}$$

onde $\mathcal{S}_i = \pm 1$, $\mathcal{E}_i = 0, 1$ representam os índices de ocupação do sítio i, com valor médio $\overline{\mathcal{E}}_i = x$, $j_l = J_l/J_2$ e $l = 1, 2, 3$ que está relacionado aos três tipos de interações de troca entre os sítios vizinhos. O Segundo termo representa a interação de Zeeman com um campo magnético uniforme externo H (em unidades de J_2), os valores de J_1, J_2, J_3 continuam inalterados com a diluição.

Montenegro e colaboradores [29, 93] propuseram um diagrama (H, T, x), veja Fig.(2.4), mostrando como seria a evolução das linhas críticas e de equilíbrio em função do campo magnético quando $x \to x_p$. Nessa representação esquemática é mostrado que à medida que $x \to x_p$, campos cada vez menores induzem um comportamento VS, e que na vizinhança de x_p somente a linha $T_{eq}(H)$ exibe o comportamento VS.

2.3 Dinâmica de Sistemas Desordenados ou Diluídos

O primeiro aspecto a ser investigado em um sistema magnético, seja em um estudo experimental ou teórico, diz respeito às suas propriedades de equilíbrio. Os sistemas desordenados, como o antiferromagneto $Fe_xZn_{1-x}F_2$, em seu regime de forte

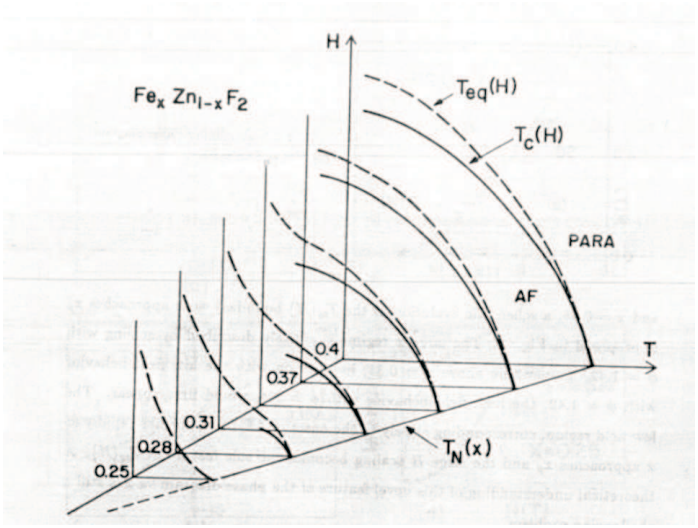

Figura 2.4: Evolução esquemática do diagrama H *vs* T para o composto $Fe_xZn_{1-x}F_2$ com x. Observe que, para um determinado valor de campo e concentração x, a linha $T_{eq}(H)$ começa a mudar sua curvatura, indicando a mudança de comportamento RFIM-VS. Este ponto marca o fim da linha $T_c(H)$ onde deixa de existir a ordem AF de longo alcance, [29, 93].

diluição, são caracterizados por tempos de relaxação extremamentes longos. Para uma escala de tempo de laboratório, ou em simulação numérica, temos efetivamente, uma situação de quasi-equilíbrio. Portanto, ao se medir as propriedades estáticas em sistemas magnéticos pressupõe-se que estes estejam em equilíbrio dinâmico estacionário, ou seja, que a dinâmica seja invariante sob translações temporais. Para sistemas puros, e fora da região crítica, a dinâmica estacionária é rapidamente atingida. Entretanto, na vizinhança de uma transição de fase de segunda ordem ocorre o fenômeno conhecido como "*Critical Slowing Down*", caracterizado pelo crescimento do tempo relaxação τ e do comprimento de correlação ξ, relacionados da seguinte forma [30]:

$$\tau \sim \xi^z, \quad \xi \sim (T - T_c)^{-\nu}, \quad quando \quad T \to T_c, \tag{2.4}$$

onde z é o expoente crítico dinâmico, que independe da temperatura e é universal. Perto de T_c, os domínios formados devido às flutuações térmicas, têm dimensão linear máxima da ordem de ξ.

A introdução da desordem no sistema, seja pela substituição dos íons ou pela presença de um campo aleatório, altera substancialmente sua dinâmica, fazendo com que a relaxação dos domínios se processe de forma muito lenta. A desordem em geral, origina barreiras de energia livre que dificultam o movimento das interfaces dos domínios [98] de dimensão linear R. Se $\Delta E(R)$ é a barreira de energia a ser contornada no movimento da interface do domínio, então o tempo para que isso aconteça será dado por uma lei do tipo Arrhenius:

$$\tau(R) \sim \tau_0 \exp\left[\frac{\Delta E(R)}{k_B T}\right], \tag{2.5}$$

que constitui a hipótese de dinâmica termicamente ativada [98].

Um dos pontos relevantes para o entendimento das propriedades físicas de sistemas magnéticos desordenados é entender como estes evoluem a partir de uma situação de não-equilíbrio. Em geral, no estudo de fenômenos de crescimento de domínios o sistema é rapidamente resfriado a partir da fase PM para uma fase na qual existe algum de ordenamento magnético. Durante este processo, a evolução do tamanho dos domínios é monitorada no tempo [98]. Todos os sistemas puros conhecidos têm um crescimento do tipo lei de potências, $R(t) \sim t^n$, sendo $R(t)$ o tamanho linear característicos dos domínios e n um expoente que depende da dimensionalidade do parâmetro de ordem. Para sistemas puros do tipo Ising, $n = 1/2$, em todas as dimensões [32]. O crescimento dos domínios para sistemas Ising Diluídos

segue comportamento logaritímico para tempos longos da seguinte forma:

$$\frac{R(t)}{R_0} \sim \left[\frac{k_B T \ln(t/\tau_0)}{\Delta(T)}\right]^{1/\psi}, \tag{2.6}$$

onde $\Delta(T)$ define a escala das barreiras de energia livre. Quando $T \rightarrow T_c$, uma previsão fenomenológica para a dinâmica [31, 33] é obtida para $R \sim \xi$, isto é,

$$\ln(t/\tau) \sim \frac{1}{k_B T_c}\xi^{\psi}, \qquad com \qquad \xi \sim (T - T_C)^{-\nu}, \tag{2.7}$$

Na vizinhança do limiar de percolação, x_p, as barreiras crescem logaritmicamente com R, isto é, $\Delta R \sim \Delta T ln(R/R_0)$. O conhecimento do processo de relaxação na vizinhança da temperatura crítica é assim muito importante para uma correta análise dos expoentes críticos e a identificação da natureza da transição em um determinado sistema.

2.3.1 Dinâmica do Antiferromagneto Diluído $Fe_xZn_{1-x}F_2$

A dinâmica de sistemas magnéticos com desordem congelada (VS, REIM e RFIM), vem sendo bastante estudada [98] e em particular o composto $Fe_xZn_{1-x}F_2$, tem recebido especial atenção. Acima da percolação, a dinâmica crítica REIM é similar ao do sistema puro FeF_2, mas com tempos de relaxação muito maiores. Por exemplo, a taxa de relaxação do composto $Fe_{0.46}Zn_{0.52}F_2$ se mostra [107] duas ordens de magnitude maior do que para o sistema puro. Nessa faixa de diluição ($x \geq 0.46$), as propriedades RFIM do composto $Fe_xZn_{1-x}F_2$, a campo nulo têm despertado grande interesse. Como já dito antes, o comportamento RFIM do com-

posto $Fe_xZn_{1-x}F_2$, ocorre com um campo $H \neq 0$, e estudo da dinâmica RFIM é feito analisando-se os observáveis após um ciclo ZFC. Um dos efeitos do campo aleatório induzido é que além da dinâmica ser extremamente lenta, temos o surgimento de histerese observada em medidas da magnetização.

Na fase de baixas temperaturas as investigações experimentais [53, 120], do comportamento RFIM do composto $Fe_xZn_{1-x}F_2$ tem revelado que a estrutura é determinada pela competição entre o custo energético entre ligações não satisfeitas, devido a spins primeiros vizinhos, e o ganho devido aos campos aleatórios e ligações aleatórias. Por outro lado a metaestabilidade presente neste caso, decorre da presença de múltiplos mínimos na energia livre, correspondente a configurações de spins diferentes. Quando o campo é desligado os estados de domínios relaxam e a ordem de longo alcance é novamente estabelecida.

No caso de forte diluição ($x \leq 0.31$) [106, 117], em especial no regime REIM, observou-se que a dinâmica é extremamente lenta em decorrência da forte desordem. No composto, $Fe_{0.31}Zn_{0.69}F_2$, por exemplo, tem-se verificado [106], que para esta diluição o sistema ainda suporta uma transição PM-AF, e que o grau de ordem AF de longo alcance é função da taxa de esfriamento. No entanto, na vizinhança da percolação ($x = 0.25$), onde as propriedades magnéticas sofrem muitas alterações. Além da ausência de ordem AF de longo alcance [100], diversos resultados experimentais [35], simulações de campo médio sítio-a-sítio [38] e simulações MC [78] têm mostrado que o composto $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ a campo nulo é um genuíno VS. Jonason e colaboradores [117] estudaram as propriedades magnéticas e dinâmicas do composto $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$, por meio de medidas da relaxação magnética *dc* e por susceptibilidade *a.c.* e questionaram estes resultados. Segundo estes autores, embora o sistema apresente propriedades típicas de VS, como a depência do pico da susceptibilidade

com a frequência e fenômenos de *aging*, a dinâmica de baixas temperaturas observada foi do tipo lei Arrhenius, indicando ausência de comportamento crítico a $T \neq 0$. Esta afirmação de que o sistema relaxa de acordo com a lei de Arrhenius, não se ajusta para valores razoáveis dos parâmetros envolvidos e vai de encontro com os resultados de Rezende e colaboradores [68], em que um bom ajuste de dados foi obtido com a hipótese de dinâmica crítica usual ultilizando a seguinte relação de escala:

$$\Delta\chi' \sim (T/T_f - 1)^{\beta} F(x), \tag{2.8}$$

Barbosa e colaboradores [78, 20] submeteu as medidas realizadas por Jonason e colaboradores, ao tratamento de escala dado pela Eq.(2.8), encontrando um bom ajuste para curvas com valores $z\nu = 7.5$, $\beta = 1.0$ e $T_f = 9.5$K. Tais resultados coincide com os obtidos por Rezende e colaboradores [68], que obtiveram ($z\nu = 7.5$, $\beta = 1.0\, e\, T_f = 9.95K$). Onde também foi observado que outros conjuntos de parâmetros também produzem bons ajustes de dados para este composto, fornecendo valores de T_f no intervalo $9.0K < T_f < 10.0K$, com $7.5 < z\nu < 9.0$, valores tipicamente encontrados em vidros de spin genuínos [13]. Valores maiores de $z\nu$ levam a menores valores de T_f. Assim, mesmo o valor característico da fase RFIM, $z\nu = 14$ [91], gerou um bom ajuste, mas para um valor de T_f excessivamente baixo.

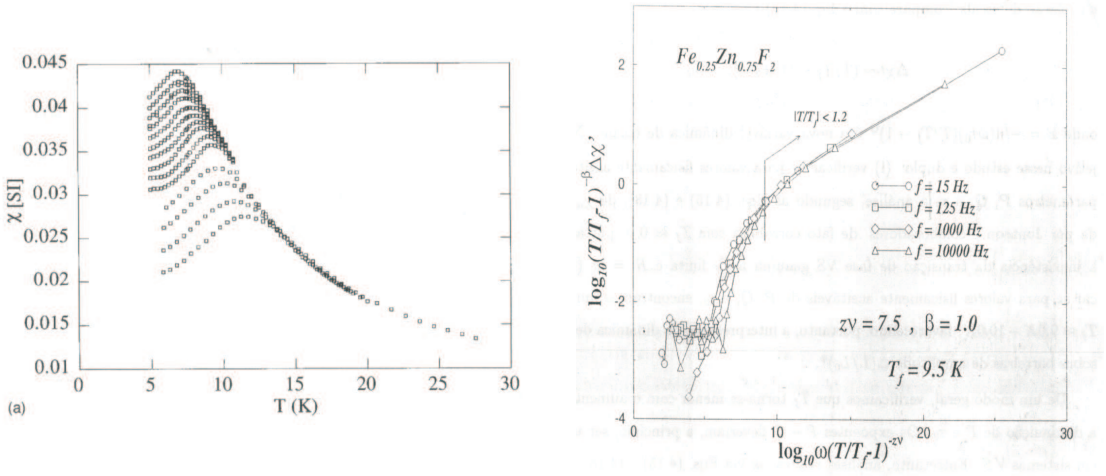

Figura 2.5: (fig.da esquerda) χ *vs* T, medidas Jonason e colaboradores [117]. Os pontos quadrados pretos indicam a posição máxima da χ, na análise de Barbosa e colaboradores [78, 20], os círculos pretos são os máximos encontrados por Jonason e colaboradores [117]; (fig. da direita) χ *vs* T, dados de Rezende e colaboradores [68]

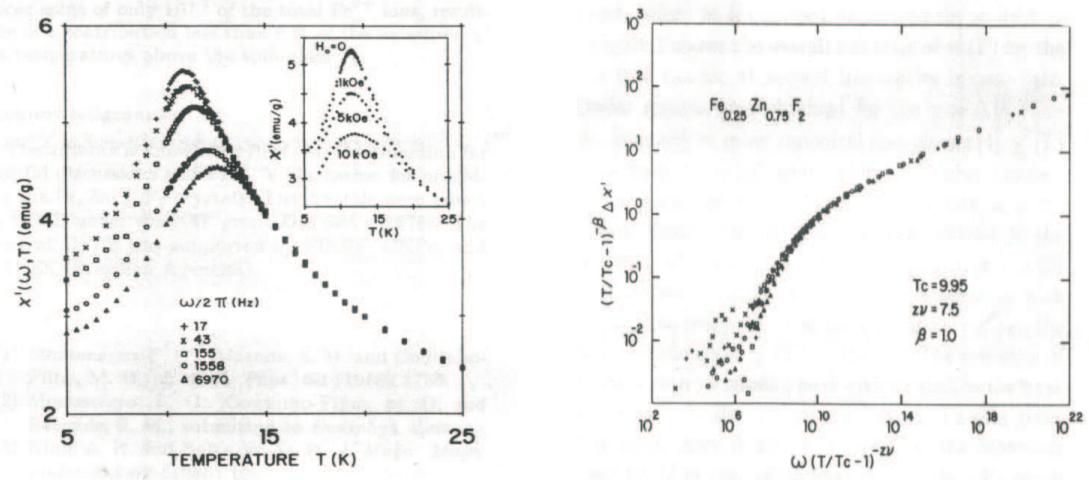

Figura 2.6: (fig. da esquerda)Tempo de relaxação, t, em função da temperatura T, associado ao máximo da susceptibilidade, com o melhor ajuste de pontos, segundo Jonason e colabodores [117];(fig. da direita) Gráfico semi-log do tempo máximo de relaxação t em função da temperatura T [78]. Observa-se que o melhor ajuste não é uma linha reta.

2.4 Comportamentos REIM e RFIM no $Fe_xZn_{1-x}F_2$: $(0.4 < x < 1.0)$

A riqueza de comportamentos observados no composto $Fe_xZn_{1-x}F_2$ está associada à variação dos parâmetros macroscópicos: concentração x, temperatura T e campo magnético H, aliados à natureza e ao alcance das interações microscópicas do composto. Isso faz com esse sistema seja um excelente laboratório para análise de diversos comportamentos e fases magnéticas, como veremos a seguir.

A introdução da desordem, como dito no Cap.1, provoca uma mudança do comportamento crítico deste sistema. A campo magnético nulo, $H = 0$, e fraca diluição, $0.4 < x < 1.0$, o sistema $Fe_xZn_{1-x}F_2$, apresenta comportamento crítico REIM, a temperatura de Néel $T_N(x)$ decresce como a concentração de íons magnéticos, anula-se próximo ao limiar de percolação geométrico, $x = x_p \approx 0.24$ [99].

A aplicação de um campo magnético ($H \neq 0$), para essa faixa de diluição, leva o sistema a sofrer uma mudança do comportamento crítico REIM para o RFIM, que é governado pela competição entre a tendência ao ordenamento AF de longo alcance devido às interações J_{ij} e a tendência da subrede mais populada de se alinhar com o campo H. Esta mudança no comportamento crítico sugere que se houver uma transição de fase esta ocorrerá em uma nova temperatura dada por:

$$T_c(H) = T_N - bH^2 - cT_N H^{2/\phi}, \tag{2.9}$$

onde T_N é temperatura de Néel, c é uma constante, b é o coeficiente do termo de correção de campo médio e ϕ é o expoente do cruzamento (*crossover*) REIM-RFIM.

Os diferentes experimentos realizados com o composto $Fe_xZn_{1-x}F_2$ mostraram que o comportamento crítico é estático para $x \geq 0.46$ [104, 92], após um ciclo ZFC, quando o sistema apresenta ordem AF de longo alcance estável para campos baixos e $T < T_c(H)$, bem como reversibilidade (ausência de histerese). Este comportamento é diferente daquele que o sistema apresenta após um ciclo FC, pois agora o sistema apresenta domínios metaestáveis, com presença de histerese em baixas temperaturas [104, 35].

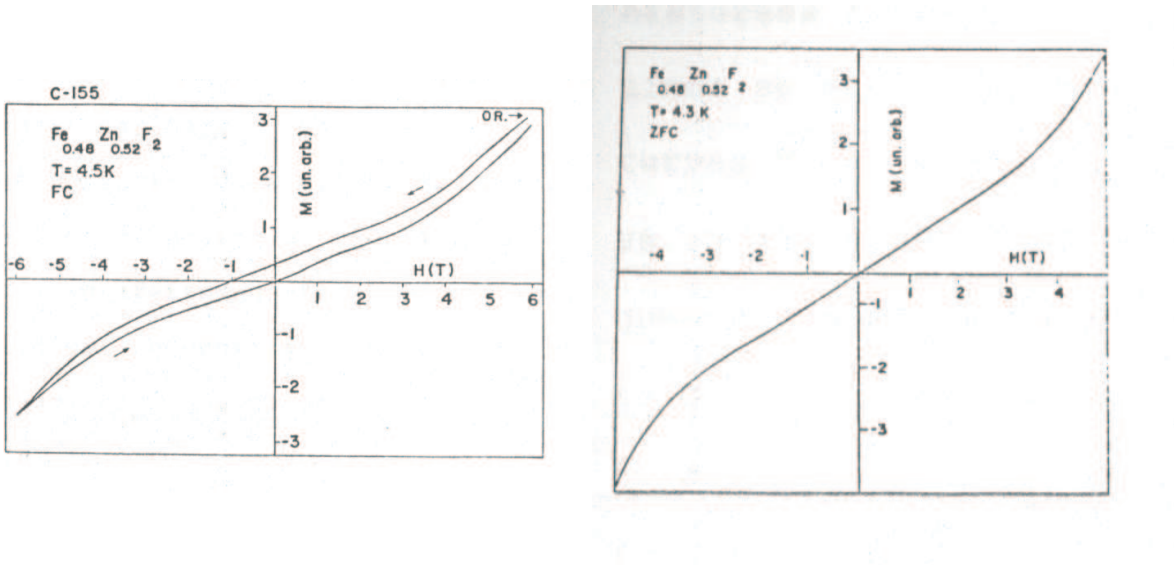

Figura 2.7: Curvas de Histerese, $M \times H$, para o composto $Fe_{0.48}Zn_{0.56}F_2$: (Fig. da esquerda) ciclo FC com presença de laço assimétrico; (Fig. da direita) Ciclo FC, apresentando reversibilidade e ausência de laço na histerese.

Para campos magnéticos intensos, resultados de simulação MC à $x = 0.5$ indicam que a ordem AF de longo alcance deixa de existir [67] e o sistema congela-se em uma estrutura fractal de domínios a baixas temperaturas. Ao diminuir-se a temperatura, o equilíbrio é perdido a uma temperatura de equilíbrio $T_{eq}(H)$, em geral ligeiramente superior à temperatura crítica $T_c(H)$ obtida no ciclo ZFC. Identifica-se

$T_{eq}(H)$ como sendo aquela acima da qual os resultados das medidas ZFC e FC na mesma escala de tempo coincidem. Para $b = 0$, ver Eq.(2.9), a $T_{eq}(H)$, satisfaz uma lei de cruzamento idêntica a de $T_N(H)$, inclusive com o mesmo expoente ϕ [37]. Medidas experimentais nesse regime de diluição, mostraram o caráter universal do expoente ϕ: para $x = 0.73$ encontrou-se $\phi = 1.42$ [29] e para $x = 0.48$ $\phi = 1.40$ [35, 66, 38], veja por exemplo Fig.(2.8). Um resultado que está de acordo com as previsões teóricas.

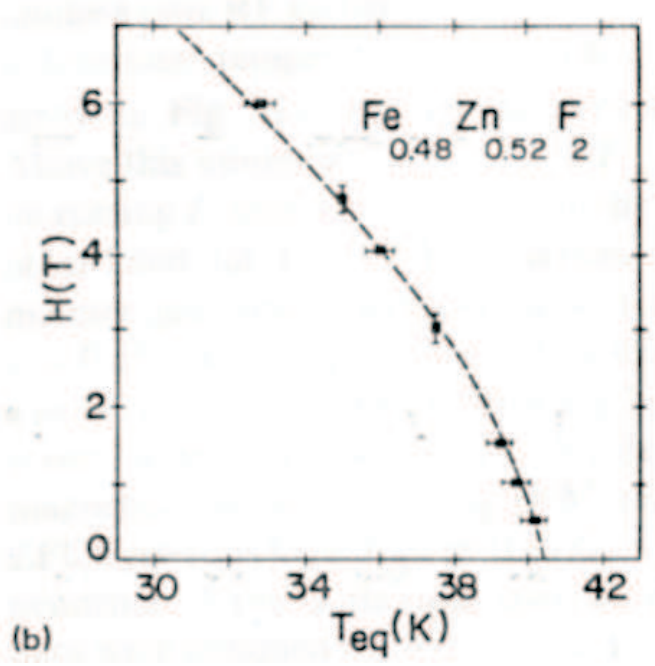

Figura 2.8: Diagrama $H \times T$ mostrando a curva de irreversibilidade para o $Fe_{0.48}Zn_{0.52}F_2$, com expoente $\phi = 1.4$.

2.5 A Fase Vidro de Spin do $Fe_xZn_{1-x}F_2$

2.5.1 Irreversibilidade do $Fe_xZn_{1-x}F_2$: $x = 0.31$ e $x = 0.25$

No regime de forte diluição ($0.24 < x < 0.4$) o diagrama de fases [35] e a combinação de campo magnético e diluição x poderá induzir um comportamento vítreo no sistema. Este tipo de comportamento foi observado pelo grupo de Recife [35, 67], numa amostra com diluição $x = 0.31$, como mostra a Fig.(2.9). Trabalhos posteriores confirmaram este comportamento (Fig.(2.9)).

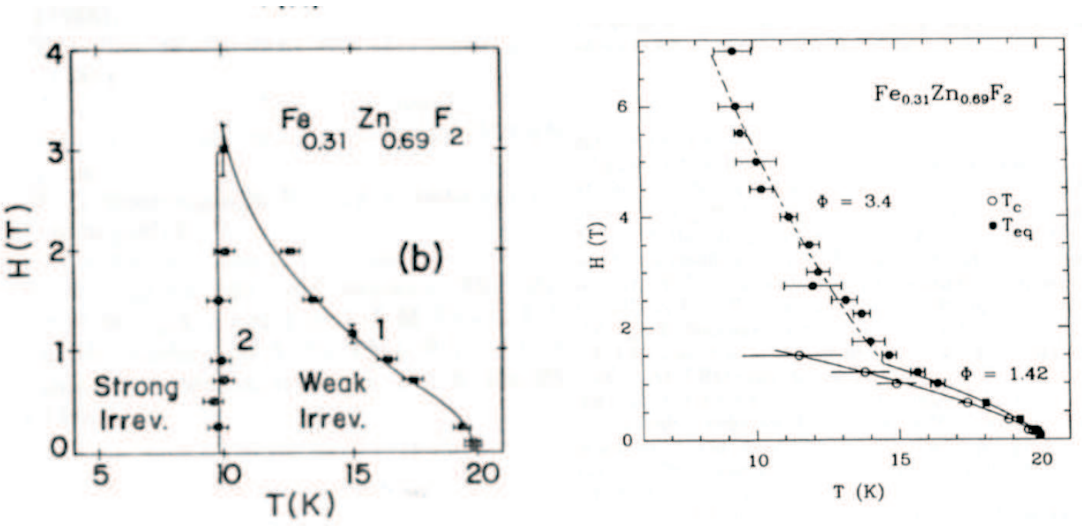

Figura 2.9: Diagrama H *vs* T para o $Fe_{0.31}Zn_{0.69}F_2$, mostrando a mudança de comportamento de fraca irreversibilidade (linha 1) para forte irreversibilidade (linha 2) na magnetização [35, 66].

Para diluição próxima da percolação, Montenegro e colaboradores [66, 62, 68] conseguiram reunir evidências de que em baixas concentrações, especificamente a $x = 0.25$, o sistema $Fe_xZn_{1-x}F_2$ exibe todas as características de um *VS's* genuíno,

como mostrado na Fig.(2.10), apesar da pequena interação J_3. O diagrama de fase (H, T) pode ser visto na Fig.(2.10). Nessa mesma concentração, medidas da magnetização [66, 35] mostram comportamento irreversível após um ciclo ZFC e reversível após um ciclo FC, que é uma característica de um *VS's*. Outro dado que reforça o caráter *VS's*, nessa diluição, é a ausência de singularidade no calor específico a campo nulo e um máximo deslocado em relação à temperatura de congelamento T_f.

Várias hipóteses foram inicialmente apresentadas para explicar a origem da fase VS no $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$. Uma delas [35, 66, 62], sugere que na vizinhança da percolação ($x = 0.25$) a forte desordem por diluição tornaria a influência da pequena interação frustada relativamente importante, induzindo a fase $VS's$ mesmo a campo nulo. Uma outra hipótese [93, 35] tenta justificar o aparecimento do comportamento vítreo na preseça de campo magnético. Para isso admite que o mecanismo responsável por este comportamento vítreo é a competição entre os aglomerados interagentes, com ordem interna AF de orientação aleatória, e o campo aleatório gerado pelo campo magnético externo que tende a estender a ordem AF para toda a rede (fase RFIM). A campo nulo, $H = 0$, a proximidade da percolação, $x = 0.25$, o curto alcance (fase REIM), as correlações espacial e temporal entre os aglomerados aletoriamente congelados, seriam reponsáveis pela indução da fase VS. Estudos númericos de simulação sítio-a-sítio [38, 42] no $Fe_xZn_{1-x}F_2$ com $H = 0$, mostraram que a pequena interação frustada tem papel relevante no regime de diluição moderada ($x = 0.48$), causando a formação de domínios de spins invertidos com relação à ordem AF de longo alcance, e também tendo um papel importante no surgimento da fase $VS's$ na vizinhança da concentração de percolação, mas especificamente em $x = 0.25$, veja a Fig.(2.10).

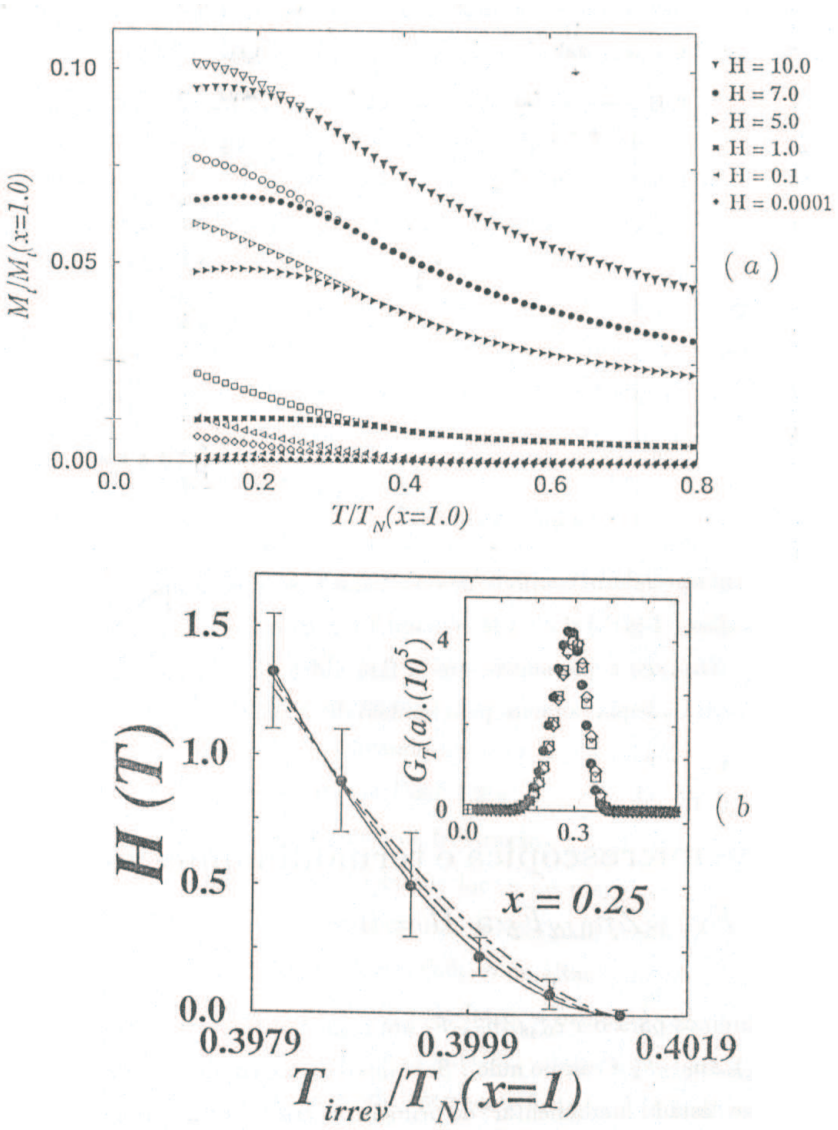

Figura 2.10: (a) Dependência da magnetização com a temperatura do $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$, para os procedimentos ZFC e FC, em vários campos aplicados. (b) Linha de irreversibilidade H *vs* T, a linha tracejada indicam a estimativa experimental [12], com expoente $\phi = 3.4$; A linha traço-pontilhada indicam o valor AT[13] ($\phi = 3.0$); as linhas cheias indicam o melhor ajuste das curvas LMF, $\phi = 3.8 \pm 0.6$. O dados (a) e (b) foram obtidos através de simulação campo médio sítio-a-sítio (LMF)

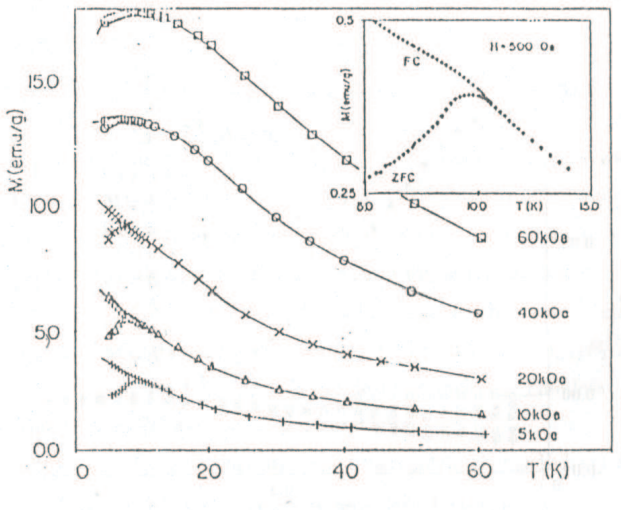

Figura 2.11: Dependência da magnetização com a temperatura do $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$, para os procedimentos ZFC e FC, em vários campos aplicados.

Em um estudo recente, Barbosa e colaboradores [20, 78], usando MC, conseguiram reunir evidências de que mesmo para $J_3 = 0$, o composto $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$, possui um comportamento $VS's$ a campo nulo, diferente do verificado nas simulações de campo médio sítio-a-sítio [38, 42]. Para o calor específico magnético, C_m, a relevância de J_3, é somente para baixissímas temperaturas, veja Fig.(2.13). Como nos sistemas $VS's$, os resultados do C_m, não mostram nenhum pico próximo a temperatura crítica. Outro dado também das simulações MC [20, 78], diz respeito a interação J_3 para a histerese, veja Fig.(2.13), observa-se que para T muito baixo temos o surgimento de degraus no ciclo de histerese. Os efeitos das flutuações térmicas são minimizados, a competição dá-se entre a energia Zeemman do campo e a de troca, como observado experimentalmente por King e colaboradores [96].

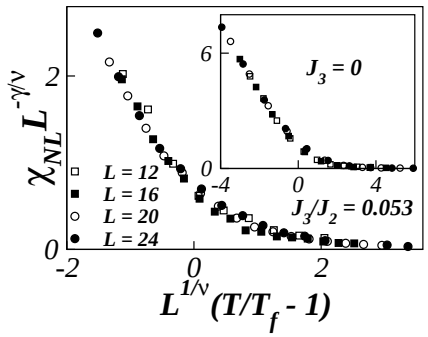

Figura 2.12: Linha de irreversibilidade H *vs* T, mostrando a dependência de $T_i(H)$, a linha sólida é um ajuste de $T_i - T_0 \sim H^{2/\phi}$, onde $\phi = 3.4$. A linha pontilhada é linha de Almeida-Touless (AT) [13], com $\phi = 3$. O dados (a) e (b) foram obtidos experimentalmente por Montenegro e colaboradores [41, 66].

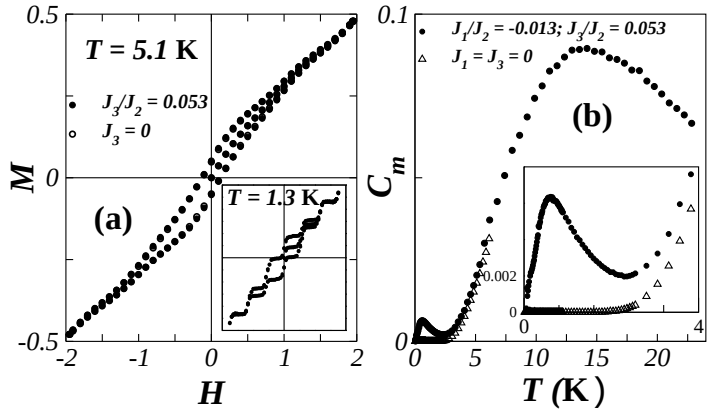

Figura 2.13: (a) Histerese em $T = 5.1K$ e no detalhe $T = 1.3K$. (b) Dependência com T do calor específico C_m e $H = 0$, para os casos $J_3/J_2 = 0$, $J_3/J_2 = 0.053$.

2.5.2 Histerese do $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$

Uma assinatura típica de um sistema $VS's$, como dito na seção anterior e observada [114] experimentalmente, bem como teoricamente, é a presença de comportamentos irreversíveis em experimentos FC e ZFC, abaixo e na vizinhança da temperatura de congelamento T_f. Um dos procedimentos experimentais e modelado através de simulação computacional para verificar tais comportamentos, consiste em esfriar a amostra trazendo a mesma da fase de altas para baixas temperaturas e observar a dependência da magnetização num ciclo de campo magnético a T fixa. As Fig. (2.14) mostram o comportamento da magnetização total M_T em função do campo H. Como observado experimentalmente [48, 67] e também através do método Monte Carlo [12], o composto $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$, apresenta histerese com laços a baixas temperaturas ($T < T_f$) com uma forma simétrica, uma característica presente na maioria dos sistemas $VS's$ [114].

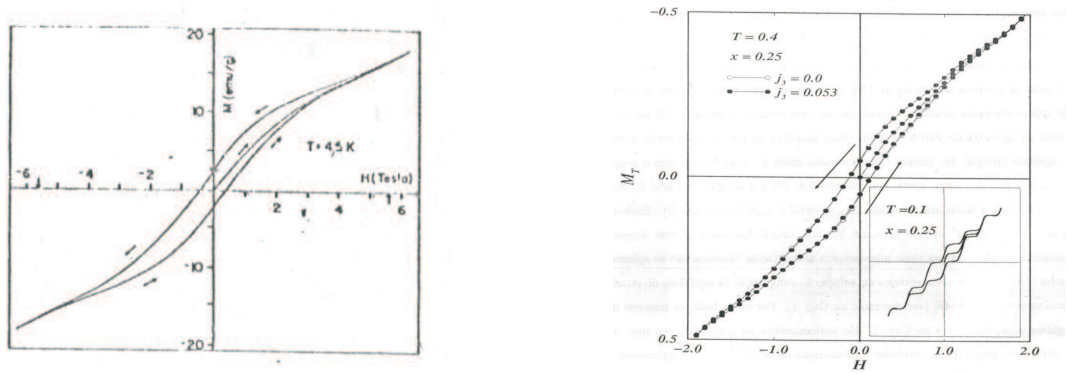

Figura 2.14: M *vs* H para o $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ em $T = 4.5$K. (Fig. da Esquerda) Resultado experimental [12]. (Fig. da Direita) Método Monte Carlo [13]. O *inset* mostra o surgimento de uma estrutura de degraus no ciclo de histerese em $T = 1.13$K.

2.5.3 Magnetização Remanente no $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$

Em face das dificuldades associadas aos tempos de relaxação muitos longos, dificultando uma melhor caracterização das transições de fase e a obtenção de expoentes críticos em sistemas $VS's$, ao longo dos últimos anos tem havido um crescente interesse em abordar o problema a partir de uma situação de não equilíbrio [49, 112]. Desde o trabalho de Lundgren e colaboradores [111], mostrando que as propriedades magnéticas dos $VS's$ dependem fortemente do tempo de espera, antes de se fazer as medidas, e na região próxima à T_c e para baixas temperaturas, que o interesse no processo ou fenômeno de envelhecimento (*aging*) vem crescendo. Os regimes de tempo, em que se observa a dependência das grandezas medidas com o tempo de espera, são regimes de não equilíbrio.

Experimentalmente, a forma mais simples de estudar fenômenos de não-equilíbrio em sistemas $VS's$, consiste em submeter a amostra a um rápido resfriamento da fase PM até um temperatura $T < T_f$ na presença de um campo magnético externo H e desligar o campo após um tempo de espera t_w (tempo de envelhecimento ou "*aging*"). A partir deste instante, desliga-se o campo e mede-se a magnetização em função do tempo, observa-se em seguida a dependência dos valores da magnetização em função do tempo.

Em uma simulação computacional, para investigar a dinâmica de não equilíbrio de sistemas de spins, usa-se geralmente a função de autocorrelação temporal de spin:

$$C(t_w, t_{w+t}) = \frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N}\left[\langle S_i(t_w + t)S_i(t_w)\rangle\right]. \tag{2.10}$$

Para $t_w \to 0$, e spins alinhados, a função de autocorrelação temporal corresponde

à magnetização remanente $M_{rem}(t)$. O comportamento assintótico das grandezas $C(t_w, t_{w+t})$ e $M_{rem}(t)$ tem merecido atenção, um vez que estas grandezas fornecem informações sobre a evolução dinâmica dos domínos de spins.

Um interessante fenômeno em $VS's$, é a observação do comportamento de inreversibilidade em regiões abaixo da T_f [36]. A magnetização remanente depende dos detalhes do caminho, ou seja, da "história magnética" da amostra. A remanência é observada tanto no procedimento ZFC, chamada de magnetização isoremanente (IRM), quanto no procedimento FC, conhecida como magnetização termoremanente (TRM). Para um revisão mas detalhada, veja [36, 54, 98].

Granberg e colaboradores [114], realizaram um estudo sobre o decaimento temporal da magnetização remanente em um vidros de spin metálico, no composto $(Fe_{0.15}Ni_{0.85})_{75}P_{16}B_6Al_3$, Fig.(2.15a). Por outro lado, Montenegro e coloboradores [62]) observaram para o composto $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ em $T = 4.5K$, uma dependência do tipo logarítmica, $M_{rem} \sim S(T,H)ln(t)$, onde t é o tempo e S é uma constante que depende de H e T, veja Fig.(2.15b). Neste mesmo trabalho, Montenegro e colaboradores apresentam um estudo da dependência da magnetização remanente, para os dois procedimentos ZFC (IRM) e FC (TRM), veja Fig.(2.16), para as diluições de $x = 0.25$ (VS) e $x = 0.48$ (REIM).

Simulações MC têm sido muito importantes na investigação de fenômenos de não-equilíbrio em sistemas $VS's$, reproduzindo muitas características deste e testando os modelos fenomenológicos e microscópicos propostos. Dependendo da temperatura T e do tempo de espera T_w, hoje sabe-se que tanto para simulações como em medidas experimentais que podemos ter decaimento algébrico, logarítmico, exponencial esticada (*stretched*), ou um combinação desses para a magnetização remanente.

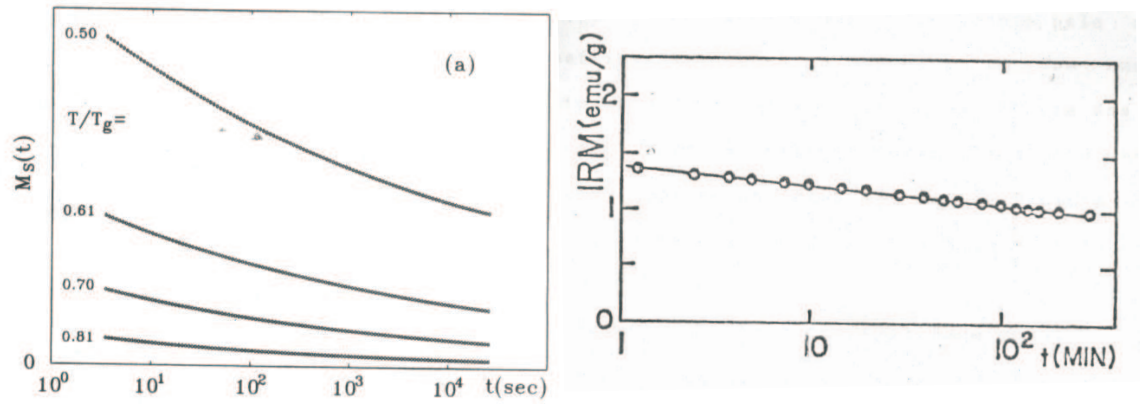

Figura 2.15: (Fig. da Esquerda) Magnetização Remanente do composto $(Fe_{0.15}Ni_{0.85})_{75}P_{16}B_6Al_3$, para várias temperaturas, aqui $M_S = M_0 t^{-m}\exp[-(t/\tau_p)^{1-n}$ Granberg e colaboradores [114]; (Fig. da Direita) Dependência Temporal da Magnetização Remanente (M_{Rem}), após um ciclo ZFC, $M_{rem} \sim S(T,H)ln(t)$, conforme Montenegro e colaboradores [41, 66].

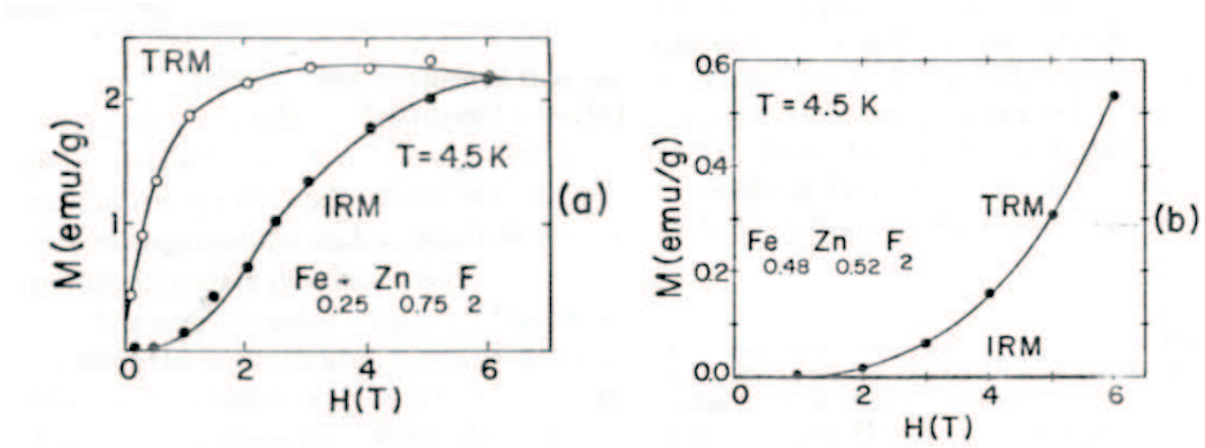

Figura 2.16: Magnetização Isoremanente e termorremanente (IRM e TRM) para o $Fe_xZn_{1-x}F_2$. (a) $x = 0.25$, comportamento VS; (b) $x = 0.48$, comportamento REIM.

Capítulo 3

Método Monte Carlo Aplicado ao Antiferromagneto Diluído $Fe_xZn_{1-x}F_2$

O Método Monte Carlo (MC), devido a Metropolis e colaboradores (1953) [56], é uma das principais técnicas usada na investigação de fenômenos em física do estado sólido, e em especial na mecânica estatística de transições de fases. Um fato motivador para o uso do método MC, é o caráter interdisciplinar da técnica [57], o que dá ao método um suporte complementar para estudos téoricos e também experimentais.

A técnica de MC encontra-se bastante divulgada na literatura. Uma revisão sobre o método, discutem-se onde os avanços e aplicabilidade a problemas da matéria condensada, pode ser vista no livro editado por Binder [57, 59]. Uma revisão mais atual, onde se discute o método e a implementação de tradicionais e novos algorit-

mos, em mecânica estatística clássica, foi feita por Newman e Barkema [60].

Neste capítulo, discutiremos brevemente o método MC, dando um especial enfoque aos algoritmos usado no nosso trabalho: Metropolis e de banho térmico ("*heat-bath*"). A forma de cálculo das grandezas relevantes para o contexto do nosso problema e o seu emprego a sistemas magnéticos desordenados do tipo Ising, como por exemplo, o antiferromagneto que vamos estudar, o $Fe_xZn_{1-x}F_2$.

3.1 O Método Monte Carlo

Na mecânica estatística, o valor médio de um observável físico A, associado a um sistema com N graus de liberdade, é calculado de acordo com a distribuição de Boltzmann:

$$\langle A \rangle = \sum_l P_l^{eq} A_l, \tag{3.1}$$

onde A_l é o valor de A no estado l e P_l^{eq} representa a probabilidade do sistema em equilíbrio ocupar um estado l, que no *ensemble* canônico, é dado por:

$$P_l^{eq} = \frac{e^{-\beta E_l}}{\sum_m e^{\beta E_m}}, \tag{3.2}$$

onde E_l é a energia do estado l, $\beta = 1/k_BT$ é o inverso da temperatura e k_B é a constante de Bolztmann. Quanto maior o valor de N maior será o número de estados, tornando a soma na Eq.(3.2) impraticável, uma vez que sistemas físicos reais são analisados no limite $N \to \infty$ (limite termodinâmico). O método MC apresenta-se como uma opção para se estudar sistemas grandes, porém finitos, por

meio de simulação numérica, onde ao invés de realizar a soma na Eq.(3.2) sobre todos estados, toma-se uma fração, devidamente selecionada, das configurações mais representativas do sistema, realizando desse modo, uma estimativa da média, que por não ser exata, deverá conter erros estatísticos.

Estados que satisfazem à distribuicão de Boltzmann são gerados através de um processo estocástico iterativo, após um transiente inicial ou tempo de termalização, τ_{eq}. Portanto, o valor médio estimado da grandeza A segundo este procedimento, será dado por:

$$\langle A \rangle = \frac{1}{t_0} \sum_{t=1}^{t_0} A(t), \tag{3.3}$$

onde $A(t)$ é o valor de A na configuração dos sistema no "instante" t e t_0 representa o número de medidas realizadas. As configurações geradas pelo algoritmo encontram-se descorrelacionadas se distantes por um tempo igual ou superior a um tempo característico τ, chamado tempo de descorrelação. Dessa forma, para fazermos medidas de configurações estatisticamente independentes, devemos considerar intervalo maior ou da ordem de τ entre varreduras da rede ("passos" de Monte Carlo ou Monte Carlo *steps per spin*-MCS/spin) a serem considerados na média da Eq.(3.2).

A simulação MC começa com o sistema num estado inicial l_0, a partir do qual um conjunto subsequente de estados são gerados. Para um sistema de N spins Ising interagentes em um estado l com energia E_l, uma possível maneira de se gerar um novo estado m, com energia E_m, é escolher aleatoriamente um spin S_i e invertê-lo ou não, de acordo com uma certa probabilidade de transição $w_{l,m}$, em geral função do fator de Boltzmann $e^{-\beta \Delta E}$, onde ΔE é a diferença da energia entre os estados m e l. Se no instante $t = 0$, o sistema está no estado l_0, num instante de tempo

posterior, teremos uma probabilidade $P_l(t)$ de encontrá-lo num estado diferente l, o qual tenderá à probabilidade de equilíbrio para tempos longos. A evolução das probabilidades em direção às probabilidades de equilíbrio satifaz à chamada equação "mestra":

$$P_l(t+1) - P_l(t) = \sum_m [P_m(t) w_{m\to l} - P_l(t) w_{l\to m}], \tag{3.4}$$

onde $w_{m\to l}$ ou $w_{l\to m}$ é a taxa de transição entre os estados l e m ou m e l. Impondo a condição de balanço detalhado, ou seja, de que no equilíbrio a distribuição de probabilidades seja estacionária ($P_l = P_j^{eq}$), temos:

$$P_l^{eq} w_{m\to l} = P_m^{eq} w_{l\to m}, \tag{3.5}$$

que pode ser escrita ainda, usando a Eq.(3.2), como:

$$\frac{w_{m\to l}}{w_{l\to m}} = e^{-\beta(E_m - E_l)}, \tag{3.6}$$

determinado assim a razão entre as taxas de transições.

Uma possível forma geral para taxa de transição é dado por:

$$w_{m\to l} = F(e^{-\beta\Delta E}), \tag{3.7}$$

onde F é qualquer função que satisfaça à condição $0 \leq F(x) \leq 1$ e

$$\frac{F(x)}{F(1/x)} = x, \tag{3.8}$$

para todo x. Existem várias escolhas possíveis para F, constituindo-se assim as regras de atualização de spins. As duas regras dinâmicas de atualização de spins

mais freqüentemente usadas são:

1- Algoritmo de Metropolis: Neste algoritmo, sempre aceita-se que o sistema mude de estado se a energia do estado l for maior que a do estado tentativa m; caso contrário, se $\Delta E < 0$ a mudança de estado se processará de acordo com a probabilidade $e^{-\beta\Delta E}$, ou seja:

$$F(x) = Min(x, 1). \tag{3.9}$$

No caso do modelo de Ising com interações de curto alcance, escolhe-se um spin aleatoriamente e calculam-se as energias locais do estado atual e tentativo; em seguida, determina-se a diferença de energia ΔE_i, invertendo-se o spin se esta for negativa ou, caso contrário, segundo uma probabilidade $e^{-\beta\Delta E_i}$.

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

$$F(x) = \frac{x}{1+x}, \tag{3.10}$$

que corresponde a uma probabilidade de aceitação que independe do sinal de ΔE. Esta regra recebe o nome de dinâmica de Glauber. No caso do modelo de Ising, com acoplamento J entre spins vizinhos, o spin é invertido independentemente do estado anterior.

Existe ainda uma outra regra de banho térmico que não necessita do cálculo da energia local do spin, mas somente do campo a que este está sujeito, devido aos spins vizinhos, ou seja:

$$w = \frac{e^{2\beta h_i}}{1+e^{2\beta h_i}}, \tag{3.11}$$

onde $h_i = J\sum_{(mn)} S_j$ é o campo que o spin i sofre devido aos seus vizinhos S_j. Do ponto

de vista computacional a vantagem desse algoritmo em relação ao de Metropolis e de Glauber é a economia de tempo de máquina (CPU), conseguida ao não ter que se fazer o cálculo da energia local para sistemas com interações de curto alcance.

Historicamente, a introdução do Método MC ao estudo de problemas em física estatística se deve a Metropolis e colaboradores [56], que estudaram o problema de discos duros observando uma transição de fase gás-líquido. Desde então, o método passou a ser bastante divulgado tornando-se uma excelente ferramenta nos estudo das transições de fases e fenômenos críticos. Os problemas e limitações inerentes a ele logo se reveleram, tais como: o tamanho dos sistemas e o problema da descorrelação temporal máxima, próxima ao ponto crítico, devido aos longos tempos de relaxação, (*critical slowing down*), que decorre da natureza local dos algoritmos de Metropolis e de banho térmico. Ao longo das últimas décadas estes problemas receberam considerável atenção e muito progresso foi obtido. Para contornar o pro-blema da lenta descorrelação temporal, novos algoritmos de natureza não-local foram propostos, destacando-se os algoritmos de aglomerados (*clusters*) de Swendsen e Wang [61] e Wolff [64]. Aliados aos novos algoritmos e a formas mais eficientes de implementação, estão os computadores vetorias e paralelos [65], que possibilitam a investigação de sistemas cada vez maiores com melhor precisão nos resultados, num menor intervalo de tempo.

3.2 Implementação do Método Monte Carlo ao Sistema $Fe_xZn_{1-x}F_2$

O nosso experimento computacional começa com a geração da rede tetragonal

centrada (BCC) em que os sítios ocupados ($\mathcal{E}_i = 1$) representam íons magnéticos (Fe^{+2}) e as vacâncias ($\mathcal{E}_i = 0$) representam íons não magnéticos (Zn^{+2}), como mostra a Fig.(2.1). A ocupação dos sítios é feita de forma aleatória e congelada (*quenched*), satisfazendo o vínculo de que a concentração de sítios magnéticos seja x. Na preparação das amostras, optamos por uma descrição à base do *ensemble* canônico, eliminando assim flutuações no número de sítios ocupados e populando as sub-redes com a mesma concentração de sítios magnéticos. Em cada sítio ocupado, colocamos uma variável de spin Ising, $S_i = \pm 1$. A temperatura T e o campo magnético H, adimensionais são normalizados como:

$$T \equiv \frac{k_B T}{J_2}, \tag{3.12}$$

$$H \equiv \frac{g\mu_B H}{J_2}. \tag{3.13}$$

A regra de atualização dos spins usada, neste trabalho, é baseada na dinâmica de banho térmico, descrita na seção anterior, com o campo de spins, normalizado pela interação J_2 entre sub-redes, dado por:

$$h_i = \sum_{l_1} j_1 \mathcal{E}_{l_1} S_{l_1} + \sum_{l_2} \mathcal{E}_{l_2} S_{l_2} + \sum_{l_3} j_3 \mathcal{E}_{l_3} S_{l_3} + H, \tag{3.14}$$

onde $j_1 = J_1/J_2 = -0.013$ e $j_3 = J_3/J_2 = +0.053$ são, respectivamente, as interações intra-subredes axial e planar [22], como ilustrado na Fig(2.1). Os sítios da rede são visitados seqüencialmente e são invertidos de acordo com o algoritmo de banho térmico Eq.(3.10). O tamanho da rede simulada corresponde a $N = 2.L^3$ sítios, com $L = 32$, sob condições de contornos periódicas.

Procurando seguir ao máximo os procedimentos experimentais, modelamos a amostra, inicialmente com uma configuração aleatória de spins, que corresponde à fase PM de altas temperaturas ($T \gg T_N$). Em seguida, aplicamos um campo magnético segundo dois procedimentos, que são também realizados experimentalmente: i) ZFC (*zero field cooling*), em que a amosta é resfriada a $H = 0$ até um temperatura bastante baixa ($T \ll T_N$) e em seguida aquecida até a fase PM; ii) FC (*field cooling*), em que ambos os procedimentos de resfriamento e aquecimento são realizados na presença de H. Utilizamos 5.10^4 MCS/spin para termalização e para a realização das medidas. Testes preliminares realizados, mostraram que essa termalização é suficiente para uma boa obtenção dos dados.

Após o sistema atingir o regime de equilíbrio, e para cada configuração de desordem, o processo de análise do comportamento estático tem início com as medidas das magnetizações de sub-rede M_s e magnetizações totais M_{sT}, e um tempo t, definidas, respectivamente, como:

$$M_s = \frac{2}{N}\sum_{i\in a}^{N} S_i, \tag{3.15}$$

$$M_T = \frac{1}{N}\sum_{i}^{N} S_i. \tag{3.16}$$

Em seguida calculamos as médias térmicas ($< ... >$) e configuracional ($[...]$), ou seja, $[< M_s >]$ e $[< M_T >]$. Em nosso estudo MC utilizamos 32 configurações de desordem no cálculo das grandezas acima.

Outra grandeza investigada utilizando os mesmos protocolos ZFC e FC, foi a magnetização remanente e sua dependência temporal. Além do estudo da histerese, onde iniciamos o sistema numa configuração PM, a partir da qual resfriamos

lentamente a campo nulo até a temperatura T utilizando 5.10^4 MCS/spin. Posteriormente, fixamos T e variamos o campo magnético H ($-2 \leq H \leq 2$) a uma taxa de 5.10^3MCS/spin, realizando as medidas de M_T.

No próximo Capítulo apresentaremos os nossos resultados MC, para a descrição do sistema $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$. Veremos que para baixas temperaturas ($T < T_f$) o sistema possui uma forte dependência com a história, isto é, os valores obtidos através das medidas da magnetização total, M_T, no ciclo ZFC, são diferentes dos valores quando essa medição é feita no ciclo FC, como será mostrado por meio dos gráficos FC e ZFC e da linha de irreversibilidade $H \times T$. Em particular, analisaremos a dependência temporal das magnetizações remanentes associadas aos dois ciclos FC e ZFC, após o desligamento do campo magnético. Essa forte dependência com a história evidenciou-se também nos resultados que obtivemos para as curvas de histerese. Nossos resultados são comparados com aqueles obtidos experimentalmente e por outros métodos teóricos, como discutido no Cap. 2.

Capítulo 4

Descrição MC da Irreversibilidade e Histerese de um Vidro de Spin Ising Próximo ao Limiar da Percolação: $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$

Neste Capítulo apresentaremos os resultados da modelagem do antiferromagneto diluído $Fe_{0.25}Zn0.75F_2$, próximo ao limiar da percolação, $x_p = 0.24$, através de uma simulação computacional, utilizando o método Monte Carlo (MC). No Cap.1 discutimos sobre as propriedades e características de $VS's$, enquanto no Cap.2 descrevemos algumas das características da fase $VS's$ observada no referido composto. Dentre as propriedades apresentadas, três delas são de nosso interesse comprovar e melhor caracterizar no contexto de nossa modelagem: a irreversibilidade do sistema para $T < T_f$, no regime onde $M_{FC} \neq M_{ZFC}$; a presença de ciclos de histerese para

$T < T_f$; e a remânencia na magnetização após os ciclos FC (TRM) e ZFC (IRM).

4.1 Ciclos FC-ZFC, Irreversibilidade e Linha de Almeida-Touless

Inicialmente, apresentaremos os efeitos dependentes da história na magnetização, mostrados nas Fig.(4.1). Na Fig.(4.1(a)) temos as medidas MC que foram feitas com a presença da frustação $J_3 \neq 0$, e na Fig.4.1(b) temos $J_3 = 0$. Em cada caso, a magnetização foi medida em passos sucessivos da temperatura, com um deta-lhamento maior de T para $T < T_i(H)$. A amostra foi resfriada, partindo da região PM com $T_i = 2.4$, até a temperatura de $T = 0.12$, e posteriormente aquecida até atingir novamente $T = 2.4$, de acordo com os protocolos FC (resfriamento e aquecimento com campo) e ZFC (resfriamento a campo nulo e aquecimento com campo). Nota-se que a influência de J_3 não causa grande mudança qualitativa sofre os efeitos dependentes da história na magnetização: a diferença nos valores médios da magnetização com J_3 é mais evidente para campos baixos e baixas temperaturas, como pode ser verificado nas Fig.(4.1(c) e (d)), onde destacamos as barras de erro. Este comportamento irreversível para o ciclos FC-ZFC torna-se mais evidente para baixas temperaturas, como normalmente observado em VS. Nossos resultados apresentam uma boa concordância com resultados experimentais, ver Fig.(2.11) e (2.12) e também com resultados de simulação sítio-a-sítio, ver Fig.(2.10).

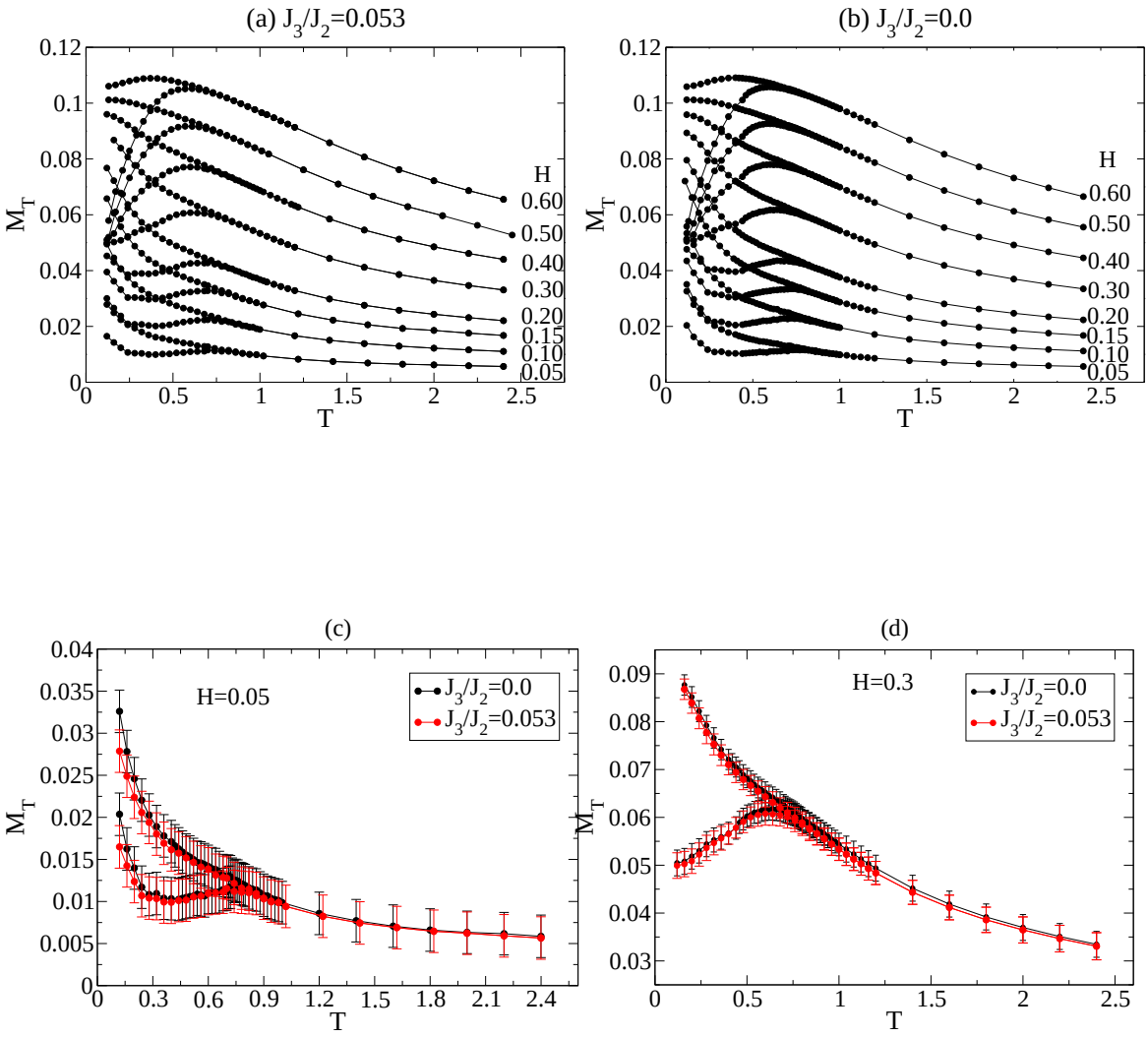

Figura 4.1: Resultados de simulação MC para o composto $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$, mostrando a dependência com a temperatura das magnetizações para os ciclos FC-ZFC, para vários campos aplicados: (a) $J_3/J_2 = 0.053$; (b) $J_3/J_2 = 0$; (c) e (d) Exibem os ciclos FC-ZFC para $H = 0.3$ e $H = 0.05$, para os casos com e sem a frustação, J_3. Nota-se que a influência de J_3 é maior em baixas temperaturas e baixos campos magnéticos.

A temperatura de irreversibilidade $T_i(H)$, é definida como aquela acima da qual $M_{FC} = M_{ZFC}$. Numericamente, definimos $T_i(H)$ como sendo a média aritmética entre duas temperaturas referentes aos extremos máximo $T_i(H)_{Max}$ e mínimo $T_i(H)_{Min}$ da região de encontro das curvas FC e ZFC, como mostrado no detalhe na Fig.(4.2(a)), onde $T_i(H)_{Min}$ é aquela cuja a diferença entre o $M_{FC} - M_{ZFC}$ é menor, simultaneamente, do que os erros em M_{FC} e M_{ZFC}, e o $T_i(H)_{Max}$ é aquela cuja diferença $M_{FC} - M_{ZFC}$ é maior do que o módulo da diferença entre os erros em M_{FC} e M_{ZFC}. Desta forma, obtidos os pontos $T_i(H)$, determinou-se a linha de irreversibilidade, mostrada na Fig.(4.2), que separa a fase reversível da não reversível. Esta linha pode ser convenientemente ajustada usando-se a expressão:

$$t(H) = -AH^{2/\phi} \tag{4.1}$$

onde

$$t(H) = \left[\frac{T_i(H) - T_i(0)}{T_i(0)}\right] \tag{4.2}$$

é a temperatura reduzida do sistema e ϕ é o expoente de cruzamento. Nossas simulações MC para $J_3 = 0$ resultaram em $T_i(0) = 0.94 \pm 0.4$ e $\phi = 3.4 \pm 0.6$. O valor de ϕ está de acordo com os resultados experimentais [67, 66], apresentados na (Fig.2.11e 2.11) com $\phi = 3.4 \pm 0.2$ e de simulação campo médio sítio-a-sítio com $\phi = 3.6 \pm 0.9$,[44], Fig.(2.10) . Para campos baixos, o valor ϕ está de acordo com os resultados de campo médio, onde $t(H) \sim H^{2/3}$ é a linha de irreversibilidade de Almeida-Thouless [83], representada pela linha cheia na Fig.(4.2).

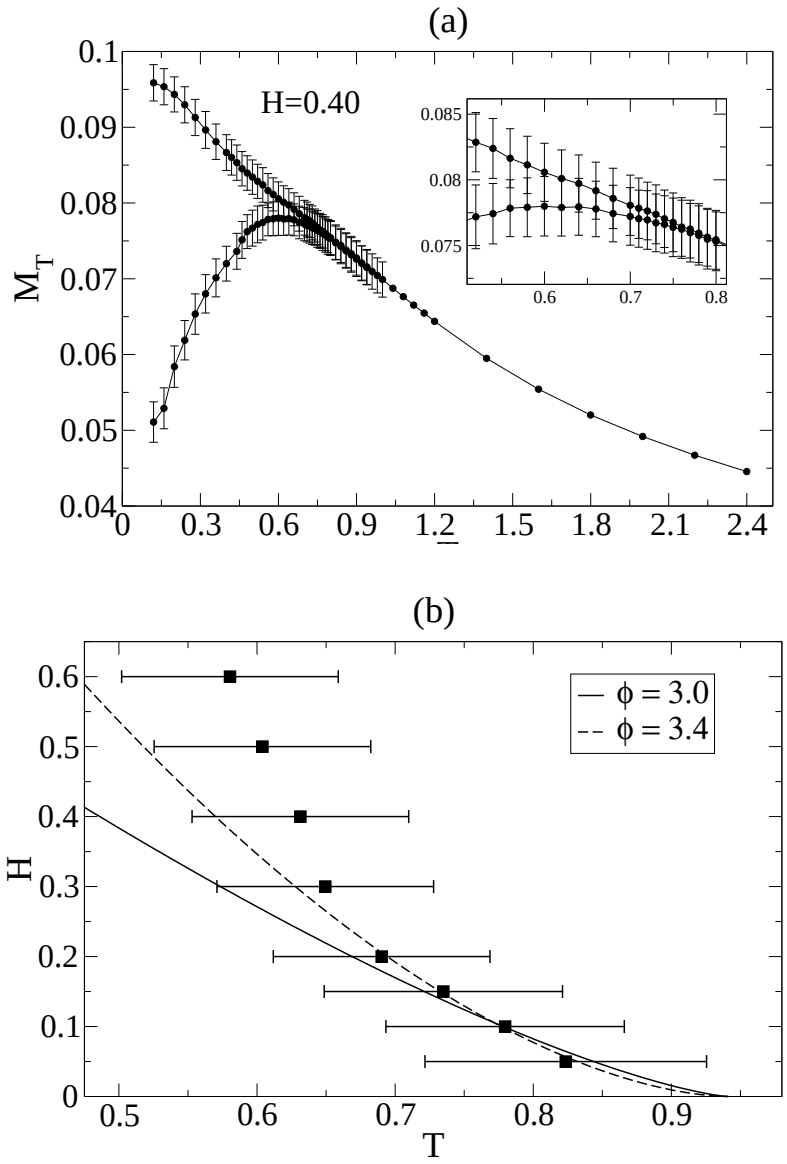

Figura 4.2: Resultados de simulação MC para o composto $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$: (a) Ciclo FC-ZFC para H=0.4, o detalhe mostra a região de encontro da curva FC com a curva ZFC. (b) Linha AT de irreversibilidade induzida pelo campo. A linha tracejada indicam nossa estimativa da simulacão MC com expoente $\phi = 3.4 \pm 0.6$ e $T_i(0) = 0.94 \pm 0.4$. A Linha cheia representa a linha Almeida-Thouless [83], $\phi = 3.0$. Nessa figura utilizamos as medidas MC com $J_3 = 0$, os quais foram realizadas com melhor resolução na proximidade de $T_i(H)$.

4.2 Histerese e Irreversibilidade

As propriedades dependentes da história da medição (ou no nosso caso, do procedimento númerico utilizado) estão evidentes nas curvas de histerese, mostradas na Fig.(4.3). Para resultados preliminares veja Fig. (2.14). Nossas medidas MC foram efetuadas fixando T, após o procedimento ZFC, e variando H. Observa-se a presença de laços simétricos para $T < T_i(H)$, onde o laço torna-se mais aberto a medida que T torna-se mais baixa, um comportamento típico de um VS. Para $T > T_i(H)$, nota-se que a dependência linear da magnetização com o campo magnético só ocorre para altas temperaturas ($T > 1.57$) e campos relativamentes baixos, $H < 1.5$. Nossos resultados da Fig.(4.3) apresentam boa corcordância com os obtidos experimentalmente por Montenegro e colaboradores [67, 41], para a amosta de $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$, ver Fig(4.3).

O comportamento irreversível FC-ZFC da magnetização devido ao campo H aplicado e a presença de histerese, ambos para $T < T_i(H)$, são assinaturas de um $VS's$. Nossos resultados MC, até agora apresentados, sobre a descrição do composto $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$, além da concordância com os resultados experimentais existentes, podem servir de ferramenta de estudo na caracterização mais detalhada da fase vítrea deste composto.

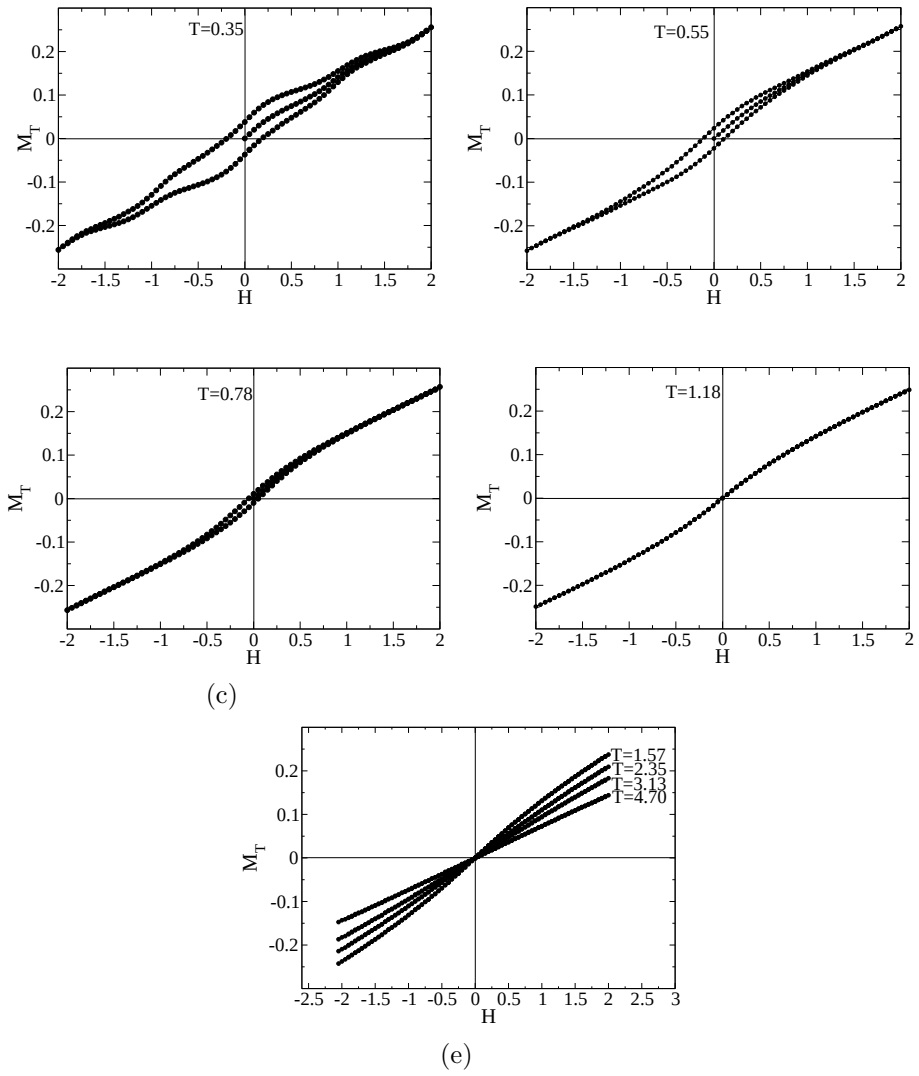

Figura 4.3: Histerese do sistema $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ para várias temperaturas obtida por simulação MC. Observe a presença de laço simétrico para $T < T_i(H)$. Para $T > T_i(H)$ a medida que T aumenta percebe-se a dependência linear para altas temperaturas e baixos campos.

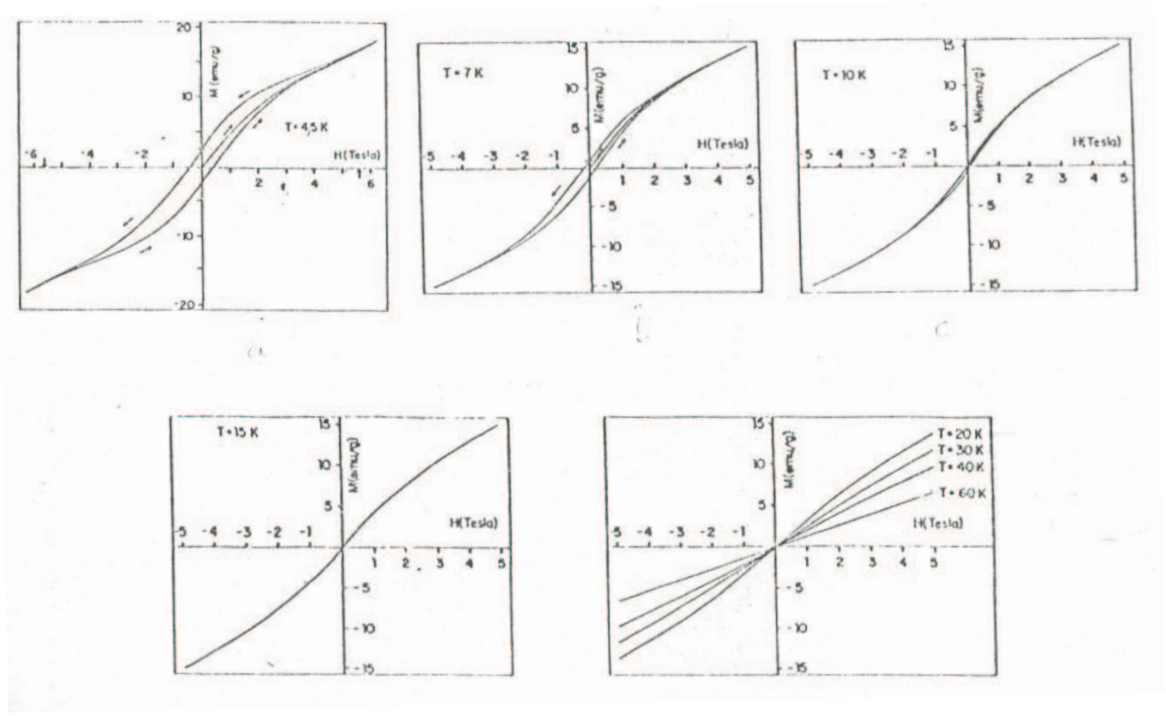

Figura 4.4: Histerese do $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$, obtida experimentalmente por Montenegro e colaboradores [67, 41]. Compare com as Fig.4.3.

A irreversibilidade presente nos ciclos FC-ZFC e na histerese, nos permitiu relacionar os resultados de ambos. Através da análise dos valores das magnetizações totais M_T, em função do campo H e para $T \ll T_i(H)$, nossas simulações MC mostraram que no ciclo FC, veja Fig.(4.1), para campos baixos, a magnetização M_T cresce a medida que T diminui. Este comportamento modifica-se quando aumentamos o campo H, resultando em um ponto de encontro dessas curvas quando $T \to 0$. Efeito similar foi observado no ciclo ZFC, isto é, M_T é constante para campos suficientemente intensos, como mostrado no detalhe da Fig.(4.5(a)). Este comportamento tornou-se mais evidente no ciclo de histerese, onde fixamos $T = 0.01$ e variamos H, conforme mostra Fig.(4.5(b)). Nota-se que nesta temperatura tem-se a formação de degraus com magnetizações bem definidas. as quais podem ser associadas às M_T dos ciclos FC=ZFC.

Buscando entender esse comportamento dos "degraus" no ciclo de histerese, notamos que o primeiro ocorre com $2/8 \leq H \leq 6/8$ e $M_T = 0.06683$ e o segundo ocorrre com $10/8 \leq H \leq 14/8$ e $M_T = 0.19545$, saturando ($M_T = 0.25$) para $H = 2$, valor associado ao estado microscópico em que todos os spins apontam pararalelamente a H. Esse valores de H satisfazem a relação:

$$H = \frac{n}{z} H_m, \tag{4.3}$$

onde $H_m = J_2/g\mu_B$ é o campo molecular associado a interseção AF dominante e $z = 8$ é o número de coordenação. Campos satisfazendo esta expressão foram denominados [94, 96] campos de "exchange flip" nos estudos pioneiros de King e colaboradores sobre os "degraus" de magnetização do $Fe_xZn_{1-x}F_2$ em baixas temperaturas e concentrações $x = 0.73$ e $x = 0.5$ (ordenamento AF com comportamento RFIM).

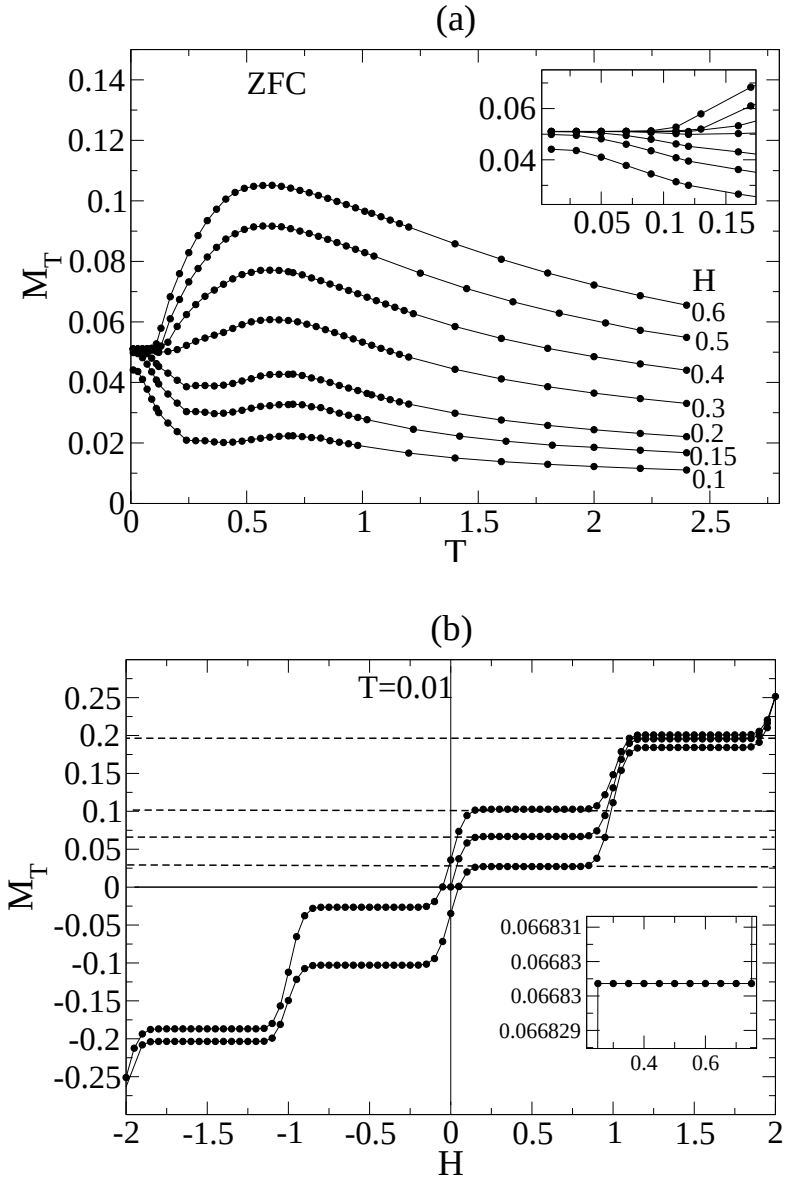

Figura 4.5: (a) Resultados de simulação MC para a magnetização em função da temperatura num ciclo ZFC. O detalhe mostra que mesmo variando H a magnetização para T muito baixa é praticamente constante. (b) Ciclo de histerese do composto $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$ em $T \ll T_f$. Pode-se observar a formação de degraus com magnetizações bem definidas. O detalhe mostra que a variação de H nos degraus não altera o valor da magnetização.

4.3 Simulação MC para Magnetização Remanente: Ciclos FC-ZFC e Relaxação

A magnetização remamente em $VS's$ também tem relação com o caráter irreversível que os $VS's$ possui abaixo de $T_i(H)$. Como dito no Cap.2, o comportamente remanente na magnetização é observado tanto para o ciclo FC, conhecida como termoremanência (TRM) enquanto para o ciclo ZFC, conhecida por isoremanência (IRM). Muito já se estudou sobre os efeitos da remanência da magnetização, em particular citamos o estudo realizado por Barbosa e colaboradores [20] sobre a dinâmica da fase vítrea do composto $Fe_{0.25}Zn_{0.75}F_2$,veja Fig.(4.3). O procedimento númerico adotado por estes autores para medir M_{Rem} consistiu de inicializar o sistema numa configuração com os spins para cima, correspondendo à fase FM saturada por um campo magnético suficientemente forte, a uma temperatura fixa. Acompanhou-se a partir daí a evolução temporal da M_{Rem} com campo nulo Fig.(4.3). Os resultados mostram um típico comportamento $VS's$, onde: para $T \ll T_f$ temos uma dinâmica de congelamento tipo lei de potência; para T próximo de T_f o comportamento de lei de potência está associado um exponencial "esticada" (stretched) combinada com lei de potência. Finalmente para $T > T_f$ o comportamento de M_{Rem} é descrito simplesmente por uma exponencial esticada.

A nossa investigação MC da M_{Rem} começa com o sistema na fase PM de onde ele é resfriado lentamente até a $T = 0.28$, segundo os protocolos FC (com campo aplicado) ou ZFC (sem campo). No caso ZFC, na sequência aplica-se um campo magnético durante 50000 MCS/SPIN, retirando-se em seguida. Finalmente, para ambos os procedimentos, ZFC e FC, evolui-se o sistema a campo nulo, medindo-se a

sua magnetização total M_T, em função do tempo. Os resultados por nós encontrados para toda faixa de campo H estudada foi a de um dependência tipo lei de potência para tempos iniciais dada por:

$$M_{rem} \sim t^{-\alpha}, \tag{4.4}$$

e para tempos maiores ($t > 10^2 - 10^3$):

$$M_{Rem} \sim -\beta ln(x) \tag{4.5}$$

possuindo uma região de passagem (crossover) entre estes dois comportamentos, como mostrado na Fig.(4.3), para o campo $H = 0.3$. As Figs. (4.3) e (4.3), mostram o comportamento da M_{Rem} para os dois protocolos acimas mencionados, note que para campos baixos ($H < 1.50$) os valores da M_{Rem} ao longo do tempo são distintos para as duas regiões, enquanto que para campos altos ($H \geq 1.50$), os gráficos colapsam na região logarítmicas.

A Fig.(4.3) mostram a variação dos expoentes α e β com o campo H, para os dois procedimentos adotados. Note que o mínimo da Fig.(4.3(a)) corresponde ao máximo da Fig.(4.3(b)). As curvas não apresentam um comportamento monotônico característico. Um outro resultado obtido a partir dos valores das simulaçoes MC das M_{Rem} foi a dependência com o campo H dos valores de M_{Rem}, para dife-rentes tempos, como mostrado na Fig. (4.3). Resultados semelhante foi obtido por Montenegro e colaboradores, [[29]],veja Fig.(2.16). Notamos, como já previsto pela simulações MC de histerese que o valor limite de saturação para ambas IRM e TRM é próximo de $H = 2$. Abaixo desse campo os valores de IRM são completamente diferentes dos valores de TRM.

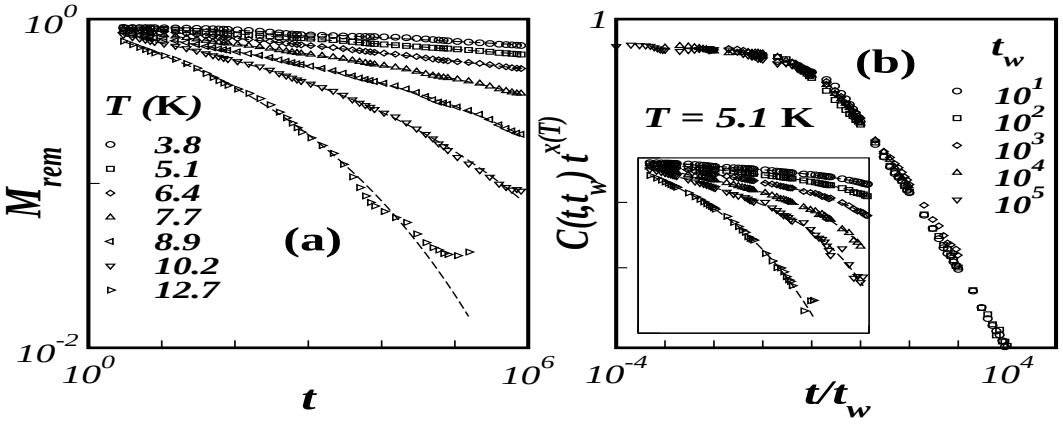

Figura 4.6: Gráfico Log-Log da M_{Rem} de sub-rede em função do tempo, obtida por simulação MC por Barbosa e colaboradores [78]. As linhas contínua correspodem aos ajustes dos pontos.

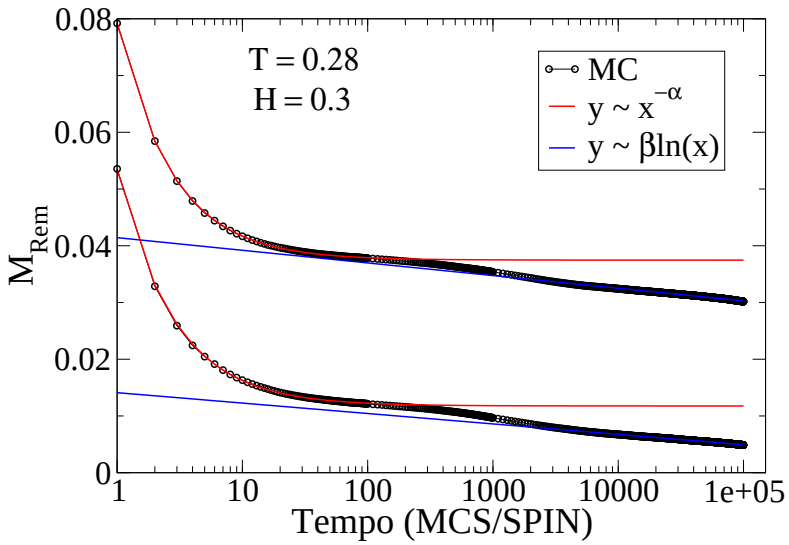

Figura 4.7: Resultados de simulação MC para M_{Rem} para os procedimentos FC (TRM) e ZFC (IRM), para tempos iniciais observa-se um comportamento de lei de potência $M_{rem} \sim t^{-\alpha}$ e para tempos longos nota-se um comportamento logaritmico para a $M_{Rem} \sim -\beta ln(x)$

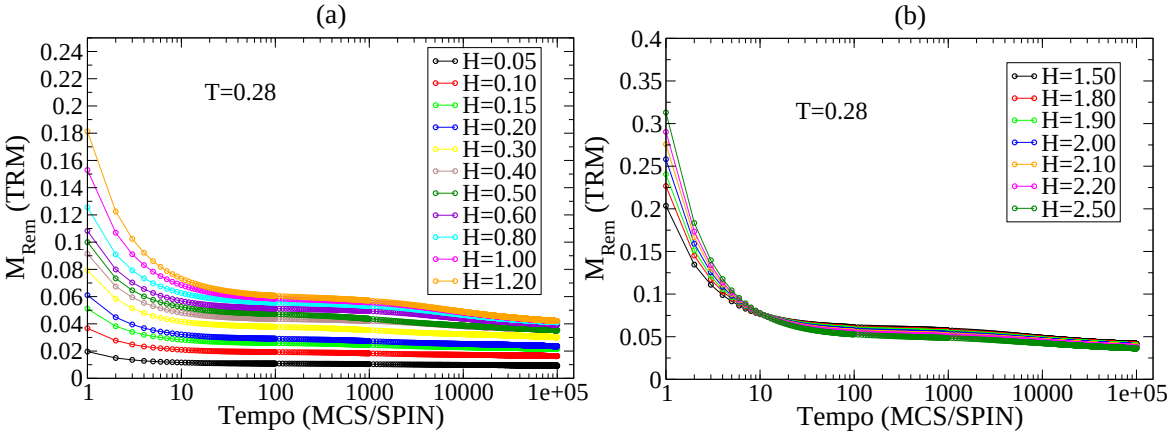

Figura 4.8: Resultados de simulação MC para M_{Rem} para o procedimento FC (TRM). (a) Campos baixos. (b) Campos altos.

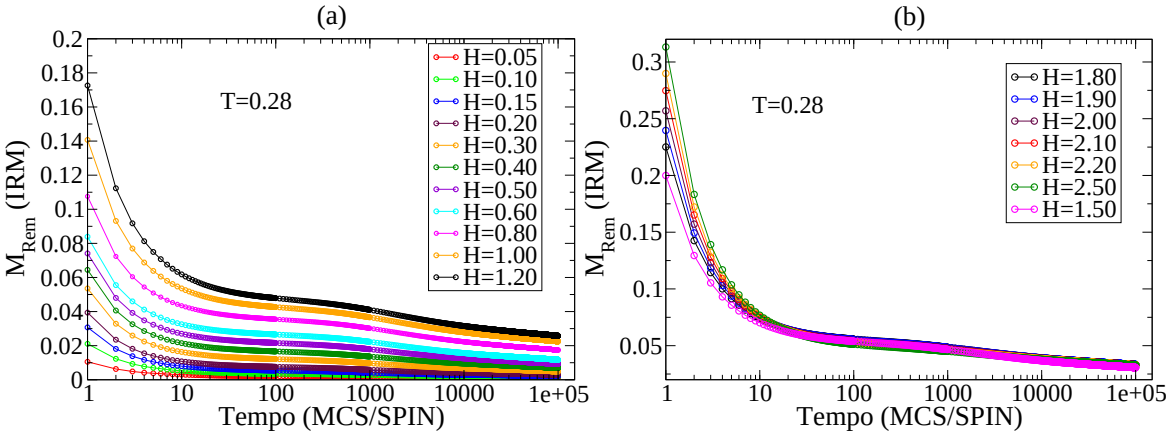

Figura 4.9: Resultados de simulação MC para M_{Rem} para o procedimento ZFC (IRM). (a) Campos baixos. (b) Campos altos.

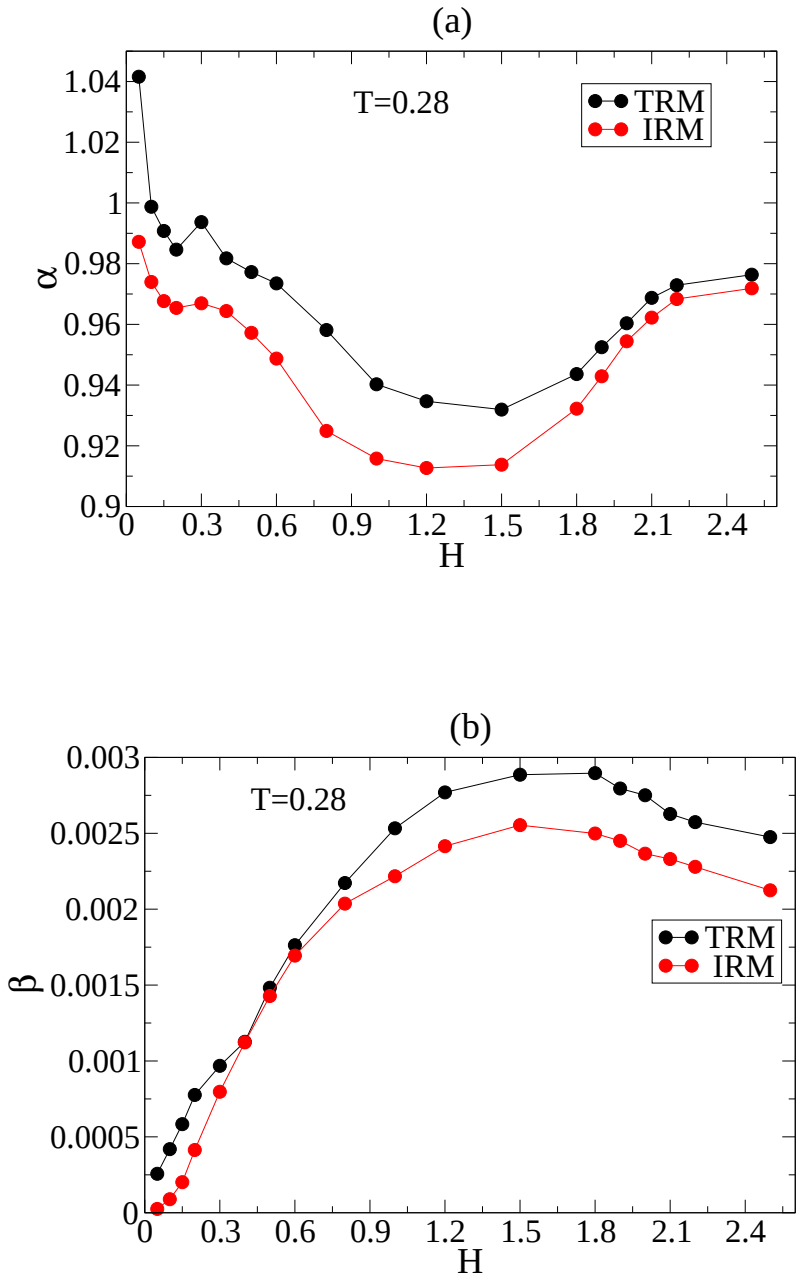

Figura 4.10: Dependência dos expoentes α e β com o campo H

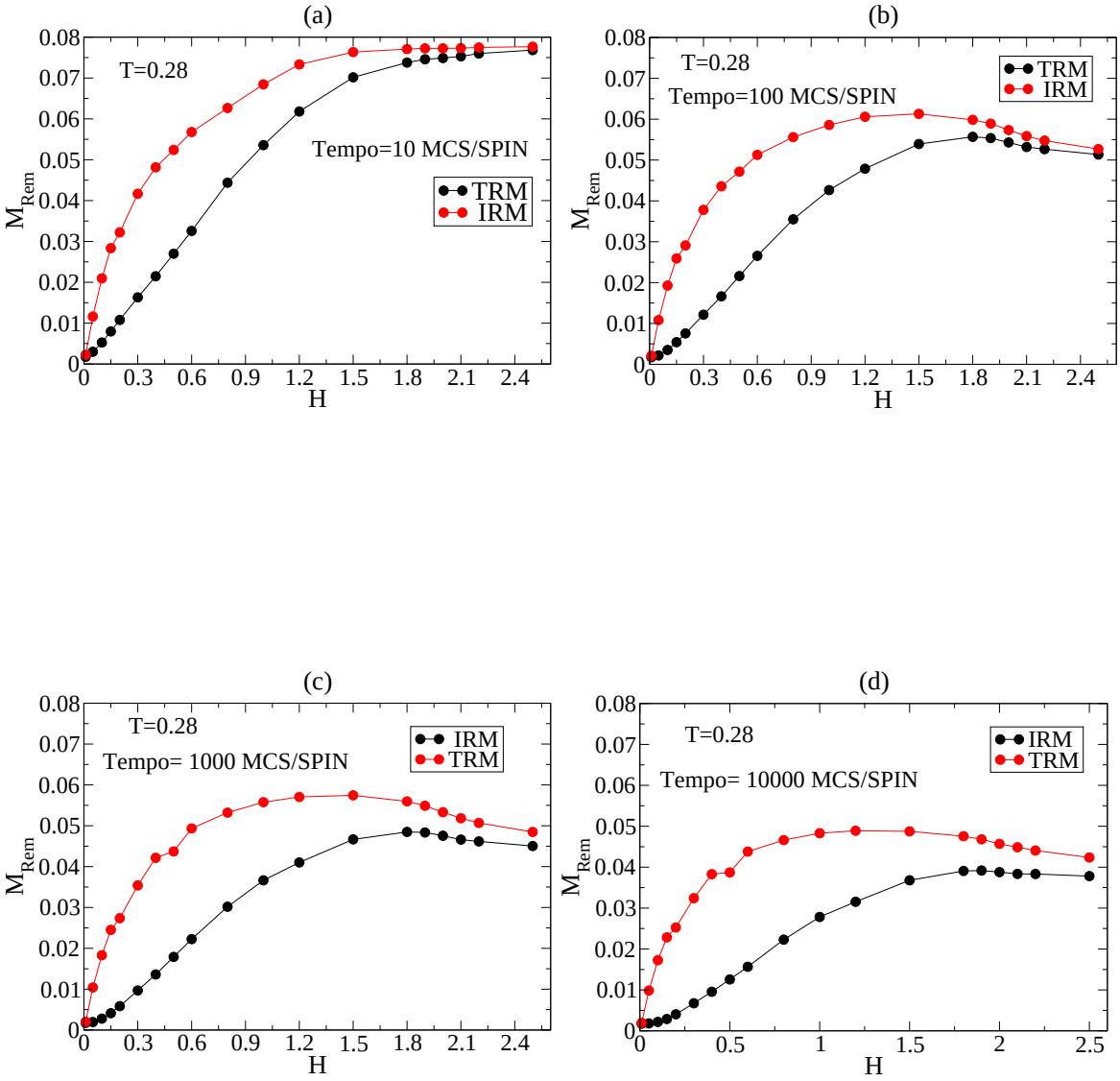

Figura 4.11: Resultados de simulação MC, mostrando a dependência da M_{Rem} com os campo H, para diferentes tempos de relaxação.

Capítulo 5

Conclusões e Perspectivas

Na presente dissertação estudamos via simulação Monte Carlo o antiferromagneto diluído Ising $Fe_xZn_{1-x}F_2$, próximo ao limiar de percolação ($x_p = 0.24$), e na presença de campo magnético externo uniforme H. Na modelagem realizada empregamos um hamiltoniano microscópico contendo todos os ingredientes necessários à descrição das fases $VS's$ ($x_p < x < 0.4$), REIM e RFIM ($0.4 < x < 1.0$) experimentalmente observadas no sistema mencionado. Em particular, consideramos os valores experimentalmente medidos das razões entre as constantes de troca e a geometria tetragonal centrada do material.

Em nosso estudo demos ênfase à fase VS a $x = 0.25$ na presença de campo, análise até o presente momento inédita via simulação MC no referido composto. Veri-ficamos que para baixas temperaturas o sistema neste regime possui uma forte dependência com a história da medição (ou, em nosso caso, do procedimento numérico utilizado), caracterizada pela curvas de magnetização FC-ZFC para diferentes campos, ciclos de histerese e linha AT de irreversibilidade. Nesta última os valores

MC obtidos para o expoente ϕ ($\phi = 3.4 \pm 0.6$) revelaram-se em concordância com ambos os resultados experimentais ($\phi = 3.4 \pm 0.2$), obtidos por Montenegro e colaboradores [67, 66], e aqueles obtidos através de simulação numérica sítio-a-sítio [44] ($\phi = 3.6 \pm 0.9$).

A irreversibilidade evidenciou-se também nos resultados que obtivemos para as curvas de histerese, onde observamos o surgimento de laços simétricos para $T < T_f$ via procedimento ZFC, como esperado em sistemas VS, saturação da magnetização em $H = 2.0$ e o surgimento de degraus para $T \ll T_f$.

O estudo MC da relaxação das magnetizações remanentes associadas aos ciclos FC (TRM) e ZFC (IRM) revelou um comportamento do tipo lei potência para tempo iniciais e logarítmico para tempos superiores ($t > 10^2 - 10^3$ MCS/spin). É importante ressaltar ainda que a pequena interação J_3 mostrou-se insuficiente para induzir alterações substanciais nos valores dos observáveis medidos, exceto para baixos campos no regime de baixíssimas temperaturas ($T \ll T_f$), como também encontrado em simulações MC a campo nulo [20].

Como perspectiva futura de continuação do presente trabalho, pretendemos investigar via simulação MC o efeito do campo magnético e dos ciclos realizados sobre a dinâmica e o fenenômeno de envelhecimento (*aging*) na fase $VS's$ do referido composto, a nucleação de domínios fractais que se formam no limiar da percolação, os efeitos da magnetização remanente para várias temperaturas e campos, a análise crítica da transição de fase na presença de campo magnético e o comportamento da fase vítrea para baixas temperaturas e altos campos. Acreditamos que nossos resultados, em conjunto com os dados de estudos experimentais já existentes, permitirão um entendimento mais aprofundado da fase $VS's$ no composto na presença de campo magnético.

Referências Bibliográficas

[1] Para revisões recente, veja, *e.g., Spin Glasses and Random Fields*, ed. A. P. Young (World Scientific, Singapore, 1997).

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

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

[4] F. C. Montenegro, Tese de Doutorado, UFPE (1988).

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

[6] H. E. Stanley, *Introduction to Phase Transitions and Critical Phenomena* (Oxford: UOP, 1971).

[7] R. B. Stinchcombe "*Dilute Magnetism em Phase Transition and Critical Phenomena*" **7**, (Academic Press Inc 1983).

[8] Y. Imry and S. K. Ma, Phys. Rev. Lett. **35**, 1399 (1975).

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

[10] D. Chowdhury and Biswal, *Annual Review of Computational Physics* I (editado por D. Stauffer, Singapore World Scientific (1991).

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

[12] V. Cannella and J. A. Mydosh, Phys. Rev. B **6**, 4220 (1972).

[13] K. H. Fisher and J. A. Hertz, *Spin Glasses* (Cambridge University Press, 1991).

[14] S. F. Edwards and P. W. Anderson, J. Phys. F **5**, 965 (1975).

[15] J. R. L. de Almeida and D. J. Thouless, J. Phys. A **11**, 983 (1978).

[16] Daniel S. Fisher and David A. Huse, Phys. Rev Lett. **56**, 1601 (1986).

[17] Daniel S. Fisher and David A. Huse, J. Phys. A **20**, L1005 (1987).

[18] Daniel S. Fisher and David A. Huse, Phys. Rev B **38**, 373 (1988).

[19] Daniel S. Fisher and David A. Huse, Phys. Rev. B **38**, 386 (1988).

[20] Paulo H. R. Barbosa, E. P. Raposo, and M. D. Coutinho-Filho, Phys. Rev. Lett. (aceito para publicação, 2003).

[21] E. P. Raposo, M. D. Coutinho-Filho, Phys. Rev. B, **57**, 3495 (1998).

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

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

[24] A. R. King, V. Jacarino, T. Sakakibara, M. Motokawa and M. Date, J. Magn. Magn. Mater. **31-34**, 1119 (1983).

[25] D. P. Belanger and H. Yoshizawa, Phys. Rev. B **35**, 4823 (1987).

[26] Y. Shapira, Phys. Rev B **2**, 2725 (1970).

[27] Y. Shapira, Phys. Lett A **30**, 388 (1969).

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

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

[30] S. K Ma, *Modern Theory of Critical Phenomena* (Benjamin, New York 1976).

[31] D. S. Fisher, Phys. Rev. Lett. **56**, 146 (1986).

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

[33] J. Villain, J. Phys. **46**, 1843 (1985)

[34] V. Jacarino and A. R. King, J. Phys. (Paris) **49**, C8-1209 (1988).

[35] S. M. Rezende, F. C. Montenegro and M. D. Coutinho-Filho, *New Trends in Magnetism* ed. M. D. Coutinho-Filho and S. M. Rezende, (World Scintific, Singapore, 1989).

[36] Para revisões recente, veja, *e.g., Spin Glasses and Random Fields*, ed. A. P. Young (World Scientific, Singapore, 1997).

[37] I. B. Ferreira, V. Jacarino and A. R. King, Phys. Rev B **43**, 10797 (1991).

[38] E. P. Raposo, M. D. Coutinho-Filho, and F. C. Montenegro, Europhys. Lett. **29**, 507 (1995).

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

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

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

[42] E. P. Raposo, M. D. Coutinho-Filho, Phys. Rev. B, **57**, 3495 (1998).

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

[44] E. P. Raposo, Tese de Doutorado, UFPE (1996).

[45] E. P. Raposo, M. D. Coutinho-Filho, J. Appl. Phys. **83**, 6311 (1998).

[46] Y. Imry and S. K. Ma, Phys. Rev. Lett. **35**, 1399 (1975).

[47] F. C. Montenegro, Tese de Doutorado, UFPE (1988).

[48] F. C. Montenegro and M. D. Coutinho-Filho and S. M. Rezende, Europhys. Lett. 8, 383 (1989).

[49] J. P. Bouchaud, L. F. Cugliondolo, J. Kurchan and Mérzad, "**Out Dynamics in Spin-Glasses and Other Systems** em "*Spin Glasses and Random Fields* ed. A. P. Young (World Scientific 1998).

[50] L. Ludgren, R. Svendlindh, P. Nordblad and O. Beckman, Phys. Rev. Lett. **51**, 911 (1983).

[51] P. Nordblad and P. Svendlindh, *"Experiments on Spin Glasses"* em **Spin Glasses and Random Fields** ed. P. Young, (World Scintific, Singapore, 1998).

[52] P. Granberg, P. Svedlindh, P. Nordblad, L. Lundgren and H. S. Chen, Phys. Rev. B **35**, 2075 (1987).

[53] J. Villain, Phys. Rev. Lett. **52**, 1543 (1984).

[54] H. Rieger, *Annual Review of Computational Physics II* ed. D. Stauffer, (World Scintific, Singapore, 1995).

[55] P. Granberg, P. Svedlindh, P. Nordblad, L. Lundgren and H. S. Chen, Phys. Rev. B **35**, 2075 (1987).

[56] N. Metropolis, A. W. Rosenblut, M. N. Rosenbluth, A. H. Teller and E. Teller, J. Chem. Phys. **21**, 1087 (1953).

[57] K. Binder, **The Monte Carlo Method in Condensed Matter Physics 71** (Springer, 1992).

[58] E. P. Raposo, M. D. Coutinho-Filho, and F. C. Montenegro, **155-159**, L155-L159 (1996).

[59] K. Binder, **The Monte Carlo Method in statical Physics 7** (Springer, 1979).

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

[61] R. H. Swendsen and J. S. Wang, Phys. Rev. Lett. **58**, 86 (1987).

[62] F. C. Montenegro, M. D. Coutinho-Filho, and S. M. Rezende, Europhys. Lett. **8**, 383 (1989).

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

[64] U. Wolff, Phys. Rev. Lett. 60, 1461 (1988)

[65] D. W. Heermann and A. N. Burkitt, Parallel Algorithms In Computacional Sciencem 24 (Springer-Verlang, 1991).

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

[67] F. C. Montenegro, Tese de Doutorado, UFPE (1988).

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

[69] K. Jonason and C. Djuberg and P. Nordblat and D. P. Belanger, Phys. Rev. B **56**, 5051 (1997).

[70] A. R. King and J. A. Mydosh and V. Jacarino **56**, 2525 (1986).

[71] M. E. Fisher, "*Critical Phenomena*" **E. Fermi Int. Scholl Physics** (Academic Press, New York 1983).

[72] J. L. Cardy, **Finite Size Scaling** (North-Holland, Amsterdam 1988).

[73] E. P. Raposo, M. D. Coutinho-Filho, and F. C. Montenegro, **155-159**, L155-L159 (1996).

[74] H. Maletta and W. Zinn, "*Spin Glass*", **Handbook on the physics and Chemistry of Rare Earths, Vol. 12**, ed. K. A. Gschneidner, Jr. and L. Eyring (North-Holland, 1986).

[75] P. H. R. Barbosa, E. P. Raposo, and M. D. Coutinho-Filho, Mater. Sci. Forum **373-376**, 705 (2001).

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

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

[78] P. H. R. Barbosa, Tese de Doutorado, UFPE (2000).

[79] R. B. Stinchcombe "*Dilute Magnetism em Phase Transition and Critical Phenomena*" **7**, (Academic Press Inc 1983).

[80] D. Chowdhury and B. Biswal, *Annual Review of Computational Physics I* ed. D. Stauffer, (World Scintific, Singapore, 1991).

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

[82] David Sherrington and Scott Kirkpatrick, Phys. Rev. Lett. **35**, 1792 (1975).

[83] J. R. L. de Almeida and D. J. Thouless, J. Phys. A **11**, 983 (1978).

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

[85] K. Levin, C. M. Soukoulis and G. S. Grest, J. Appl Phys. **50**, 1695 (1977).

[86] Daniel S. Fisher and David A. Huse, Phys. Rev. B **38**, 386 (1988).

[87] Daniel S. Fisher and David A. Huse, Phys. Rev B **38**, 373 (1988).

[88] Daniel S. Fisher and David A. Huse, J. Phys. A **20**, L997 (1987).

[89] Daniel S. Fisher and David A. Huse, J. Phys. A **20**, L1005 (1987).

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

[91] A. R. King and J. A. Mydosh and V. Jacarino **56**, 2525 (1986).

[92] V. Jacarino and A. R. King, Phys. A **163**, 291 (1988).

[93] V. Jacarino and A. R. King *New Trends in Magnetism* ed. M. D. Coutinho-Filho and S. M. Rezende, (World Scintific, Singapore, 1989).

[94] A. R. King, V. Jacarino, T. Sakakibara, M. Motokawa and M. Date, Phys. Rev. Lett. **47**, 117 (1981).

[95] V. Jacarino and A. R. King, J. Phys. (Paris) **49**, C8-1209 (1988).

[96] A. R. King, V. Jacarino, T. Sakakibara, M. Motokawa and M. Date, J. Appl. Phys. **53**, 1874 (1982).

[97] Y. Shapira, Phys. Lett A **30**, 388 (1969).

[98] D. Chowdhury and B. Biswal, *Annual Review of Computational Physics I* ed. D. Stauffer, (World Scintific, Singapore, 1991).

[99] D. P. Belanger and A. P. Young, J. Magn. Magn. Mater. **100**, 272 (1991).

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

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

[102] D. P. Belanger, *Spin Glasses and Random Fields* ed. A. P Young (Directions in Condensed Matter Physics **12**, World Scientific 1998).

[103] S-J. Han and D. P. Belanger, Phys. Rev. B **46**, 2926 (1992).

[104] D. P. Belanger, Phase Trans. **11**, 53 (1980).

[105] A. R. King and D. P. Belanger, J. Magn. Magn. Mater. **54-57**, 19 (1986).

[106] D. P. Belanger, E. Murray Jr., F. C. Montenegro, A. R. King, V. Jacarino and R. W. Erwin, Phys. Rev B **44**, 2161 (1991-I).

[107] D. P. Belanger, B. Farago, V. Jacarino, A. R. King, C. Lartigue and F. Mezei, J. Phys. (Paris) **49**, C8-1229 (1988).

[108] S-J. Han, D. P. Belanger, W. Kleemann and U. Nowak, Phys. Rev. B **45**, 9728 (1995-II).

[109] D. P. Belanger, A. R. King and V. Jacarino, Phys. rev B **34**, 452 (1986).

[110] D. P. Belanger, A. R. King and V. Jacarino, Phys. rev B **31**, 4538 (1985).

[111] L. Ludgren, R. Svendlindh, P. Nordblad and O. Beckman, Phys. Rev. Lett. **51**, 911 (1983).

[112] P. Nordblad and P. Svendlindh, *"Experiments on Spin Glasses"* em **Spin Glasses and Random Fields** ed. P. Young, (World Scintific, Singapore, 1998).

[113] K. Gunnarson, P. Svedlindh, P. Nordblad, L. Lundgren, H. Aruga and A. Ito, Phys. Rev. Lett. **61**, 754 (1988).

[114] P. Granberg, P. Svedlindh, P. Nordblad, L. Lundgren and H. S. Chen, Phys. Rev. B **35**, 2075 (1987).

[115] P. Nordblad, P. Svendlindh, L. Lundgren and L. Sandlung, Phys. Rev. B **36**, 645 (1986).

[116] P. Granberg, L. Sandlung, P. Nordblad, P. Svendlindh and L. Lundgren, Phys. Rev. B **38**, 7097 (1988).

[117] K. Jonason, C. Djurberg, P. Nordblad and D. P. Belanger, Phys. Rev. B **56**, 5051 (1997).

[118] L. Ludgren, P. Nordblad and P. Sverdlindh, Phys. Rev B **34**, 8164 (1987).

[119] P. Nordblad, L. Lundgrenn, K. Gunnarson, J. Phys. (Paris) **49**, C8-1069 (1988).

[120] G. S. Grest , C. M. Soukoulis, and K. Levin, Phys. Rev. B **33**, 7659 (1986).