

Tese de Doutorado em Física

**Acoplamento Dipolar entre Partículas
Ferromagnéticas**

Antonio Weizenmann

Tese de Doutorado em Física

Acoplamento Dipolar entre Partículas Ferromagnéticas

Antonio Weizenmann

Tese submetida ao Curso de
Pós-graduação em Física, como parte
dos requisitos para obtenção do grau
de Doutor em Física.

Orientador: Dr. Wagner Figueiredo

*À memória de
meu pai e à força
de minha mãe.*

Agradecimentos

Ter passado pela Universidade Federal de Santa Catarina foi uma experiência muito positiva na minha vida. A estrutura, o corpo docente, o corpo técnico e o ambiente acadêmico como um todo se mostrou colaborativo e propício ao trabalho. Portanto, devo agradecimento a todos, principalmente ao Prof. Dr. Wagner Figueiredo, que me orientou de forma exemplar, dando toda a atenção e o suporte necessário.

Aos professores, Dr. Luis Guilherme, Dr. Leonardo Lauck e Dr. Márcio Santos, agradeço pelas colaborações. Também ao Prof. Dr. Nilton Branco, com o qual assisti algumas cadeiras, que em vários momentos tirou dúvidas, criou dúvidas e deu sugestões.

A Dr. Vanessa S. Leite, que trabalhou com partículas únicas e deixou um legado que me ajudou principalmente na parte computacional. Ela é didática até em seus rascunhos.

Ainda no ambiente acadêmico, devo agradecimentos a todos os alunos com os quais interagi na UFSC, especialmente (em ordem alfabética) Daniel, Fabrício, Ian, Marcelo Freitas, Marcelo Ribeiro, Tharnier e William.

Devo agradecer a todos da Coordenação do Curso e do Departamento, que sempre me apoiaram e realizaram seu trabalho com presteza.

Ao Governo Federal e ao Estado de Mato Grosso, agradeço pelo apoio financeiro.

Sou grato eternamente à minha família, que sempre me motiva, apóia e ampara.

À mulher de minha vida, Sally, agradeço o companheirismo, a paciência e o amor.

Florianópolis, Santa Catarina
Dezembro, 2010

Antonio Weizenmann

Resumo

Nesta Tese estudamos o efeito do acoplamento dipolar nas propriedades magnéticas de dois tipos de sistemas. O primeiro deles consiste de duas pequenas partículas cujos spins estão acoplados ferromagneticamente. Cada partícula é descrita por uma estrutura bidimensional finita de spins interagindo através da hamiltoniana de Ising, ou por uma rede finita em duas ou três dimensões de spins interagindo através da hamiltoniana de Heisenberg com spins clássicos. Em ambas as situações temos um spin central rodeado por um número variável de camadas magnéticas. O acoplamento entre spins dentro de cada partícula é ferromagnético, e consideramos uma interação dipolar apenas entre as partículas. Nós investigamos o sistema bidimensional de spins de Ising através da aproximação de campo médio e simulações de Monte Carlo. A interação dipolar é calculada de duas maneiras diferentes. Em uma delas, assumimos que a interação dipolar ocorra entre momentos magnéticos efetivos localizados nos centros das partículas, e na outra, computamos diretamente as interações entre todos os pares de spins, um em cada partícula. Mostramos que a diferença entre os valores da energia dipolar calculada pelos dois métodos é descrita por uma lei de potência do tipo d^5 , onde d é a distância entre os centros das partículas. Calculamos a magnetização e a susceptibilidade em função da temperatura, do número de camadas e da distância entre os centros de partículas. Mostramos que a temperatura crítica aumenta com o número de spins em cada partícula, e isso é mais notável nos cálculos realizados através da aproximação de campo médio que nas simulações de Monte Carlo. O segundo problema estudado nesta Tese consiste de um conjunto de partículas de monodomínio. Este sistema é investigado através de simulações de Monte Carlo em três redes diferentes. Consideramos uma rede cúbica simples, uma rede cúbica de face centrada e uma estrutura tipo líquido. As partículas são acopladas pela interação dipolar de longo alcance e apresentam uma anisotropia uniaxial, cuja magnitude é escolhida a partir de uma distribuição de Gauss e cujos eixos de fácil magnetização estão orientados aleatoriamente no espaço tridimensional. Determinamos a temperatura de bloqueio e as curvas de histerese em função da razão entre as magnitudes da interação dipolar e da anisotropia uniaxial. Mostramos que a remanência e o campo coercivo dependem fortemente da estrutura considerada. Estes resultados são comparados com aqueles obtidos para um sistema de partículas não interagentes.

Abstract

In this Thesis we study the effect of the dipolar coupling on the magnetic properties of two types of systems. The first one consists of two small interacting ferromagnetic particles. Each particle is described by a finite two-dimensional array of Ising spins or by a two- or three-dimensional array of classical spins, both with a central spin surrounded by a variable number of shells. The coupling between spins inside each particle is ferromagnetic and we consider dipolar interactions only between the particles. We investigate the two-dimensional Ising system by the mean-field approximation and Monte Carlo simulations. The dipolar interaction is calculated in two ways, one assuming effective magnetic moments in the centers of the particles, and the other directly computing the interactions among all the pairs of spins, one in each particle. We show that the difference in the corresponding dipolar energies is a power law on the distance between their centers with exponent 5. We calculate the magnetization and susceptibility as a function of temperature, number of shells and distance between the particles' centers. We show that the critical temperature increases with the number of spins in each particle, and this is more noticeable in the mean field calculations than in the Monte Carlo simulations. The second problem investigated in this Thesis consists of a set of single domain particles. It has been studied through Monte Carlo simulations on three different lattices. A simple cubic lattice, a face centered cubic lattice and a liquid-like structure. The particles are coupled by long range dipolar forces and they present a single ion uniaxial anisotropy, whose magnitude is chosen from a Gaussian distribution, and whose easy magnetization axes are oriented randomly in the three dimensional space. We determined the blocking temperature and the hysteresis curves as a function of the ratio between the magnitude of dipolar coupling and uniaxial anisotropy. We show that the remanence and coercive field depend strongly on the nature of the magnetic arrangement. These results are compared with those found for a system of non interacting particles.

Conteúdo

Agradecimentos	iii
Resumo	v
Abstract	vii
1 Introdução	1
1.1 Breve histórico do magnetismo	1
1.2 Comportamento magnético	2
1.2.1 Diamagnetismo e paramagnetismo	3
1.2.2 Ferromagnetismo	5
1.2.3 Antiferromagnetismo e ferrimagnetismo	5
1.3 Magnetismo de materiais ferromagnéticos	6
1.3.1 Ferromagnetismo e domínios magnéticos	6
1.3.2 Ferromagnetismo e histerese	8
1.3.3 Anisotropia magnética	9
1.4 Nanomagnetismo	11
1.4.1 Partículas de monodomínio	13
1.5 Sistemas de partículas interagentes	14
1.6 Estrutura da Tese	15
2 Interação dipolar em sistemas de tamanho finito	17
2.1 O Modelo	20
2.2 Equações de Campo Médio	24
2.3 Simulações de Monte Carlo	30
2.4 Resultados e Conclusões	31
2.4.1 Partículas bidimensionais	31
2.4.2 Partículas tridimensionais	44
3 Efeitos da interação dipolar em sistemas de partículas de domínio único	51
3.1 Introdução	51
3.2 Modelo e Simulações de Monte Carlo	52
3.3 Resultados e Conclusões	58
4 Conclusões	65

5	Perspectivas de Trabalhos Futuros	67
	Referências Bibliográficas	69

1 Introdução

1.1 Breve histórico do magnetismo

Quando o ser humano experimentou pela primeira vez a propriedade de uma pedra específica de atrair certos metais, iniciou-se a lenta jornada da compreensão daquilo que chamamos hoje de magnetismo. Uma das primeiras aplicações dessa propriedade foi a bússola, que teve grande relevância histórica. Entretanto, por séculos, apenas a bússola tinha algum impacto relevante na vida das pessoas. Isto até o uso do magnetismo em motores, computadores, equipamentos hospitalares, cartões, etc.

Primeiras tentativas registradas de explicar o fenômeno ferromagnético, foram feitas por figuras históricas como Tales de Mileto (em torno de 585 a.C.) e depois por Lucrécio, que viveu entre 99 e 55 a.C., e que escreveu o “*De Rerum Natura*”, com uma abordagem já razoavelmente parecida com a metodologia científica, onde expõe a física atomista de Demócrito e a filosofia moral de Epicuro. Em “*Naturalis Historia*”, Plínio, que viveu entre os anos 23 e 79 d.C., também aborda o tema.

Já na Idade Média, houve pouco progresso na área, com a importante exceção do uso da bússola na navegação. Aliás, a descoberta da bússola é creditada aos chineses, que a teriam usado há quatro mil anos [1]. Uma abordagem de estudo já bastante científica foi utilizada em “*De Magnete*”, publicado em 1600, pelo inglês William Gilbert (1540 - 1603). Gilbert foi talvez o primeiro a entender claramente que a Terra por si só é um magneto gigante. Ele até mesmo construiu uma “*terrella*” (pequena Terra, em latim), uma esfera magnetizada com a qual mostrou haver correspondência com fenômenos observados no uso da bússola.

Em torno do final do século XVIII, Coulomb mostrou que a força magnética seguia uma lei similar à lei da força elétrica [2]. Mas foi em torno do ano de 1820 que o magnetismo passou por uma profunda revolução, quando Hans Christian Ørsted verificou que uma corrente elétrica em um fio influenciava a agulha de uma bússola, movendo-a. Isso indicava que o magnetismo estava de alguma forma relacionado com a eletricidade. Até essa data, o magnetismo conhecido era aquele oriundo apenas de materiais magnéticos. A partir daí, o estudo do magnetismo se intensificou e vários trabalhos importantes foram feitos por cientistas como André-Marie Ampère, Carl Friedrich Gauss, Michael Faraday e outros. James Clerk Maxwell, em 1873 publicou seu “*A Treatise on Electricity and Magnetism*” [3], onde sintetizou o conhecimento

da época nas famosas “Equações de Maxwell”, unificando a eletricidade e o magnetismo, surgindo assim o eletromagnetismo.

Assim, percebe-se a curiosidade e a perplexidade humana diante do fenômeno magnético desde os mais remotos registros sobre magnetismo. Como que tateando no escuro inicialmente, a humanidade procurou entender e usar essa poderosa ferramenta. Atualmente, o uso de materiais magnéticos permeia nosso dia-a-dia, muitas vezes oculta nos equipamentos de avançada tecnologia, cada vez mais comuns. Há um interesse cada vez maior em novos materiais magnéticos para a utilização em transformadores e fontes, geradores de campo magnético, sensores, motores e atuadores, armazenamento de dados e memórias [4]. Esses materiais são um território fértil para investigação científica e, com certeza, transcendem a física da matéria condensada, abrangendo cada vez mais ramos da ciência. Até mesmo a vida, durante a evolução, incorporou materiais magnéticos nos seres vivos, como é o caso de bactérias, peixes, pássaros, etc. [5, 6, 7].

1.2 Comportamento magnético

Popularmente, o magnetismo sempre remete ao comportamento ferromagnético de alguns materiais: os ímãs. Estes materiais apresentam magnetização espontânea ou remanente, mesmo sem a presença de um campo magnético, abaixo de uma determinada temperatura. Porém, o estudo do magnetismo engloba muitos outros comportamentos magnéticos. Entre eles temos diamagnetismo, paramagnetismo, antiferromagnetismo, etc. Além disso, é comum que no mesmo material existam características combinadas. Faraday mostrou que um material sempre é diamagnético ou paramagnético, apresentando ao menos um desses comportamentos [2].

A explicação atual para o magnetismo em materiais é baseada na existência de momentos magnéticos oriundos de correntes microscópicas. Estas correntes são originadas do movimento orbital do elétron e do momento angular intrínseco (spin) do elétron [1]. Os momentos atômicos podem, localmente, se acoplar paralelamente ou antiparalelamente. Existe também a possibilidade de não haver acoplamento. A maneira pela qual os momentos atômicos se acoplam ou não pode ser usada para classificar os materiais magnéticos. São chamados de paramagnetos os materiais em que não há acoplamento. Neste caso os momentos magnéticos ficam orientados aleatoriamente; entretanto, na presença de um campo externo, eles podem se orientar na direção deste. Quando há acoplamento eles podem ser classificados como ferromag-

netos (acoplamento paralelo), antiferromagnetos (acoplamento antiparalelo), ferrimagnetos (o acoplamento muda de acordo com o tipo de vizinho), etc.

Ainda que os trabalhos apresentados nos próximos capítulos sejam sempre sobre materiais ferromagnéticos, com o intuito de fornecer uma visão um pouco mais ampla, vamos fazer a seguir uma pequena descrição de alguns tipos de magnetismo. Depois, faremos uma abordagem mais ampla sobre magnetismo de materiais ferromagnéticos.

1.2.1 Diamagnetismo e paramagnetismo

Materiais diamagnéticos e paramagnéticos foram estudados intensivamente por Pierre Curie em 1895 [8], cujas observações foram explicadas usando a teoria do elétron por Langevin em 1905 [9]. Naquela época, um átomo era visto com seus elétrons se movendo em órbitas em torno de um núcleo sob a ação de uma força central. Apesar dos posteriores avanços na teoria quântica da estrutura atômica, o tratamento dado por Langevin continua sendo a explicação aceita, uma vez que não depende de considerações muito específicas e, assim, foi facilmente modificada para incorporar os efeitos quânticos. Basicamente, é possível verificar se um material é diamagnético ou paramagnético analisando sua susceptibilidade (χ), a maneira como ele responde a um campo magnético aplicado.

Diamagnetismo

Um material diamagnético apresenta uma susceptibilidade linear e negativa. Portanto, um material puramente diamagnético será repelido pelo campo aplicado. O diamagnetismo está presente em todos os materiais, entretanto, devido a sua magnitude geralmente baixa, seu efeito fica encoberto por outros efeitos magnéticos mais intensos como o paramagnetismo e o ferromagnetismo. A água, por exemplo, tem susceptibilidade $\chi \sim -9,0 \times 10^{-6}$ e o carbono pirolítico tem $\chi \sim -1,6 \times 10^{-4}$, sendo este último um dos materiais diamagnéticos de maior susceptibilidade.

O efeito diamagnético está relacionado com a precessão do momento magnético criado pelo movimento orbital dos elétrons dos átomos. Quando um campo externo é aplicado ao material, a velocidade orbital dos elétrons modifica-se de uma maneira que altera seu campo magnético, opondo-se à mudança do fluxo magnético. Portanto, o diamagnetismo não está relacionado ao alinhamento ou não de momentos atômicos pre-existentes, mas sim é uma resposta eletrônica ao campo aplicado, que cria um momento atômico ou

molecular. Exemplos de substâncias diamagnéticas são: água, cobre, chumbo, prata, bismuto, carbono pirolítico, etc..

Paramagnetismo

Assim como o diamagnetismo, o paramagnetismo também é um comportamento magnético que apenas se apresenta quando um campo é aplicado. Ele também é uma forma fraca de resposta magnética, caracterizado, no entanto, pela susceptibilidade linear e positiva, de modo que esses materiais sejam atraídos pelo campo externo. A susceptibilidade dos paramagnetos diminui com o aumento da temperatura. Esta razão inversamente proporcional à temperatura é conhecida como Lei de Curie [8], dada por

$$\chi = \frac{C}{T}, \quad (1)$$

onde χ é a susceptibilidade, T é a temperatura e C é a constante de Curie, que depende do material. O tratamento dado por Langevin [9] considera um gás cujas moléculas têm momento magnético permanente devido aos elétrons circulando em suas órbitas. Quando um campo magnético é aplicado a um material desse tipo, os momentos de dipolo tentam se alinhar com o campo magnético. A agitação térmica aleatória, que aumenta com a temperatura, impede um alinhamento perfeito. Na prática, o paramagnetismo pode ter várias origens diferentes. O paramagnetismo de Curie, descrito acima, resulta da presença de átomos com elétrons desemparelhados e efetivamente segue a lei de Curie (Equação 1).

Uma outra descrição, o paramagnetismo de Curie-Weiss, se diferencia pela adição de uma interação entre os momentos magnéticos dos diferentes átomos à interação com o campo magnético aplicado. Esta nova interação tem o efeito de modificar a proporcionalidade da lei de Curie levando a

$$\chi = \frac{C}{T - \theta}, \quad (2)$$

onde θ é uma constante que incorpora a interação entre os momentos magnéticos, podendo tanto ser positiva como negativa.

O paramagnetismo de Pauli é observado em metais e é devido ao fato que os elétrons de condução têm momentos magnéticos que podem se alinhar com um campo aplicado. Esse tipo de paramagnetismo é caracterizado por uma susceptibilidade cujo valor é aproximadamente independente da temperatura. Metais alcalinos, platina e alumínio são exemplos de paramagnetos em qualquer temperatura.

1.2.2 Ferromagnetismo

Ferromagnetismo é o comportamento magnético de maior relevância, em termos de aplicações cotidianas, de modo que popularmente o termo “magnetismo” refere-se a este comportamento específico. O ferromagnetismo surge de um ordenamento de longo alcance e persiste apenas abaixo de certa temperatura crítica, a temperatura de Curie (T_C). É um comportamento exibido pelo ferro, cobalto e níquel, além de elementos terras raras, como o gadolínio e disprósio. O modelo clássico do átomo não é suficiente para explicar apropriadamente a origem física do ferromagnetismo, por ser um fenômeno intrinsecamente quântico. O comportamento ferromagnético só se apresenta em um material quando os momentos magnéticos podem interagir entre si, alinhando-se paralelamente. Uma explicação clássica é baseada na teoria do campo molecular de Weiss, que em 1907 postulou a existência de um campo magnético interno ao material, proporcional a sua magnetização espontânea [10]. Este campo seria suficiente para levar a magnetização a seu valor de saturação. Entretanto, esta teoria baseia-se na falsa consideração de que os elétrons interagem com o campo molecular e não entre si. Na mecânica quântica o modelo de Heisenberg do ferromagnetismo descreve o alinhamento paralelo dos momentos magnéticos em termos da interação de troca entre momentos vizinhos. Nos materiais ferromagnéticos os spins de elétrons desemparelhados de um átomo interagem com os spins de elétrons desemparelhados dos átomos vizinhos, levando a um alinhamento paralelo. Esta interação, ou acoplamento de troca, não tem uma explicação clássica, sendo unicamente de natureza quântica.

Acima da temperatura de Curie, T_C , a energia térmica se torna suficiente para destruir o ordenamento de longo alcance e o material passa a ter um comportamento paramagnético, do tipo Curie-Weiss, descrito pela Equação 2.

1.2.3 Antiferromagnetismo e ferrimagnetismo

Estes dois tipos de comportamento magnético são parecidos entre si, e estreitamente relacionados ao ferromagnetismo.

Antiferromagnetismo

O que diferencia um material antiferromagnético de um ferromagnético é que no primeiro, apesar de haver interação de troca entre momentos magnéticos vizinhos, esta interação leva a um alinhamento antiparalelo. Assim, o

campo criado pelos momentos magnéticos se cancela e não há uma magnetização líquida.

Acima de uma determinada temperatura crítica, chamada de temperatura de Néel [11], materiais antiferromagnéticos também tornam-se paramagnéticos.

Ferrimagnetismo

Alguns materiais, principalmente compostos, que têm estruturas cristalinas mais complexas que elementos puros, apresentam o ferrimagnetismo. No interior desses materiais, a interação de troca induz determinados átomos em certos sítios do cristal ao alinhamento paralelo, enquanto os outros se alinham antiparalelamente. O comportamento é similar ao ferromagnetismo, porém com magnetização de saturação menor.

1.3 Magnetismo de materiais ferromagnéticos

1.3.1 Ferromagnetismo e domínios magnéticos

É uma experiência corriqueira observar que um pedaço de material ferromagnético, como o ferro, não apresenta os polos norte e sul, de modo que pareça completamente desmagnetizado. Apenas na presença de um campo externo é que sua natureza magnética se revela. Pierre Weiss, em 1907 [10], propôs que esse comportamento se devia à formação de domínios magnéticos, regiões no interior de um material ferromagnético formadas por um grande número de momentos magnéticos, tipicamente da ordem de 10^{12} a 10^{15} [12] dipolos atômicos, que estão alinhados paralelamente com seus vizinhos através da interação de troca. Dentro da região delimitada de um domínio magnético há uma saturação da magnetização. Na amostra toda podemos encontrar vários domínios, porém com direções e sentidos variados. A princípio, as direções e sentidos são aleatórios, entretanto, é comum que cada material apresente uma direção preferencial, que é denominada de eixo de fácil magnetização. Dependendo da distribuição dos domínios magnéticos dentro do material, pode ocorrer que um domínio anule o efeito da magnetização de outro e, portanto, globalmente, o material apresente magnetização próxima de zero. Quando o sistema está sob a ação de um campo magnético, as paredes desses domínios se movimentam e se reorientam, aumentando a região de momentos magnéticos na mesma direção do campo, e levando a uma diminuição de sua energia interna. Para pequenos valores do campo este processo é

reversível, permitindo que a magnetização retorne ao valor anterior por conta própria quando o campo é removido. Entretanto, quando o campo é intenso, o processo torna-se irreversível, e o sistema não retorna mais à sua magnetização inicial, exceto pela aplicação de um campo contrário. Isso caracteriza o material, que apresenta a histerese, como tendo um “efeito de memória”. A figura (1) é um esboço desse fenômeno.

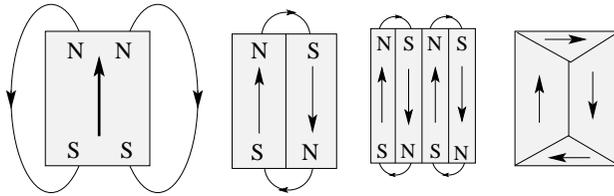


Figura 1: Formação de domínios como uma minimização da energia magnetostática.

Landau e Lifshitz mostraram, em 1935, que a existência desses domínios é uma consequência da minimização da energia. Uma amostra que apresenta um único domínio tem associado a isto um alto valor de energia magnetostática devida aos polos livres na superfície. A criação de domínios magnéticos na amostra implica na formação de paredes de domínio, regiões onde ocorre uma reorientação gradual dos momentos magnéticos [13], como podemos ver na figura (2).

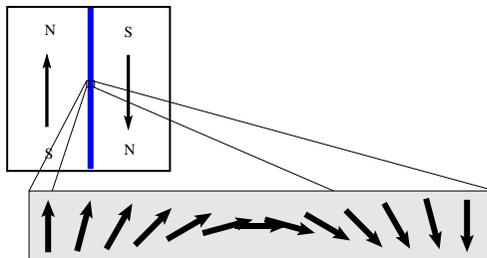


Figura 2: Pared de domínio: reorientação gradual dos momentos magnéticos.

Vários fatores influenciam na formação de domínios, principalmente a estrutura cristalina e o formato da partícula, determinando a sua anisotropia magnética.

1.3.2 Ferromagnetismo e histerese

Uma forma interessante de se estudar um determinado material ferromagnético é construir curvas de histerese. Uma introdução didática a esse tópico encontra-se na referência [14]. Nesse trabalho são exibidas curvas que representam o gráfico da magnetização em função da intensidade de um campo magnético aplicado. Do ponto de vista experimental, as curvas de histerese informam sobre a “dureza” dos materiais magnéticos, que está relacionada com sua anisotropia cristalina.

Existem alguns pontos de maior interesse numa curva de histerese, como podemos ver na Figura (3). Ao aplicarmos um campo magnético externo, os momentos tendem a se alinhar com este campo e, dependendo de alguns fatores, levar o valor da magnetização da amostra ao seu valor máximo: a magnetização de saturação. Sem o campo aplicado, mesmo em temperaturas abaixo da temperatura de Curie, uma amostra macroscópica em geral apresenta magnetização menor que a de saturação, podendo inclusive apresentar uma magnetização total nula.

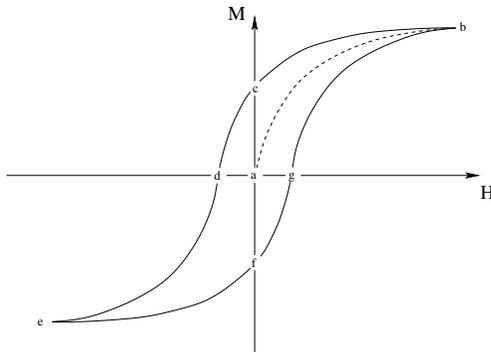


Figura 3: Curva de histerese de um ferromagneto.

Se tomarmos uma amostra de um material ferromagnético em seu estado de magnetização nula (veja o ponto “a” na Figura (3)), e aplicarmos um campo magnético cuja intensidade vai aumentando lentamente, sua magnetização irá crescer até um valor máximo, chamado de magnetização de saturação (b). Neste estágio, mesmo que a intensidade do campo aumente muito, a magnetização tende a um valor constante. Se retrocedermos, diminuindo lentamente o campo, a magnetização eventualmente também poderá reduzir seu valor,

porém não na mesma proporção em que cresceu. Quando o campo se reduzir a zero, a magnetização terá um valor diferente de zero, chamado de magnetização remanente ou simplesmente “remanência” (c). Se aplicamos agora um campo com sentido oposto ao anterior, com intensidade lentamente crescente, o valor da magnetização se reduz. Quando o campo atinge uma intensidade que faz anular a magnetização, ele é denominado de campo coercivo (d). Como o campo continua crescendo em valor absoluto, a magnetização também cresce até sua saturação no sentido oposto (e). Retirando novamente o campo, de forma lenta e gradual, atingiremos novamente um valor de remanência (f). Depois, invertendo e aumentando o campo, alcançaremos um valor positivo para o campo coercivo (g) e, finalmente, retornamos à magnetização de saturação (b). Daí em diante, todo o ciclo de histerese se repetirá na medida que variarmos a intensidade e o sentido do campo, porém, não mais passando pelo ponto inicial (a).

Para entender melhor o conceito e as propriedades dos domínios e estruturas magnéticas, faz-se necessário considerar a influência da estrutura e da forma do cristal na direção da magnetização, ou seja, a anisotropia magnética.

1.3.3 Anisotropia magnética

Quando uma propriedade física de um material é uma função da direção, diz-se que ela apresenta anisotropia. Portanto, a existência de uma direção preferencial na magnetização, quando um campo magnético está sendo aplicado, é denominada anisotropia magnética. Essa anisotropia pode ser de três tipos principais: magnetocristalina, que depende da estrutura cristalina do material; anisotropia de *stress*, que está relacionada a uma tensão mecânica aplicada ou residual; e anisotropia de forma, determinada pelo formato do grão ou partícula.

Anisotropia magnetocristalina

A anisotropia magnetocristalina é uma propriedade intrínseca de um ferromagneto e independe da forma e tamanho da amostra. Esse tipo de anisotropia está relacionada com a energia necessária para fazer um momento magnético que está apontando na direção do eixo de fácil magnetização passar a apontar para o eixo de difícil magnetização. Existem dois tipos de momentos magnéticos associados ao elétron: o momento devido ao spin (propriedade intrínseca) e o momento magnético devido ao seu movimento orbital. Os eixos de fácil e difícil magnetização originam-se da interação entre estes dois mo-

mentos, que é conhecida como acoplamento spin-órbita, bem como da ligação química dos elétrons de um dado átomo na presença do campo elétrico cristalino. Se o campo cristalino local *visto* por um átomo é de baixa simetria, e se a distribuição dos elétrons de ligação deste átomo for assimétrica, então os orbitais atômicos interagem anisotropicamente com o campo cristalino. Isso implica em dizer que certas orientações para os orbitais moleculares, ou a distribuição de carga devido aos elétrons de ligação, são energeticamente preferidas. É dessa forma que o momento magnético local distingue diferentes direções cristalográficas, ou seja, é a forma com a qual ele se acopla à rede [1].

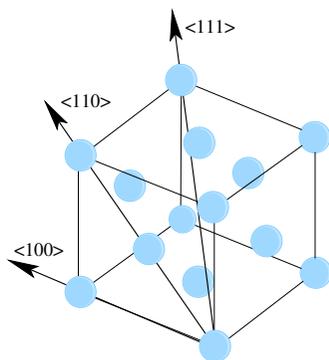


Figura 4: Direção do eixo fácil <111> em uma rede FCC. O eixo de difícil magnetização é o <100>

e o eixo <110> é o chamado eixo intermediário.

Para uma rede FCC (rede cúbica de face centrada), que é o caso do níquel, Figura (4), o eixo de fácil magnetização é o <111>, enquanto que o eixo de difícil magnetização, também denominado de eixo duro de magnetização, é o eixo <100>. Isso quer dizer que o campo necessário para levar a magnetização do níquel à saturação na direção <111> é menor que o necessário para a saturação na direção <100>. Outro exemplo é o ferro, que apresenta uma distribuição de seus átomos em uma rede cúbica de corpo centrado (BCC), com um processo de magnetização mais fácil na direção <100> e mais difícil na direção <111> [1].

Anisotropia de *stress* ou de magnetostricção

Este tipo de anisotropia está relacionado também ao acoplamento spin-

órbita e é a propriedade dos materiais ferromagnéticos de se deformarem pela presença de um campo magnético externo. Trata-se de uma propriedade inerente ao material que não muda com o tempo. Este fenômeno foi descoberto por James Joule em 1842, quando ele observou que, na presença de um campo magnético na direção do eixo de uma barra de ferro, esta experimentava um incremento em seu comprimento. Os materiais magnetostritivos experimentam também o efeito inverso, ou seja, quando o material se deforma, induz-se um campo magnético.

Anisotropia de forma

A forma, principalmente em termos de um distribuição proporcional dos dipolos atômicos, tem forte influência na magnetização de uma amostra. Uma barra de $2\text{mm} \times 2\text{mm} \times 6\text{mm}$ constituída de material ferromagnético, necessitará de um campo aplicado muito menor para ser magnetizada na direção mais longa. Outro efeito da forma é a diferença no campo criado quando duas amostras possuem o mesmo volume, porém diferentes formas. Isso poderia ser observado ao compararmos o campo magnético a uma distância fixa de uma barra de dimensões $2\text{mm} \times 3\text{mm} \times 4\text{mm}$ (mais curta, 24mm^3), com o campo produzido pela barra anterior (mais longa, mas com o mesmo volume), à mesma distância da ponta das barras nas mesmas condições de magnetização. A barra mais longa apresentará uma intensidade menor no campo produzido.

1.4 Nanomagnetismo

Uma revolução, bem recente, vem ocorrendo dentro da área do magnetismo: o nanomagnetismo, que é o estudo do magnetismo no âmbito dos tamanhos nanométricos ($1\text{nm} = 1 \times 10^{-9}\text{m}$). O nanomagnetismo, por sua vez, está dentro de uma área mais geral que é a de nanomateriais. A estruturação do conhecimento a respeito de materiais na escala nanométrica iniciou-se com o descobrimento da magnetoresistência gigante [15, 16, 17, 18, 19], que deu um grande impulso no estudo e desenvolvimento de materiais nanoestruturados, ou seja, materiais que contém partículas, filmes, fios e outras estruturas em escala nanoscópica. Verificou-se que as propriedades dos materiais em geral se modificam consideravelmente na medida em que seu tamanho se aproxima da escala nanoscópica. O comportamento diferenciado está relacionado principalmente com fatores como dimensões próximas ou inferiores ao tamanho limite para o monodomínio magnético e a alta proporção de átomos na super-

fície em relação aos átomos internos a um pedaço micro ou nanoscópico de material. A área da superfície de uma amostra varia tipicamente com $\sim r^2$, enquanto o volume varia com $\sim r^3$. Consequentemente, a razão da superfície para o volume varia com um fator proporcional a r^{-1} , aumentando, portanto, na medida que se reduz o tamanho da amostra. Em alguns casos limite, como por exemplo, em um filme fino formado por apenas uma ou duas camadas atômicas, todos os átomos estão na superfície [20]. Filmes magnéticos finos têm sido objeto de estudo por um grande número de cientistas nas duas últimas décadas [21, 22, 23], motivados geralmente pelas aplicações tecnológicas dessas estruturas e os grandes desafios científicos que estes proporcionam [24].

Sabe-se que nanomateriais, devido às suas propriedades ópticas, têm sido usados desde o século IX em decoração de potes [25, 26, 27], ainda que de forma não objetiva, ou seja, quem estava usando os materiais, não fazia a menor ideia da ciência envolvida. O nanomagnetismo abrange o estudo e aplicações das propriedades do magnetismo de nanopartículas isoladas, nanofios, filmes finos e multicamadas, amostras magnéticas volumosas que incorporam partículas nanoscópicas, etc. Existem muitas aplicações práticas em áreas como medicina e biologia [28], geologia [29], gravação magnética de alta densidade [30], refrigeração magnética [31], desenvolvimento de materiais [32] entre outras [24]. O grande interesse nessa área se origina no fato de haver grandes diferenças entre o comportamento magnético macroscópico e nanoscópico.

A obtenção de partículas de tamanho reduzido se dá através de dois princípios básicos de fabricação [24, 33]: Primeiro, a decomposição (em inglês *top-down*, literalmente “de cima para baixo”). A decomposição refere-se, de forma geral, a técnicas como litografia, *melt-spinning* (congelamento com rotação) e moagem mecânica. O segundo princípio é o crescimento (em inglês *bottom-up*, de “baixo para cima”). Técnicas de crescimento se utilizam de autoestruturação com precursores moleculares. Como exemplos, temos a deposição de vapor, *sputtering* (pulverização catódica), eletrodeposição e o uso de estruturas biológicas [34, 35, 36]. Podemos considerar ainda uma terceira abordagem [24], a fabricação virtual. Esse é o caminho seguido pelos teóricos computacionais, que vem sendo considerada a terceira área, ao lado de teóricos e experimentais [24, 37]. Novos materiais e propriedades específicas são criadas na simulação computacional ou analiticamente. Uma abordagem virtual oferece um melhor controle na definição de características. Mas a principal vantagem é a obtenção de uma compreensão dos fundamentos, o que pode guiar teóricos e experimentais.

As nanopartículas magnéticas podem ser encontradas também naturalmente em rochas, sendo que o alinhamento dos seus momentos magnéticos, por estarem sob a influência do campo magnético da Terra, permite estudar elementos da evolução geológica, como a datação dessas rochas. Esse comportamento também fornece dados sobre atividades antrópicas de tempos remotos [29]. Um dos trabalhos fundamentais sobre o magnetismo de partículas granulares de monodomínio, foi publicado por Néel em 1949 [38], e tinha como motor os estudos geológicos, bem como vários outros trabalhos deste mesmo autor [39].

1.4.1 Partículas de monodomínio

A formação de domínios, descrita na seção anterior, tem um custo energético, relacionado à energia de troca entre os átomos vizinhos e a anisotropia magnetocristalina. A largura das paredes de domínio varia com esses parâmetros energéticos, de modo que uma forte interação de troca levará a uma largura maior, enquanto uma intensa anisotropia magnetocristalina será responsável por paredes mais estreitas. Portanto, o sistema só cria paredes de domínio enquanto isso for energeticamente favorável. Podemos ver na figura (5), como varia o campo coercivo à medida que o tamanho da partícula de-

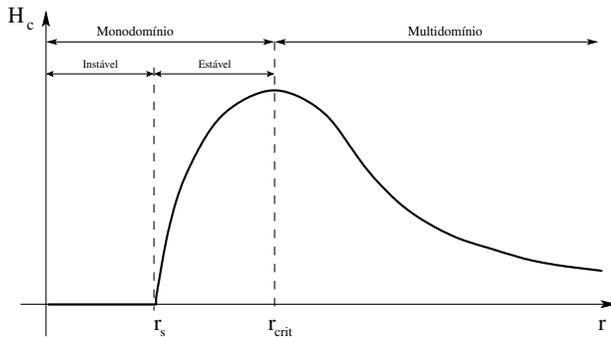


Figura 5: Variação do campo coercivo H_c com o raio de uma partícula. A formação de vários domínios deixa de ser favorável abaixo de um raio crítico r_{crit} . O raio r_s marca a transição para o comportamento superparamagnético. O campo coercivo é o campo necessário para reduzir a zero a magnetização líquida de uma amostra saturada.

crece. Campo coercivo é o valor do campo magnético necessário para levar a

zero a magnetização da partícula. Observe que o tamanho da partícula atinge o raio crítico, onde a formação de paredes de domínio não é mais favorável. No raio crítico, o campo coercivo atinge o seu valor máximo.

1.5 Sistemas de partículas interagentes

Estudar sistemas de partículas é muito mais complexo que estudar uma partícula isolada. Ao abordar um sistema é necessário levar em conta vários elementos novos, como a distribuição espacial das partículas, interações presentes no sistema e distância de separação entre as partículas. A distribuição espacial, pode ser bidimensional ou tridimensional, em redes aleatórias ou ordenadas. Diferentes tipos de interações têm sido utilizadas para descrever o comportamento magnético de um sistema de nanopartículas magnéticas. As mais importantes são a interação dipolar, a interação de Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) e mesmo a interação de troca [40, 41]. Estas interações, que estão presentes também nos materiais extensos, mantém suas características e origem física nos sistemas de nanopartículas. É importante observar que a interação de troca entre momentos magnéticos, separados por algumas poucas unidades da constante de rede atômica, pode acoplar ferro- ou antiferromagneticamente, duas nanopartículas através dos átomos de suas respectivas superfícies. A interação RKKY existe apenas em partículas alojadas em matrizes metálicas, que fornecem os elétrons livres necessários para intermediar a interação entre os momentos atômicos das partículas. Por último, a interação magnetostática, que tem uma importância reduzida em amostras macroscópicas, devido à sua fraca intensidade, torna-se a interação dominante em estruturas formadas por nanopartículas bem separadas. Isso ocorre, basicamente, porque as interações de troca têm um alcance limitado, como algo em torno de 5 \AA , e as interações RKKY apresentam um caracter ferro/antiferromagnético oscilante, com um período de alguns poucos \AA , de modo que em média o seu efeito tende a zero no volume total do sistema. Assim, ambas têm um efeito fraco ou nulo no acoplamento entre partículas. Por outro lado, interações magnetostáticas, tomadas em conjunto com a contribuição dipolar, têm uma magnitude proporcional aos momentos magnéticos acoplados. Para partículas de domínio único, esse efeito tem um valor muito grande quando comparado aos momentos magnéticos atômicos [42, 43].

1.6 Estrutura da Tese

Nesta seção vamos apresentar os problemas considerados nesta Tese.

Primeiramente podemos classificar os modelos estudados em duas categorias: partículas de multidomínio e partículas do tipo monodomínio. No Capítulo 2 abordamos a categoria de multidomínio, utilizando partículas bidimensionais e tridimensionais. Dentro da categoria de partículas bidimensionais do segundo capítulo apresentamos um estudo das propriedades magnéticas de um par de partículas, cujos spins estão distribuídos num retículo semelhante a uma rede quadrada. As interações magnéticas dentro de cada partícula são descritas pela hamiltoniana de Ising e usamos a aproximação de campo médio e simulações de Monte Carlo nessa investigação. Também consideramos o caso em que as interações dentro de cada partícula são representadas pela hamiltoniana de Heisenberg com spins clássicos. Nesse caso apenas simulações de Monte Carlo foram consideradas. Também investigamos algumas situações onde a distribuição interna dos spins ocorre em três dimensões.

No Capítulo 3 abordamos o problema da distribuição de nanopartículas magnéticas do tipo monodomínio nas redes cúbica de face centrada, rede cúbica simples, e numa estrutura do tipo de um líquido.

Em cada um dos modelos estudados introduzimos o acoplamento dipolar entre as partículas, e determinamos o efeito dessas interações nas propriedades magnéticas, em função da temperatura, do tamanho das partículas e da magnitude da anisotropia de campo cristalino no caso das nanopartículas magnéticas.

No Capítulo 4 apresentamos as principais conclusões deste trabalho e, em seguida, no Capítulo 5, propomos algumas abordagens para futuros estudos nessa área do magnetismo onde o papel das interações dipolares torna-se relevante.

2 Interação dipolar em sistemas de tamanho finito

Uma partícula com medidas na escala nanométrica, mesmo acima do tamanho crítico de monodomínio, apresenta características diferenciadas que estão ligadas diretamente às dimensões reduzidas, que implicam em uma grande fração de spins na superfície e fortes efeitos de borda. A formação do monodomínio persiste apenas enquanto este for energeticamente favorável. Partículas com raio maior que o raio crítico passam a ter um comportamento interno mais complexo, com formação de domínios e paredes de domínio. Esta maior complexidade é de grande interesse, tanto teórico quanto experimental. Do ponto de vista experimental, o campo coercivo pode ser controlado variando-se o raio da partícula e do ponto de vista teórico pode-se estudar o movimento das paredes de domínio em função de um campo magnético externo. Os grandes avanços que vêm ocorrendo no estudo de pequenas estruturas devem-se muito ao desenvolvimento de equipamentos que permitem realizar medidas bastante precisas do relativamente pequeno momento magnético total dessas partículas multidomínios. Essas estruturas têm grande importância científica e tecnológica pois, além de possuírem propriedades físicas interessantes, também envolvem efeitos na escala nanométrica úteis na explicação das propriedades de materiais magnéticos avançados e, além disso, mantém abertas as portas para tecnologias ainda desconhecidas. Existe uma grande diversidade de materiais desse tipo, desde nanomagnetos que ocorrem naturalmente [44], nanocompostos relativamente fáceis de se produzir e nanoestruturas completamente artificiais [41, 45].

Resultados experimentais e teóricos têm mostrado que vários fatores, como geometria, anisotropia, existência ou não de interação entre as partículas, e a formação de domínios únicos ou múltiplos, influenciam no comportamento magnético desses sistemas. Os processos de magnetização, mesmo em uma partícula de domínio único, podem ocorrer através de diferentes modos de reversão, dependendo da magnitude e direção do campo magnético, da forma, e de outros parâmetros geométricos da partícula [1, 46, 47].

Não obstante o interesse em partículas isoladas, o estudo de redes regulares compostas por estas estruturas, também tem recebido cada vez mais atenção nos últimos anos. Entender como o espaçamento e a interação dipolar de longo alcance entre as partículas afeta as propriedades magnéticas do sistema é relevante no entendimento e interpretação dos resultados experimen-

tais, já que o espaçamento entre partículas interagentes pode ter influência no mecanismo de reversão da magnetização e na estrutura interna de domínios magnéticos [48].

O acoplamento dipolar entre partículas também tem sido usado para descrever a transição de fase no equilíbrio em vidros de spins. Isso ocorre quando a interação dipolar é a única levada em conta no sistema. Enquanto sistemas dipolares diluídos, em três dimensões, não suportam uma fase do tipo vidro de spins a baixas temperaturas [49], uma rede completamente ocupada por dipolos magnéticos clássicos exibe uma fase vidro de spins de equilíbrio abaixo de uma temperatura crítica, que depende da energia dipolar dos vizinhos mais próximos [50]. A geometria da rede de Bravais sobre a qual estão dispostos os dipolos magnéticos individuais é de fundamental importância quando estamos interessados nas propriedades do estado fundamental de um sistema de dipolos interagentes [51, 52, 53, 54, 55]. Em três dimensões, por exemplo, o estado de mais baixa energia de um conjunto de dipolos clássicos é ferromagnético em uma rede cúbica de face centrada, enquanto que ele é antiferromagnético em uma rede cúbica simples. Em duas dimensões, uma rede quadrada de dipolos pontuais clássicos exibe um arranjo antiferromagnético de seus momentos, enquanto que no caso de uma rede triangular o arranjo é ferromagnético.

A energia de interação entre dois dipolos magnéticos, embora de intensidade da ordem de até 10^3 vezes menor que a interação de troca, é responsável por muitas propriedades magnéticas interessantes. Essas interações são particularmente importantes quando se consideram conjuntos de nanopartículas magnéticas que são formadas por centenas ou milhares de momentos magnéticos atômicos fortemente acoplados pelas interações de troca. Para uma concentração bastante elevada de nanopartículas magnéticas a barreira de energia sentida por cada nanopartícula individual, cuja origem é puramente devida a contribuição da anisotropia uniaxial, é modificada devido à presença do acoplamento dipolar de longo alcance. Com isso, as propriedades magnéticas do sistema, como campo coercivo, remanência e temperatura de bloqueio, também se modificam [56, 57, 58, 59, 60].

Um comportamento complexo surge em sistemas bidimensionais de spins de Ising quando o acoplamento de troca ferromagnético compete com a parte antiferromagnética da interação dipolar de longo alcance [61, 62, 63, 64]. Na medida em que a razão entre a interação de troca e a interação dipolar aumenta, o estado fundamental do modelo muda de antiferromagnético para um arranjo do tipo de faixas. Nessa situação, o sistema divide-se em domínios

de spins para cima e para baixo, apontando perpendicularmente ao plano da rede, com a largura da faixa aumentando com a razão entre a interação de troca e a interação dipolar.

Neste capítulo consideramos um sistema bastante simplificado formado por duas partículas ferromagnéticas interagindo através de uma interação dipolar de longo alcance. Localmente, os momentos atômicos interagem apenas com seus primeiros vizinhos, porém sofrem a influência de um campo diretamente relacionado com a magnetização da outra partícula. Cada uma das partículas é formada por uma rede quadrada ou cúbica cujos sítios são ocupados por spins de Ising ou Heisenberg. Tratamos, portanto, de sistemas de duas e três dimensões, com partículas distribuídas em estruturas do tipo rede quadrada e octaédricas, respectivamente. O sistema bidimensional é semelhante ao considerado por Politi e Pini [54], porém nossas partículas são mais complexas, pois não estão em um estado de domínio único, e o momento magnético total de cada partícula pode mudar com a temperatura. Nos últimos anos vários trabalhos foram realizados considerando as propriedades magnéticas e o diagrama de fases de nanopartículas isoladas e com um número variável de camadas, analisadas em função da temperatura e do campo magnético externo [65, 66, 67, 68]. Nesses trabalhos foram empregadas aproximações de campo médio e simulações de Monte Carlo para os casos em que os spins internos estão acoplados ferro ou antiferromagneticamente, bem como, para os modelos empregando as hamiltonianas de Ising e de Heisenberg com spins clássicos. No presente estudo, as partículas individuais com um número variável de camadas, estão acopladas através da interação dipolar. Mostramos que a temperatura crítica aumenta com o número de camadas e diminui com a distância entre as partículas. Mostramos também que o aumento da temperatura crítica para partículas próximas, relativamente àquelas não interagentes, é mais significativa nos cálculos de campo médio do que nas simulações de Monte Carlo. A diferença nos valores da energia dipolar, calculados assumindo spins efetivos no centro das partículas e, em um segundo caso, computando diretamente as interações dipolares entre todos os pares de spins, um em cada partícula, apresenta a mesma dependência na distância, como observado no caso de partículas interagentes de domínio único. Entretanto, observa-se uma ligeira diferença no comportamento quando a distância entre as nanopartículas é muito pequena. Em geral, os resultados apresentados aqui, cálculos de campo médio e simulações, foram obtidos somente para os spins de Ising. Entretanto, também foram realizadas simulações para modelos empregando uma hamiltoniana de Heisenberg com spins clássicos.

No restante deste capítulo, apresentamos os modelos utilizados, descrevemos a obtenção das equações para a magnetização das partículas na aproximação de campo médio, e os detalhes das simulações de Monte Carlo. Finalmente, apresentamos os resultados obtidos e as principais conclusões deste capítulo.

2.1 O Modelo

Inicialmente, vamos considerar duas partículas ferromagnéticas bidimensionais colocadas no plano xy , como as mostradas nas figuras 6 e 7, com N sítios na primeira e N' sítios na segunda partícula, contendo spins de Ising σ e ξ , respectivamente. Os spins das partículas estão distribuídos em uma rede quadrada de parâmetro de rede a . Para uma melhor visualização de cada partícula, dispomos os spins em camadas, que são giradas de 45° em relação aos eixos x e y , com um spin no centro de cada partícula.

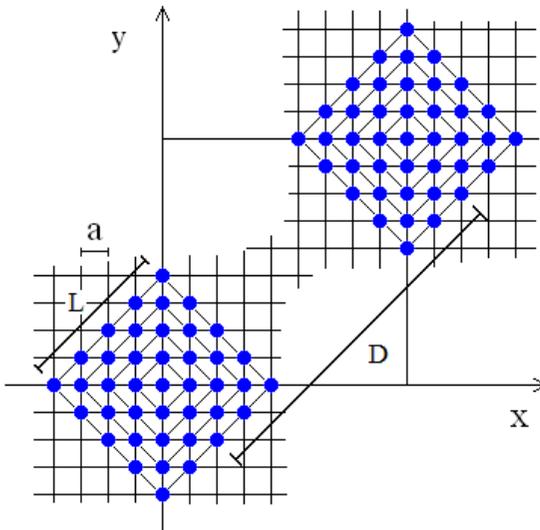


Figura 6: Duas partículas ferromagnéticas com interação de troca entre spins primeiros vizinhos. D é a distância entre os centros das partículas. Cada spin σ_i interage com todos os spins ξ_k da outra partícula.

Internamente, os spins interagem apenas com seus z e z' primeiros vizinhos, isto é, aqueles localizados a uma distância a , com energias de interação J e J' , respectivamente para cada partícula. Denominamos D a distância do centro da partícula A até o centro da partícula B (figura 6). Cada spin σ_i interage, através da interação dipolar, com todos os spins ξ_k da outra partícula, o que equivale à interação da magnetização de uma partícula com a magnetização da outra. Os spins estão distribuídos em camadas de tal maneira que um dado spin nunca interage com outros que estejam situados na mesma camada, cuja distância de separação é $a\sqrt{2}$. Isso ocorre devido à escolha da rede quadrada na construção das partículas. Os spins localizados na superfície interagem localmente apenas com os spins da penúltima camada, tendo assim um número de coordenação reduzido, como vemos na figura 7. Nos vértices o número de coordenação é 1, nas bordas é 2 e, mais internamente, ele sempre é 4.

O tamanho das partículas está relacionado ao seu número n de camadas por $L = an\sqrt{2}$. Para uma distância fixa D entre os centros das partículas, o número máximo de camadas é limitada a $n < \frac{D}{a\sqrt{2}}$, de modo que elas nunca se interpenetrem. Os tamanhos das partículas, com o número de camadas e sítios, estão especificados na tabela (1).

Camadas	Sítios na última camada	N° total de sítios
1	4	5
2	8	13
3	12	25
4	16	41
5	20	61
6	24	85
7	28	113
8	32	145
9	36	181
10	40	221
11	44	265
12	48	313

Tabela 1: Tamanho das partículas bidimensionais em função do número de camadas.

Em nossos cálculos consideramos partículas interagentes com até doze camadas e partículas não interagentes com até 20 camadas. Por exemplo, para

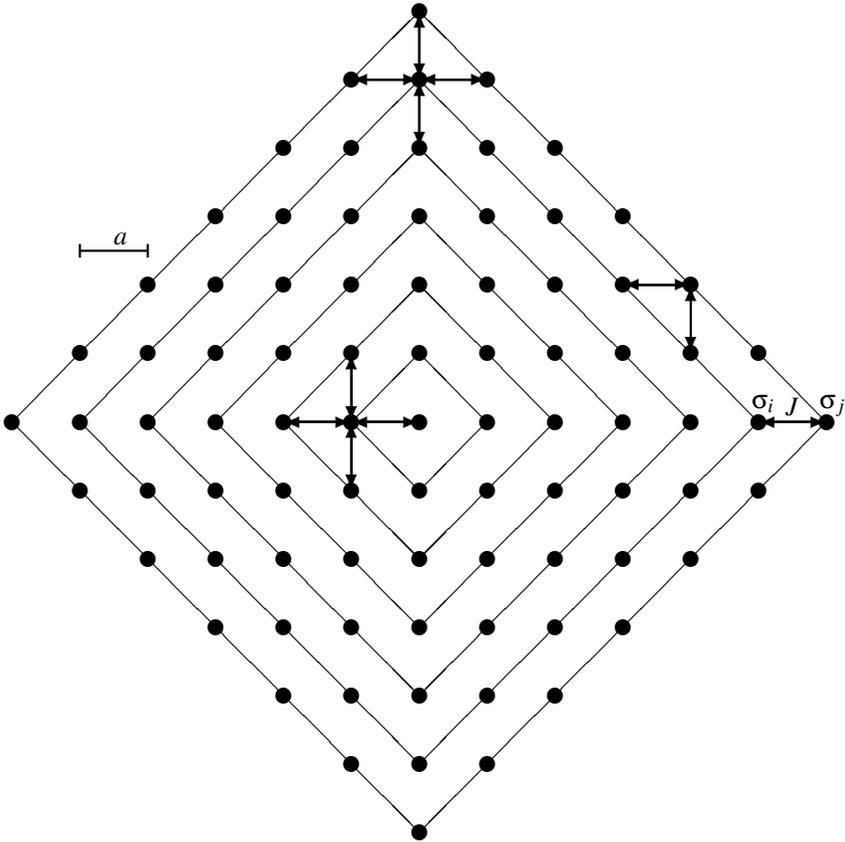


Figura 7: Partícula ferromagnética com interação entre primeiros vizinhos. Os sítios estão dispostos em 6 camadas, além de um sítio central. Cada spin interage somente com spins das camadas vizinhas. Os spins da camada externa interagem apenas com os spins da penúltima camada.

uma partícula de $n = 6$ camadas, o número total de spins é 85, e a porcentagem de spins na superfície em relação ao total de spins da partícula é 28%. Por outro lado, para partículas de 12 camadas, temos 313 spins ao todo e a porcentagem correspondente é reduzida a 15%. Assumimos em nossos cálculos

los que os eixos de orientação dos spins de Ising são paralelos à linha que une os centros das duas partículas.

A hamiltoniana do sistema com spins de Ising é dada por:

$$\mathcal{H} = -J \sum_{\langle i,j \rangle} \sigma_i \sigma_j - J' \sum_{\langle k,l \rangle} \xi_k \xi_l - \Omega \sum_{(i,k)} \left[\frac{\sigma_i \xi_k}{r_{ik}^3} \right], \quad (3)$$

onde σ_i e ξ_k são variáveis de spins de Ising com valores ± 1 em cada uma das partículas. Os dois primeiros somatórios representam as contribuições de troca calculadas sobre todos os pares distintos de spins vizinhos mais próximos de cada partícula. Ω é a magnitude da interação dipolar entre todos os pares de spins σ_i e ξ_k , um em cada partícula, e r_{ik} é a distância entre eles, medida em unidades do parâmetro de rede a . O parâmetro dipolar é $\Omega = (g\mu_B)^2/a^3$, onde g é o fator giromagnético e μ_B é o magneton Bohr. No estado fundamental do sistema, cada partícula se comporta como uma partícula de domínio único, com N e N' spins apontando na mesma direção. A interação dipolar minimiza a energia do sistema de duas partículas e o estado fundamental é ferromagnético, com o momento magnético total de cada partícula orientado ao longo da linha que une os centros das partículas. Portanto, como resultado da interação dipolar, cada partícula sente um campo magnético efetivo devido à presença da outra.

Para o sistema com spins de Heisenberg clássicos, a hamiltoniana é:

$$\mathcal{H} = -J \sum_{\langle i,j \rangle} \vec{S}_i \vec{S}_j - J' \sum_{\langle k,l \rangle} \vec{Z}_k \vec{Z}_l + \frac{\Omega}{2} \sum_{(i,k)} \left[\frac{\vec{S}_i \vec{Z}_k}{r_{ik}^3} - 3 \frac{(\vec{S}_i \cdot \vec{r}_{ik})(\vec{Z}_k \cdot \vec{r}_{ik})}{r_{ik}^5} \right], \quad (4)$$

onde os vetores \vec{S}_i e \vec{Z}_k são variáveis de spin, e dentro de cada partícula temos o acoplamento de troca entre spins primeiros vizinhos, representado pela hamiltoniana de Heisenberg para spins clássicos. A notação utilizada indica que \vec{S}_i está em uma das partículas enquanto \vec{Z}_k está na outra. \vec{r}_{ik} é o vetor determinado pela distância entre os referidos spins, sendo r_{ik} o seu módulo. Os outros símbolos usados têm o mesmo significado do caso anterior. As características geométricas das partículas deste modelo também são idênticas àquelas do sistema de spins de Ising, porém aqui estamos considerando ambas as partes, ferro- e antiferromagnética, da interação dipolar entre spins localizados em diferentes partículas.

Camadas	Sítios na última camada	N^o total de sítios
1	6	7
2	18	25
3	38	63
4	66	129
5	102	231
6	146	377
7	198	575
8	258	833
9	326	1159
10	402	1561

Tabela 2: Tamanho das partículas tridimensionais em função do número de camadas.

2.2 Equações de Campo Médio

As propriedades magnéticas de equilíbrio do sistema de duas partículas formadas por spins de Ising foram derivadas usando uma aproximação de campo médio, através da desigualdade de Bogoliubov, que dá o limite superior para a energia livre do sistema.

As magnetizações médias por spin $\langle \sigma_i \rangle = m_{\sigma_i}$ e $\langle \xi_k \rangle = m_{\xi_k}$, da primeira e segunda partículas, são, respectivamente:

$$m_{\sigma_i} = \frac{1}{Z} \sum_{\{\sigma_i, \xi_k\}} \sigma_i e^{-\beta \mathcal{H}}, \quad (5)$$

$$m_{\xi_k} = \frac{1}{Z} \sum_{\{\sigma_i, \xi_k\}} \xi_k e^{-\beta \mathcal{H}}. \quad (6)$$

Os somatórios $\sum_{\{\sigma_i, \xi_k\}}$ são realizados sobre todas as configurações dos spins σ_i e ξ_k . Z é a função de partição (soma sobre todos os estados das duas partículas). Observe que as equações 5 e 6 formam um conjunto de $N + N'$ equações, sendo N e N' os números de spins nas partículas A e B , respectivamente.

Como foi dito, a aproximação de campo médio será desenvolvida a partir da desigualdade de Bogoliubov, que afirma que a energia livre exata (G) de um sistema descrito por uma hamiltoniana (\mathcal{H}) satisfaz a relação

$$G \leq G_0 + \langle \mathcal{H} - \mathcal{H}_0 \rangle_0, \quad (7)$$

onde G_0 é a energia livre tentativa, calculada através de uma hamiltoniana tentativa, \mathcal{H}_0 , de modo que

$$\Phi = G_0 + \langle \mathcal{H} - \mathcal{H}_0 \rangle_0, \quad (8)$$

deve ter o menor valor possível.

Para determinar Φ e, portanto, a energia livre na aproximação de campo médio, nós utilizamos uma hamiltoniana tentativa bastante simples, correspondente a spins não interagentes:

$$\mathcal{H}_0 = - \sum_i^N \eta_i \sigma_i - \sum_k^{N'} \lambda_k \xi_k, \quad (9)$$

onde η_i e λ_k são parâmetros variacionais que utilizaremos para minimizar Φ .

Nosso objetivo agora é calcular Φ , porém, vamos escrever a equação (8) como:

$$\Phi = G_0 + \langle \mathcal{H} \rangle_0 - \langle \mathcal{H}_0 \rangle_0, \quad (10)$$

e então encontrar as médias $\langle \mathcal{H} \rangle_0$ e $\langle \mathcal{H}_0 \rangle_0$. Para médias do tipo $\langle \dots \rangle_0$, precisamos antes determinar a função de partição tentativa:

$$Z_0 = \sum_{\{\sigma_i, \xi_k\}} e^{-\beta \mathcal{H}_0}, \quad (11)$$

em que \mathcal{H}_0 é dada pela equação (9) e a soma $\sum_{\{\sigma_i, \xi_k\}}$ é feita sobre todos os estados possíveis para as duas partículas. Assim,

$$Z_0 = \sum_{\{\sigma_i\}} \prod_i^N e^{\beta \eta_i \sigma_i} \sum_{\{\xi_k\}} \prod_k^{N'} e^{\beta \lambda_k \xi_k}, \quad (12)$$

$$Z_0 = \prod_i^N [2 \cosh(\beta \eta_i)] \prod_k^{N'} [2 \cosh(\beta \lambda_k)]. \quad (13)$$

Agora podemos calcular a média da hamiltoniana tentativa,

$$\langle \mathcal{H}_0 \rangle_0 = \frac{1}{Z_0} \sum_{\{\sigma_i, \xi_k\}} \mathcal{H}_0 e^{-\beta \mathcal{H}_0}, \quad (14)$$

substituindo \mathcal{H}_0 , da equação 9,

$$\langle \mathcal{H}_0 \rangle_0 = -\frac{1}{Z_0} \sum_{\{\sigma_i, \xi_k\}} \left(\sum_i^N \eta_i \sigma_i + \sum_k^{N'} \lambda_k \xi_k \right) e^{\beta \sum_i^N \eta_i \sigma_i + \beta \sum_k^{N'} \lambda_k \xi_k}, \quad (15)$$

$$\begin{aligned} \langle \mathcal{H}_0 \rangle_0 &= -\frac{1}{Z_0} \sum_i^N \eta_i \sum_{\{\sigma_i\}} \sigma_i e^{\beta \sum_i^N \eta_i \sigma_i} \sum_{\{\xi_k\}} e^{\beta \sum_k^{N'} \lambda_k \xi_k} \\ &\quad - \frac{1}{Z_0} \sum_k^{N'} \lambda_k \sum_{\xi_k} \xi_k e^{\beta \sum_k^{N'} \lambda_k \xi_k} \sum_{\{\eta_i\}} e^{\beta \sum_i^N \eta_i \sigma_i} \end{aligned} \quad (16)$$

o que nos leva a

$$\langle \mathcal{H}_0 \rangle_0 = -\sum_i^N \eta_i \tanh(\beta \eta_i) - \sum_k^{N'} \lambda_k \tanh(\beta \lambda_k). \quad (17)$$

Podemos simplificar a expressão acima calculando a magnetização das duas partículas, sendo $m_{\sigma_i} = \langle \sigma_i \rangle$ a magnetização da primeira e $m_{\xi_k} = \langle \xi_k \rangle$ a magnetização da segunda partícula, de modo que a magnetização do sistema é

$$m_{\sigma_i, \xi_k} = \frac{m_{\sigma_i} + m_{\xi_k}}{2}, \quad (18)$$

e, pelas equações (5) e (6),

$$m_{\sigma_i, \xi_k} = \frac{1}{2Z_0} \sum_{\{\sigma_i, \xi_k\}} (\sigma_i + \xi_k) e^{-\beta \mathcal{H}_0}, \quad (19)$$

$$m_{\sigma_i, \xi_k} = \frac{1}{2Z_0} \sum_{\{\sigma_i, \xi_k\}} (\sigma_i + \xi_k) e^{\beta (\sum_i^N \eta_i \sigma_i + \sum_k^{N'} \lambda_k \xi_k)}, \quad (20)$$

$$\begin{aligned} m_{\sigma_i, \xi_k} &= \frac{1}{2Z_0} \sum_{\{\sigma_i\}} \sigma_i e^{\beta (\sum_i^N \eta_i \sigma_i)} \sum_{\{\xi_k\}} e^{\beta (\sum_k^{N'} \lambda_k \xi_k)} \\ &\quad + \frac{1}{2Z_0} \sum_{\{\sigma_i\}} e^{\beta (\sum_i^N \eta_i \sigma_i)} \sum_{\{\xi_k\}} \xi_k e^{\beta (\sum_k^{N'} \lambda_k \xi_k)}, \end{aligned} \quad (21)$$

$$\begin{aligned}
m_{\sigma_i, \xi_k} &= \frac{1}{2Z_0} \sum_{\{\sigma_i\}} \sigma_i e^{\beta(\eta_i \sigma_i)} \prod_{l \neq i}^N \sum_{\{\sigma_l\}} e^{\beta(\eta_l \sigma_l)} \prod_k^{N'} \sum_{\{\xi_k\}} e^{\beta(\lambda_k \xi_k)} \\
&+ \frac{1}{2Z_0} \sum_{\{\xi_k\}} \xi_k e^{\beta(\lambda_k \xi_k)} \prod_{l \neq k}^{N'} \sum_{\{\xi_l\}} e^{\beta(\lambda_l \xi_l)} \prod_i^N \sum_{\{\sigma_i\}} e^{\beta(\eta_i \sigma_i)}, \quad (22)
\end{aligned}$$

resultando em

$$m_{\sigma_i, \xi_k} = \frac{\tanh(\beta\eta_i)}{2} + \frac{\tanh(\beta\lambda_k)}{2}, \quad (23)$$

de modo que, pela equação (18), temos

$$m_{\sigma_i} = \tanh(\beta\eta_i), \quad (24)$$

e

$$m_{\xi_k} = \tanh(\beta\lambda_k). \quad (25)$$

Agora podemos escrever a equação (17) da seguinte forma:

$$\langle \mathcal{H}_0 \rangle_0 = - \sum_i^N \eta_i m_{\sigma_i} - \sum_k^{N'} \lambda_k m_{\xi_k}. \quad (26)$$

Passamos a calcular a média da hamiltoniana:

$$\langle \mathcal{H} \rangle_0 = \frac{1}{Z_0} \sum_{\{\sigma_i, \xi_k\}} \mathcal{H} e^{-\beta \mathcal{H}_0} \quad (27)$$

com \mathcal{H} dado pela equação (3), \mathcal{H}_0 pela equação (9) e Z_0 pela equação (13).

Substituindo \mathcal{H} e \mathcal{H}_0 , como nas equações (3) e (9) respectivamente, temos

$$\langle \mathcal{H} \rangle_0 = \frac{1}{Z_0} \sum_{\{\sigma_i, \xi_k\}} \left(-J \sum_{\langle i,j \rangle} \sigma_i \sigma_j - J' \sum_{\langle k,l \rangle} \xi_k \xi_l - \Omega \sum_{(i,k)} \frac{\sigma_i \xi_k}{r_{ik}^3} \right) e^{\beta(\sum_i^N \eta_i \sigma_i + \sum_k^{N'} \lambda_k \xi_k)}, \quad (28)$$

que pode ser separada em três termos: $\langle \mathcal{H} \rangle_0 = A + B + C$, com

$$A = - \frac{1}{Z_0} \sum_{\{\sigma_i, \xi_k\}} J \sum_{\langle i,j \rangle} \sigma_i \sigma_j e^{\beta(\sum_i^N \eta_i \sigma_i + \sum_k^{N'} \lambda_k \xi_k)}, \quad (29)$$

$$B = -\frac{1}{Z_0} \sum_{\{\sigma_i, \xi_k\}} J' \sum_{\langle k, l \rangle} \xi_k \xi_l e^{\beta(\sum_i^N \eta_i \sigma_i + \sum_k^{N'} \lambda_k \xi_k)} \quad (30)$$

e

$$C = -\frac{1}{Z_0} \sum_{\{\sigma_i, \xi_k\}} \Omega \sum_{(i, k)} \frac{\sigma_i \xi_k}{r_{ik}^3} e^{\beta(\sum_i^N \eta_i \sigma_i + \sum_k^{N'} \lambda_k \xi_k)}. \quad (31)$$

Desenvolvendo A , substituindo a função de partição, equação (13), obtemos

$$A = -J \sum_{\langle i, j \rangle} \tanh(\beta \eta_i) \tanh(\beta \eta_j). \quad (32)$$

Da mesma forma podemos obter B e C :

$$B = -J' \sum_{\langle k, l \rangle} \tanh(\beta \lambda_k) \tanh(\beta \lambda_l) \quad (33)$$

e

$$C = -\Omega \sum_{(i, k)} \frac{1}{r_{ik}^3} \tanh(\beta \eta_i) \tanh(\beta \lambda_k). \quad (34)$$

Agora podemos substituir os termos em $\langle \mathcal{H} \rangle_0 = A + B + C$ e escrevê-los de forma mais sucinta substituindo o valor da magnetização:

$$\langle \mathcal{H} \rangle_0 = -J \sum_{\langle i, j \rangle} m_{\sigma_i} m_{\sigma_j} - J' \sum_{\langle k, l \rangle} m_{\xi_k} m_{\xi_l} - \Omega \sum_{(i, k)} \frac{1}{r_{ik}^3} m_{\sigma_i} m_{\xi_k}. \quad (35)$$

A energia livre tentativa (G_0) é dada por

$$G_0 = -k_B T \ln(Z_0), \quad (36)$$

$$G_0 = -k_B T \sum_i^N \ln[2 \cosh(\beta \eta_i)] - k_B T \sum_k^{N'} \ln[2 \cosh(\beta \lambda_k)]. \quad (37)$$

A expressão final para Φ , equação (10), usando as equações (26), (35) e (37), é

$$\begin{aligned} \Phi &= -k_B T \sum_i^N \ln[2 \cosh(\beta \eta_i)] - k_B T \sum_k^{N'} \ln[2 \cosh(\beta \lambda_k)] \\ &\quad - J \sum_{\langle i, j \rangle} m_{\sigma_i} m_{\sigma_j} - J' \sum_{\langle k, l \rangle} m_{\xi_k} m_{\xi_l} - \Omega \sum_{(i, k)} \frac{1}{r_{ik}^3} m_{\sigma_i} m_{\xi_k} \\ &\quad + \sum_i^N \eta_i m_{\sigma_i} + \sum_k^{N'} \lambda_k m_{\xi_k}. \end{aligned} \quad (38)$$

O valor de Φ deve ser o menor possível para que se tenha uma boa aproximação para a energia livre G . Para isso, devemos fazer

$$\frac{\partial \Phi}{\partial \{\eta, \lambda\}} = 0. \quad (39)$$

Começando por η_i :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \Phi}{\partial \eta_i} &= -\frac{\partial}{\partial \eta_i} \left(k_B T \sum_i^N \ln [2 \cosh (\beta \eta_i)] \right) - \frac{\partial}{\partial \eta_i} \left(k_B T \sum_k^{N'} \ln [2 \cosh (\beta \lambda_k)] \right) \\ &\quad - \frac{\partial}{\partial \eta_i} \left(J \sum_{\langle i, j \rangle} m_{\sigma_i} m_{\sigma_j} \right) - \frac{\partial}{\partial \eta_i} \left(J' \sum_{\langle k, l \rangle} m_{\xi_k} m_{\xi_l} \right) - \frac{\partial}{\partial \eta_i} \left(\Omega \sum_{\langle i, k \rangle} \frac{1}{r_{ik}^3} m_{\sigma_i} m_{\xi_k} \right) \\ &\quad + \frac{\partial}{\partial \eta_i} \left(\sum_i^N \eta_i m_{\sigma_i} \right) + \frac{\partial}{\partial \eta_i} \left(\sum_k^{N'} \lambda_k m_{\xi_k} \right), \end{aligned} \quad (40)$$

e excluindo os termos não relacionados a η ,

$$\begin{aligned} \frac{\partial \Phi}{\partial \eta_i} &= -\frac{\partial}{\partial \eta_i} \left(k_B T \sum_i^N \ln [2 \cosh (\beta \eta_i)] \right) - \frac{\partial}{\partial \eta_i} \left(J \sum_{\langle i, j \rangle} m_{\sigma_i} m_{\sigma_j} \right) \\ &\quad - \frac{\partial}{\partial \eta_i} \left(\Omega \sum_{\langle i, k \rangle} \frac{1}{r_{ik}^3} m_{\sigma_i} m_{\xi_k} \right) + \frac{\partial}{\partial \eta_i} \left(\sum_i^N \eta_i m_{\sigma_i} \right) \end{aligned} \quad (41)$$

Aplicando a regra da derivada do produto, chegamos a

$$\frac{\partial \Phi}{\partial \eta_i} = \left(-J \sum_j^z m_{\sigma_j} - \Omega \sum_k^{N'} \frac{1}{r_{ik}^3} m_{\xi_k} + \eta_i \right) \frac{\partial}{\partial \eta_i} m_{\sigma_i}, \quad (42)$$

que dá então

$$\eta_i = J \sum_j^z m_{\sigma_j} - \Omega \sum_k^{N'} \frac{1}{r_{ik}^3} m_{\xi_k}. \quad (43)$$

De forma análoga, obtemos:

$$\lambda_k = J' \sum_l^{z'} m_{\xi_l} - \Omega \sum_i^N \frac{1}{r_{ik}^3} m_{\sigma_i}. \quad (44)$$

Substituindo nas expressões para as magnetizações, equações (24) e (25),

$$m_{\sigma_i} = \tanh \left[\beta \left(J \sum_{j=1}^z m_{\sigma_j} + \Omega \sum_{k=1}^{N'} \frac{m_{\xi_k}}{r_{ik}^3} \right) \right], \quad (45)$$

$$m_{\xi_k} = \tanh \left[\beta \left(J' \sum_{l=1}^{z'} m_{\xi_l} + \Omega \sum_{i=1}^N \frac{m_{\sigma_i}}{r_{ki}^3} \right) \right], \quad (46)$$

obtemos as equações para as magnetizações na aproximação de campo médio para o sistema.

Observe que nesta aproximação a magnetização média de um determinado spin é escrita como uma função da magnetização média dos z primeiros vizinhos, dentro da mesma partícula, e do campo dipolar efetivo criado pela outra partícula. Como a partícula contém um número finito de spins, não é possível utilizar argumentos baseados em simetria translacional e torna-se necessário resolver as equações (45) e (46), que formam um conjunto de $(N + N')$ equações acopladas das magnetizações locais das partículas na aproximação de campo médio. Nesta Tese, na solução do sistema de equações (45) e (46), consideramos apenas os casos em que $N = N'$ e $z = z'$. Além disso, a distância r_{ik} entre os spins σ_i e ξ_k é substituída pela distância D entre os centros das partículas. Para a solução desse sistema de equações utilizamos as subrotinas de convergência global descritas no Capítulo 9 do livro Numerical Recipes [69]. Este método foi escolhido porque converge mais facilmente que o método convencional de Newton-Raphson.

2.3 Simulações de Monte Carlo

As partículas ferromagnéticas com interação dipolar foram simuladas através do método de Monte Carlo usando a técnica de amostragem por importância. Um passo de Monte Carlo (pMC) é definido como sendo $(N + N')$ tentativas aleatórias de se inverter um spin do sistema. Utilizar uma amostragem por importância consiste em gerar configurações de spins escolhendo-se aleatoriamente, em cada unidade de tempo, um spin e tentando modificar o seu estado (invertê-lo no caso de variáveis de Ising) de acordo com o algoritmo de Metropolis [70, 71].

Para cada valor de temperatura utilizamos pelo menos 3.3×10^5 pMC válidos para o cálculo final da magnetização. A quantidade de passos iniciais descartados foi de 3.0×10^4 pMC.

No algoritmo da simulação calcula-se a magnetização média por spin do sistema em função da temperatura. Essa média é realizada primeiramente sobre os spins que compõem as partículas, que no caso das partículas formadas por spins de Ising é:

$$m = \frac{\frac{1}{N} \sum_i \sigma_i + \frac{1}{N'} \sum_j \xi_j}{2}, \quad (47)$$

depois, é feita a média entre os passos de Monte Carlo válidos e, finalmente, pode-se fazer a média sobre um conjunto de amostras independentes.

No caso do modelo de Heisenberg, onde os spins têm componentes em três dimensões, em cada passo de Monte Carlo é necessário determinar a magnetização pelas equações

$$m_x = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N S_{ix}, \quad (48)$$

$$m_y = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N S_{iy}, \quad (49)$$

$$m_z = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N S_{iz}, \quad (50)$$

$$m_{total} = \sqrt{m_x^2 + m_y^2 + m_z^2}. \quad (51)$$

Ao tentar mudar de estado, um vetor (spin) tem que variar a sua direção de pelo menos 2%, a fim de evitar uma evolução muito lenta do sistema.

Os valores da magnetização são utilizados também para calcular a susceptibilidade χ , dada pela equação (52):

$$\chi = \beta N \left[\langle m^2 \rangle - \langle m \rangle^2 \right]. \quad (52)$$

As barras de erro da magnetização e da energia foram calculadas diretamente e as da susceptibilidade foram calculadas utilizando-se o método “Jackknife” [72].

2.4 Resultados e Conclusões

2.4.1 Partículas bidimensionais

Os cálculos de campo médio ou as simulações de Monte Carlo foram realizados para duas partículas interagentes (próximas) e também para partículas

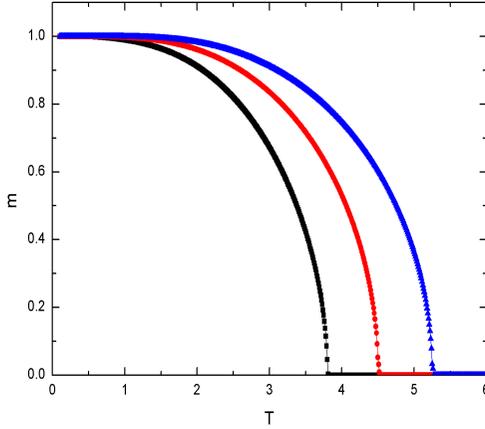


Figura 8: Magnetização por spin em função da temperatura para partículas com $n = 6$ camadas na aproximação de campo médio. Os dados das partículas não interagentes ($D/L \gg 1$) são os \blacksquare . Os \bullet indicam ($D/L = 2.0$) e os \blacktriangle , ($D/L = 1.5$). Magnetização e temperatura estão em unidades arbitrárias.

isoladas (muito afastadas uma da outra), sem campo aplicado, variando-se apenas o tamanho das mesmas. Assim, os resultados podem ser validados por comparações com trabalhos realizados por Leite e Figueiredo [73, 74] em partículas isoladas. Para simplificar, consideramos o mesmo número de spins em ambas as partículas ($N = N'$), e o mesmo valor para o acoplamento de troca entre spins primeiros vizinhos no interior das partículas, $J = J'$. Assumimos também em nossos cálculos unidades arbitrárias, $\Omega = 1$ e $J = 1$ nos resultados apresentados aqui. Entretanto, foram realizadas algumas simulações para $\Omega = 1/100$, que seria uma estimativa mais realista do ponto de vista experimental.

Na figura 8, mostramos a curva da magnetização por spin em função da temperatura, para partículas de $n = 6$ camadas na aproximação de campo médio. Para ($D/L \gg 1$), as partículas não interagem entre si. Notamos um aumento da temperatura crítica à medida que a distância entre elas é reduzida. Como seria de se esperar, o campo dipolar efetivo criado por uma partícula na outra aumenta com a diminuição da distância entre elas. Como dissemos anteriormente, nos cálculos de campo médio, substituímos a distância entre pares de spins, um em cada partícula, pela distância D entre os centros das

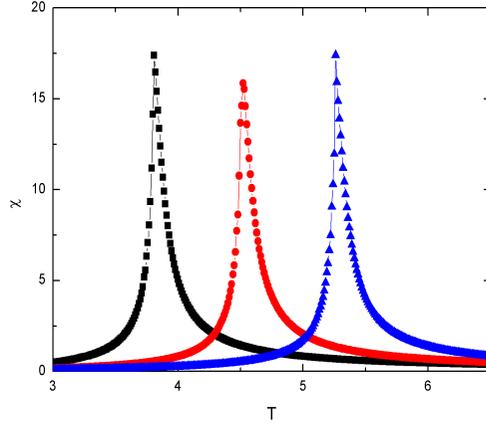


Figura 9: Susceptibilidade em função da temperatura para partículas com $n = 6$ camadas na aproximação de campo médio. Os ■ referem-se a partículas não interagentes ($D/L \gg 1$), os ●, ($D/L = 2.0$) e os ▲, ($D/L = 1.5$).

partículas. Assim, o campo gerado por uma partícula é um campo efetivo e pontual, com origem no centro de cada partícula.

Na figura 9 mostramos os valores correspondentes da susceptibilidade em função da temperatura para a partícula com $n = 6$ camadas, também na aproximação de campo médio. A temperatura na qual a susceptibilidade apresenta um máximo, é a temperatura crítica do sistema de duas partículas. Assim, podemos estimar a temperatura crítica na aproximação de campo médio.

Quando a temperatura é nula, a energia total do sistema de duas partículas é $E = (NJz_{eff}) \frac{\Omega N^2}{D^3}$, onde z_{eff} é o número de coordenação efetivo, que depende do número de camadas. Para valores grandes de n , $z_{eff} \rightarrow 4$. A energia térmica necessária para desordenar o sistema é $k_B T_c \approx E/N$, o que dá $T_c \approx zN/D^3$, onde usamos as unidades arbitrárias $\Omega = 1$, $J = 1$, e $k_B = 1$. Por conseguinte, para uma distância fixa entre as partículas, ocorre um aumento da temperatura crítica com o número N de spins por partícula. A figura 10 mostra a temperatura crítica em função do número (n) de camadas, para os casos de partículas não interagentes e partículas separadas pela distância $D = 15a$.

Na figura 11, mostramos a diferença entre as duas temperaturas críticas, em função do número de camadas na aproximação de campo médio. Como

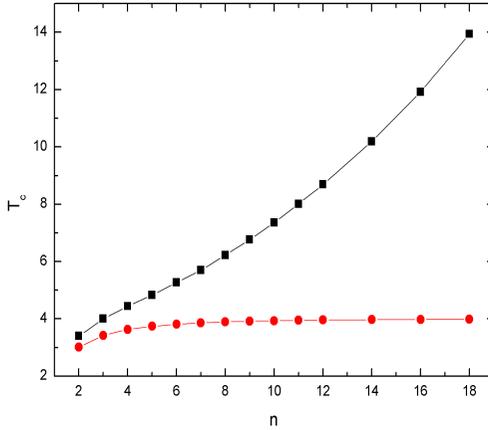


Figura 10: Temperatura crítica em função do número n de camadas para partículas não interagentes (●) e partículas separadas pela distância $D = 15a$ (■) na aproximação de campo médio.

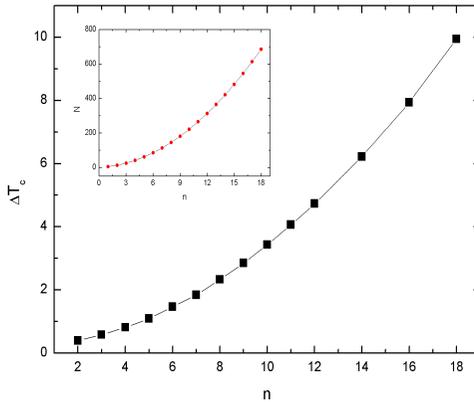


Figura 11: Diferença entre as duas temperaturas críticas da figura 10 em função do número n de camadas na aproximação de campo médio. A inserção mostra o número total de spins de cada partícula (N) como função do número de camadas n .

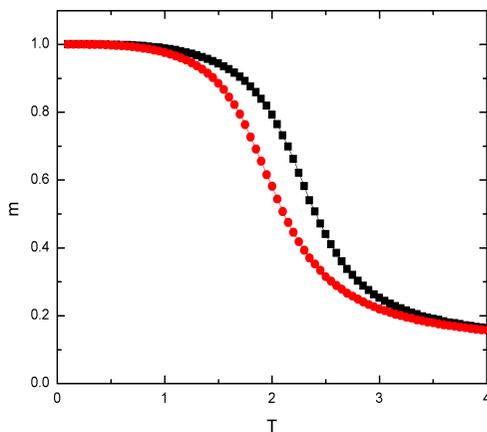


Figura 12: Magnetização de duas partículas formadas por spins de Ising. Os ■ referem-se a partículas próximas ($D = 1.2L$), com interação de longo alcance do tipo spin-spin e os ●, partículas não interagentes, ou seja, muito afastadas entre si. A diferença entre as curvas se deve à interação dipolar.

esperado, esta diferença na temperatura crítica se comporta da mesma forma que o número de spins em cada partícula em função do número de camadas, como pode ser visto no detalhe da figura 11.

Passamos agora aos resultados das simulações de Monte Carlo. Durante a simulação das partículas magnéticas determinamos as curvas de magnetização em função da temperatura para os diferentes casos de partículas de 6 camadas, como podemos ver nas figuras 12, 13, 14 e 15. O gráfico da figura 12 apresenta os resultados para duas partículas formadas por spins de Ising onde a distância entre cada par de spins, no termo dipolar, é tomada exatamente (ao invés de se fazer a aproximação para a distância entre os centros das partículas). Nós estamos chamando esses dois casos de interação spin-spin (distância correta) e interação partícula-partícula (distância D entre os centros das partículas). A figura 13 representa a magnetização de duas partículas com interação dipolar, do tipo spin-spin, para spins clássicos, modelo de Heisenberg, para cada partícula. Neste caso não há nenhum tipo de aproximação, para as interações. Estas duas figuras mostram as diferenças decorrentes da existência ou não da interação dipolar, uma vez que uma das curvas representa o resultado de simulações para partículas não interagentes,

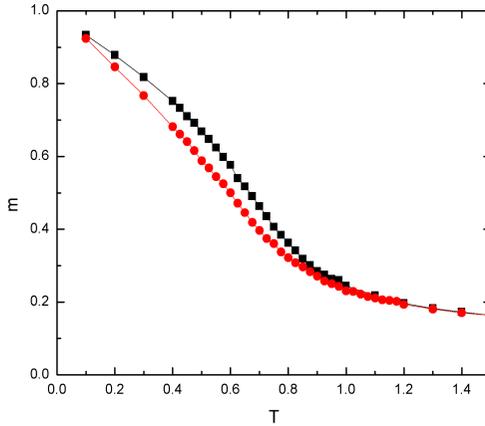


Figura 13: Magnetização de duas partículas formadas por spins clássicos, modelo de Heisenberg. ■ referem-se a partículas próximas ($D = 1.2L$), com interação de longo alcance tipo spin-spin e ●, partículas não interagentes.

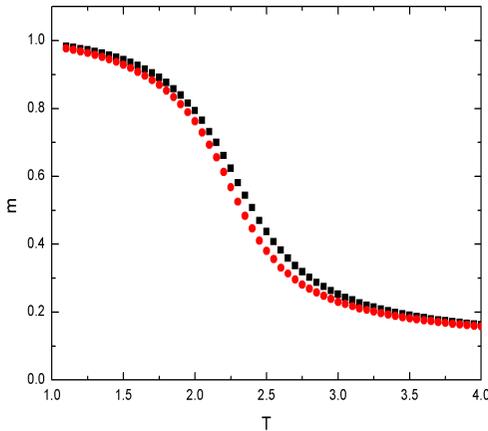


Figura 14: Magnetização de duas partículas formadas por spins de Ising. Os ■ são os resultados para partículas com interação dipolar do tipo spin-spin, e os ●, os resultados na aproximação tipo partícula-partícula. A diferença entre as curvas se deve aos efeitos de forma da partícula. A distância entre os centros dessas duas partículas é ($D = 1.2L$).

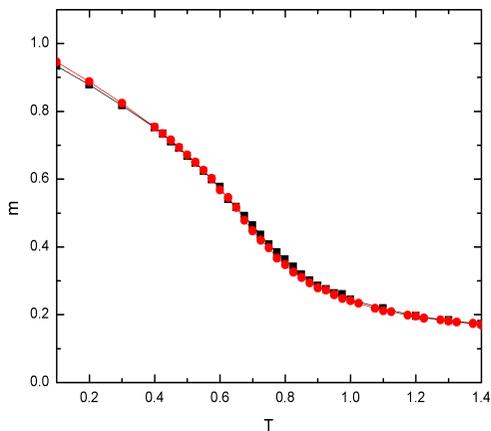


Figura 15: Magnetização de duas partículas formadas por spins clássicos, modelo de Heisenberg. Os ■ representam resultados para a interação dipolar do tipo spin-spin, e os ●, resultados na aproximação do tipo partícula-partícula. A distância entre os centros dessas duas partículas é ($D = 1.2L$).

afastadas pela distância $D = 10^3L$ ($D/L \gg 1$), e a outra curva representa partículas interagentes muito próximas ($D = 1.2L$). Note que os efeitos dipolares são mais intensos quando só consideramos spins de Ising e somente a componente ferromagnética da interação dipolar é levada em consideração. O gráfico da figura 14 mostra os resultados para duas partículas formadas por spins de Ising, onde comparamos as situações de interação dipolar do tipo spin-spin e interação dipolar do tipo partícula-partícula, para partículas cuja distância entre os respectivos centros é ($D = 1.2L$). O efeito desmagnetizante, devido ao tamanho finito dessas partículas, é mais pronunciado quando as distâncias entre pares de spins são levadas em conta corretamente, já que a partícula é bastante pequena. A figura 15 também mostra as diferenças entre o caso exato e a aproximação, porém para partículas formadas por spins de Heisenberg. Neste caso, podemos observar que os efeitos desmagnetizantes, para o mesmo tamanho de partícula da figura anterior, são menos pronunciados. Ou seja, podemos aproximar a distância entre qualquer par de spins pela distância entre os centros das partículas consideradas.

As figuras 16, 17, 18 e 19 mostram a susceptibilidade para partículas com $n = 6$ camadas em função da temperatura. Na figura 16 podemos ver os resul-

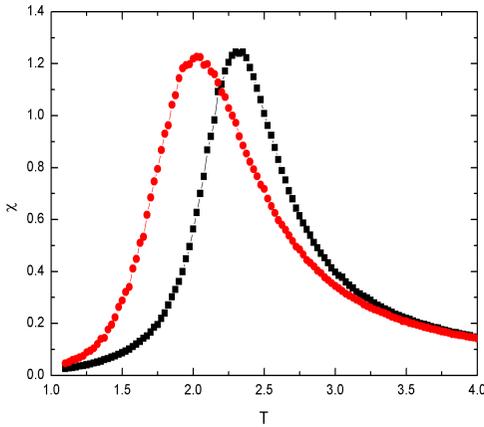


Figura 16: Susceptibilidade em função da temperatura para partículas de $n = 6$ camadas nas simulações de Monte Carlo. Círculos, para partículas não interagentes e quadrados para partículas interagentes separadas pela distância $D = 1.2L$.

tados para partículas com spins de Ising, comparando-se os casos de partículas interagentes e não interagentes. Na figura 17 é feita a mesma comparação para partículas com spins clássicos de Heisenberg. Na figura 18, para partículas com spins de Ising, são comparados os resultados para a interação dipolar do tipo spin-spin e partícula-partícula. O mesmo tipo de gráfico é feito na figura 19, somente que agora os spins são clássicos, interagindo dentro de cada partícula através da hamiltoniana de Heisenberg. Notamos que tanto para os spins de Ising quanto os spins clássicos (modelo de Heisenberg), a localização do pico da susceptibilidade é pouco afetada pela escolha do tipo das interações dipolares, ou seja, interações do tipo spin-spin e partícula-partícula fornecem resultados semelhantes.

A partir do máximo observado nas curvas da susceptibilidade versus temperatura, podemos estimar a relação entre a temperatura crítica do sistema levando-se em conta interações dipolares e na ausência destas (partículas muito distantes entre si). Por exemplo, para partículas com $n = 6$ camadas, conforme os gráficos mostrados, essa razão é igual a 1.15 nas simulações de Monte Carlo para o modelo de Ising, enquanto que essa mesma razão na aproximação de campo médio é 1.40. A figura 20 mostra o comportamento da temperatura crítica em função da distância entre os centros de duas partículas com

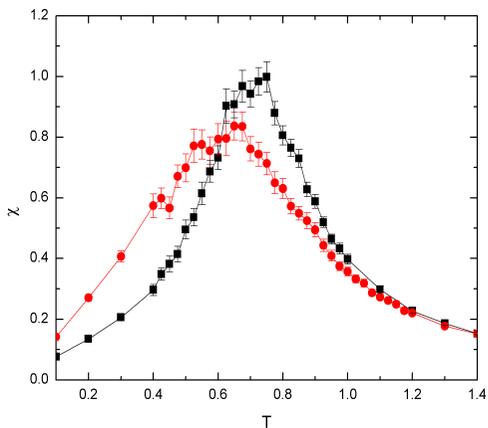


Figura 17: Susceptibilidade em função da temperatura para duas partículas de $n = 6$ camadas, formadas por spins clássicos. Os ■ referem-se a partículas próximas ($D = 1.2L$), com interação dipolar do tipo spin-spin e os ●, partículas não interagentes.

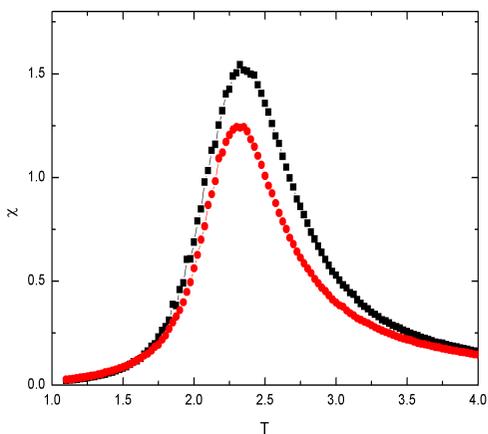


Figura 18: Susceptibilidade em função da temperatura para duas partículas de $n = 6$ camadas, formadas por spins de Ising. Os ■ levam em conta a interação dipolar do tipo spin-spin e os ●, a aproximação tipo partícula-partícula. As partículas estão separadas pela distância $D = 1.2L$.

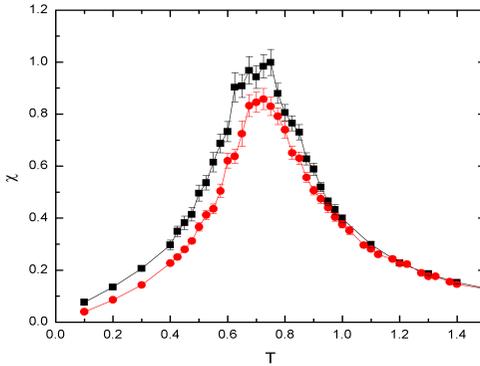


Figura 19: Susceptibilidade em função da temperatura para duas partículas de $n = 6$ camadas, compostas por spins clássicos de Heisenberg. Os ■ mostram os resultados para a interação dipolar de longo alcance do tipo spin-spin. Os ●, representam a correspondente aproximação do tipo partícula-partícula. Partículas separadas pela distância $D = 1.2L$.

$n = 6$ camadas nas simulações de Monte Carlo para spins de Ising.

É importante mencionar que, mais propriamente, as temperaturas críticas obtidas nas simulações de Monte Carlo para partículas pequenas são, na verdade, temperaturas pseudocríticas. Por razões matemáticas, um sistema finito não pode exibir uma singularidade a uma temperatura diferente de zero, mas a temperatura pseudocrítica pode ser associada ao pico na susceptibilidade.

Como seria de se esperar, a temperatura crítica diminui monotonicamente à medida que cresce a distância entre as duas partículas. Na figura 21, a temperatura crítica nas simulações de Monte Carlo é apresentada em função do número de camadas para dois valores da distância relativa entre as partículas, um para partículas não interagentes $D/L \gg 1$ e outro para $D = 1.2L$. Esse comportamento é de alguma forma o esperado. Como o número de spins N em cada partícula aumenta com L^2 e D/L é fixo, o aumento da temperatura crítica, devido à interação dipolar relativamente ao caso de partículas não interagentes, é proporcional a $1/n$. Se tivéssemos levado em conta para a magnitude da interação dipolar o valor $\Omega = 1/100$, a distância entre as duas curvas na figura 21 seria reduzida por uma quantidade equivalente a essa, embora o comportamento em função de n , fosse o mesmo.

É interessante discutir uma simplificação adicional que fizemos no es-

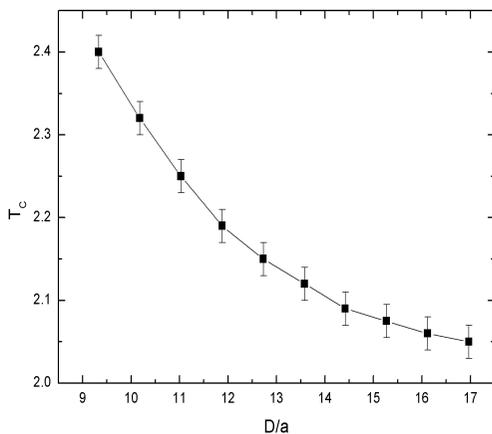


Figura 20: Temperatura crítica em função da distância entre os centros das partículas nas simulações de Monte Carlo para spins de Ising. Partículas com $n = 6$ camadas.

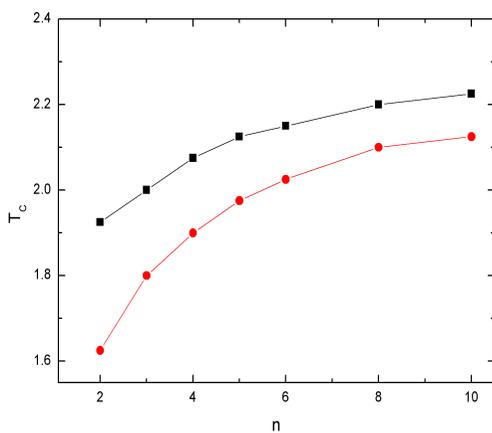


Figura 21: Temperatura crítica em função do número de camadas nas simulações de Monte Carlo, para partículas com spins de Ising, não interagentes (círculos) e interagentes (quadrados), para $D = 1.2L$.

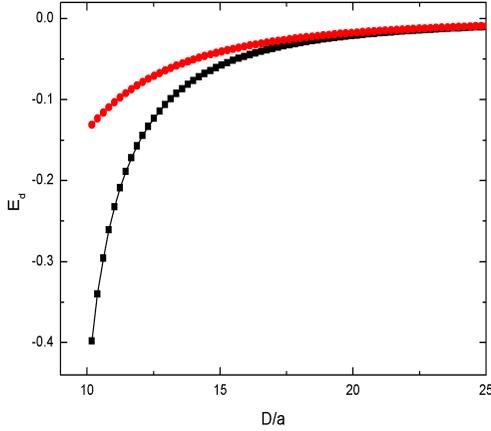


Figura 22: Energia dipolar em função da distância entre os centros das duas partículas, ambas com $n = 6$ camadas e na temperatura $T = 0.1$. A curva superior (círculos) é a energia dipolar do tipo partícula-partícula e a curva inferior (quadrados) é a energia dipolar do tipo spin-spin.

queima da aproximação de campo médio. Dentro dos somatórios, nas equações 45 e 46, respectivamente:

$$m_{\sigma_i} = \tanh \left[\beta \left(J \sum_{j=1}^z m_{\sigma_j} + \Omega \sum_{k=1}^{N'} \frac{m_{\xi_k}}{r_{ik}^3} \right) \right]$$

e

$$m_{\xi_k} = \tanh \left[\beta \left(J' \sum_{l=1}^z m_{\xi_l} + \Omega \sum_{i=1}^N \frac{m_{\sigma_i}}{r_{ki}^3} \right) \right],$$

substituímos a verdadeira distância entre os spins em cada partícula pela distância efetiva entre os centros das partículas. Por exemplo, exibimos na figura 22, a contribuição da energia dipolar em função da distância entre os centros das duas partículas, cada uma delas com $n = 6$ camadas em uma temperatura muito baixa.

A curva superior é calculada considerando que a distância entre quaisquer pares de spins é substituída pela distância entre os centros dessas partículas, que chamamos de energia dipolar do tipo partícula-partícula. A outra curva

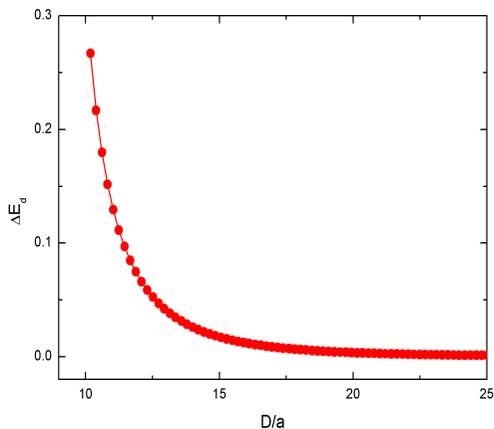


Figura 23: Diferença entre os dois valores da energia dipolar da figura 22 em função da distância entre os centros das partículas. A curva corresponde a uma lei de potência $(D/a)^{-5}$.

leva em consideração a distância real entre todos os pares de spins, um em cada partícula. Este caso é denominado aqui de energia dipolar do tipo spin-spin. Quando a distância entre as partículas é grande o suficiente, não há nenhuma diferença entre os dois cálculos. No entanto, quando as partículas estão muito próximas, a energia dipolar do tipo spin-spin é significativamente menor do que a energia dipolar do tipo partícula-partícula. Na figura 23 podemos observar a diferença entre esses dois valores da energia dipolar em função da distância entre os centros das partículas. O ajuste destes pontos é consistente com uma dependência $(D/a)^{-5}$. Este resultado está de acordo com a análise anterior realizada por Politi e Pini [54], sobre a interação dipolar entre partículas magnéticas bidimensionais, onde foi demonstrado que o primeiro termo de correção para o acoplamento dipolar entre partículas de tamanho finito decai com $(D/a)^{-2}$.

Finalmente, mostramos na figura 24, o comportamento da energia dipolar do tipo partícula-partícula em função da distância entre os centros das partículas para três diferentes temperaturas, todas abaixo da temperatura crítica. Notamos que até temperaturas tão elevadas quanto a metade da temperatura crítica, a energia dipolar entre as partículas não se altera significativamente [75].

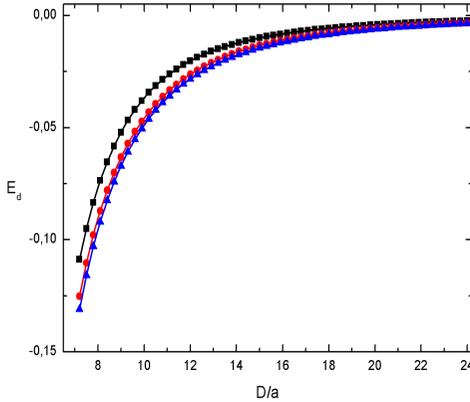


Figura 24: Energia de interação dipolar partícula-partícula em função da distância entre o centro das partículas para três temperaturas diferentes. $T = 0.1$ (\blacktriangle), $T = 1.0$ (\bullet) e $T = 1.5$ (\blacksquare).

2.4.2 Partículas tridimensionais

Foram realizadas simulações de Monte Carlo para partículas tridimensionais com formato de octaedros, constituídas de vetores de spins de Heisenberg dispostos nos vértices de uma rede cúbica. Uma partícula magnética com essas características é apresentada em [76]. Esta configuração é densa e também permite uma separação dos sítios em cascas ou camadas, iniciando com um spin central. Isso permite escolher o tamanho da partícula a partir do número de camadas, mantendo assim uma simetria de densidade e forma. Foram considerados os casos em que duas partículas apresentam interação dipolar, estando próximas entre si, e partículas isoladas, onde a interação dipolar é desprezível, caso em estas estão muito afastadas uma da outra. O sistema foi estudado na ausência de um campo magnético externo, variando-se apenas o tamanho das partículas e a distância entre as mesmas. Consideramos novamente dois casos: a interação dipolar entre cada spin da primeira partícula e cada spin da segunda partícula (o que poderíamos chamar de interação dipolar própria e nesta Tese denominamos de interação spin-spin), e, em um segundo caso, uma aproximação para a interação dipolar, onde a distância entre pares de spins é substituída pela distância D entre os centros das partículas, aqui

denominada de aproximação partícula-partícula.

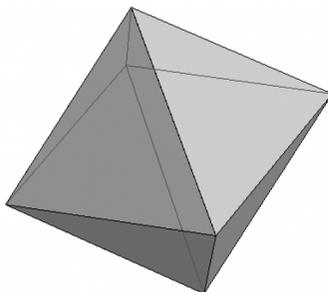


Figura 25: Octaedro regular. A distribuição dos spins tem a forma octaédrica.

Também neste caso consideramos o mesmo número de spins em ambas as partículas ($N = N'$), e o mesmo valor para o acoplamento de troca entre spins primeiros vizinhos no interior das partículas, $J = J'$. Assumimos também em nossos cálculos unidades arbitrárias, $\Omega = 1$ e $J = 1$.

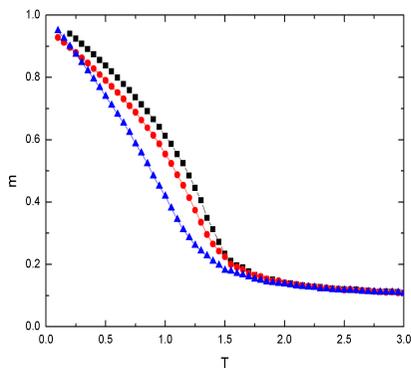


Figura 26: Magnetização em função da temperatura para partículas de $n = 4$ camadas nas simulações de Monte Carlo. ■ para a interação do tipo partícula-partícula e ● para partículas interagentes do tipo spin-spin. Nestes dois casos as partículas estão separadas pela distância $D = 1.2L$. ▲ é a magnetização para partículas não interagentes ($D/L \gg 1$).

Através da simulação de um par de partículas, obtivemos as curvas de

magnetização (figura 26), da susceptibilidade (figura 27) e da energia dipolar (figura 30), podendo essas grandezas ser estudadas em função da temperatura e do número de camadas n . A temperatura crítica também foi determinada (figuras 28 e 29).

A figura 26 representa a magnetização de duas partículas, com e sem interação dipolar, para os casos de interação dos tipos spin-spin e partícula-partícula. No caso onde não há interação entre elas a curva de magnetização foi obtida tomando-se $D = 10^3 L$. A figura 26 assemelha-se qualitativamente com o caso de partículas bidimensionais (figura 14) quando se leva em conta a presença ou não de interação, porém, por outro lado, apresenta uma maior sensibilidade para as diferenças entre os casos spin-spin e partícula-partícula se comparado com a figura 15. Aqui também o efeito desmagnetizante devido ao tamanho finito dessas partículas é mais pronunciado quando as distâncias entre pares de spins são levadas em conta corretamente.

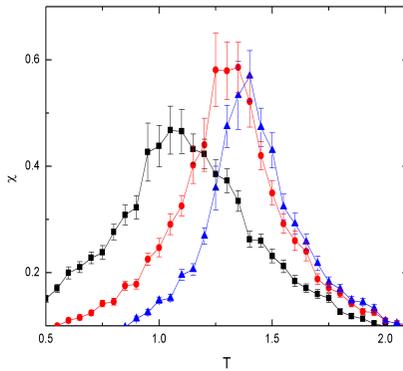


Figura 27: Susceptibilidade em função da temperatura para duas partículas de $n = 4$ camadas, formadas por spins clássicos. ■ para partículas não interagentes, ● para partículas interagentes tipo spin-spin e ▲ para partículas interagentes na aproximação partícula-partícula.

A figura 27 mostra a susceptibilidade para partículas tridimensionais, formadas por vetores de spin, para $n = 4$ camadas em função da temperatura. Notamos um deslocamento do pico da susceptibilidade devido à presença da interação dipolar, sendo que este fenômeno é ainda mais expressivo no caso da aproximação partícula-partícula, diferenciando-se do caso spin-spin principalmente em decorrência dos efeitos de borda presentes neste sistema.

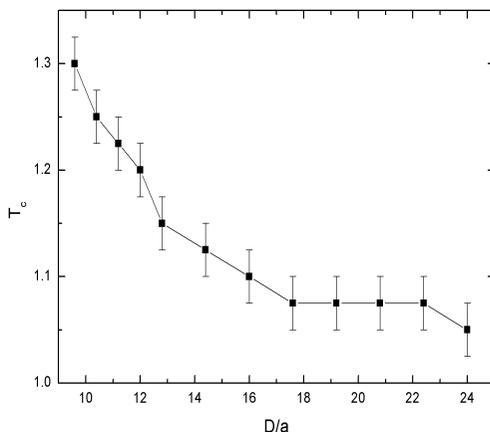


Figura 28: Temperatura crítica em função da razão D/a para o caso spin-spin nas simulações de Monte Carlo. Partículas com $n = 4$ camadas.

A partir do máximo nas curvas da susceptibilidade, podemos estimar a temperatura crítica do sistema levando-se em conta as interações dipolares e a ausência destas, bem como o tipo de aproximação realizada relativamente à distância de separação entre os spins. A figura 28 mostra o comportamento da temperatura crítica em função da razão D/a para partículas com $n = 4$ camadas nas simulações.

A determinação mais precisa da temperatura crítica torna-se mais difícil neste caso devido à formação de um pico achatado na susceptibilidade e a persistência de flutuações associadas ao tamanho reduzido do sistema. Podemos notar que a temperatura crítica tende a diminuir à medida que se aumenta a distância entre as duas partículas. Na figura 29, a temperatura crítica nas simulações de Monte Carlo é representada em função do número de camadas para partículas interagentes e não interagentes.

A curva superior da figura 30 refere-se à energia dipolar do sistema com interações do tipo spin-spin, que não apresenta nenhuma aproximação no termo dipolar da hamiltoniana (equação 4). A outra curva leva em consideração a aproximação para a distância de separação entre os centros das duas partículas, o que acaba reduzindo os efeitos de borda (aproximação do tipo partícula-partícula). Como era de se esperar, quando a distância entre as partículas é grande o suficiente, não há nenhuma diferença entre os dois tipos

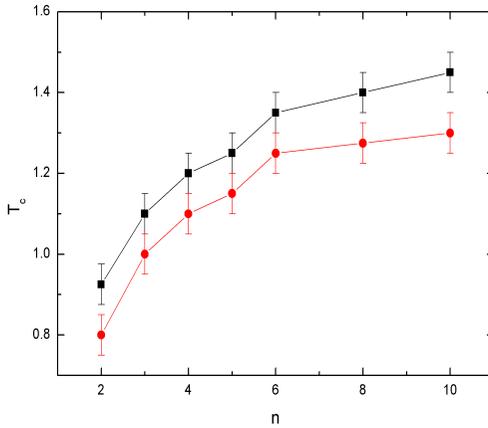


Figura 29: Temperatura crítica em função do número de camadas para partículas tridimensionais do tipo spin-spin, interagentes (■) e não interagentes (●).

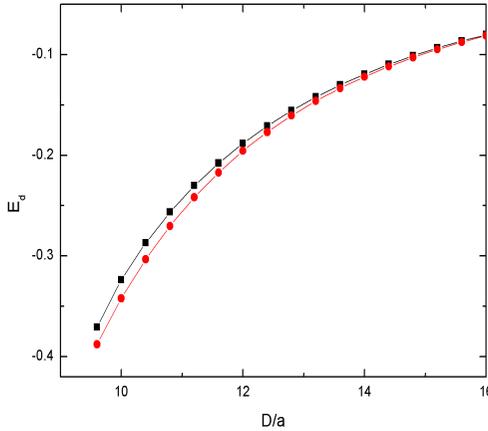


Figura 30: Energia dipolar em função da distância entre as duas partículas, ambas com $n = 4$ camadas e para a temperatura $T = 0.1$. A curva superior (■) é a energia dipolar do tipo spin-spin e a curva inferior (●) é a energia dipolar do tipo partícula-partícula.

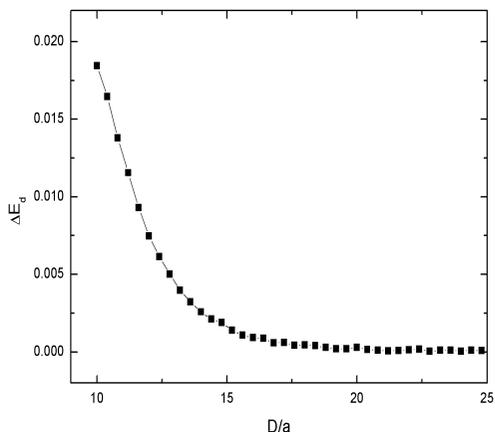


Figura 31: Diferença entre os dois valores da energia dipolar da figura 30 em função da razão D/a . A curva corresponde a uma lei de potência $(D/a)^{-5}$.

de cálculos. No entanto, quando as partículas estão muito próximas, a energia dipolar do tipo partícula-partícula, no caso tridimensional, é ligeiramente inferior àquela determinada para o caso da interação do tipo spin-spin. Na figura 31 podemos observar o comportamento dessa diferença entre esses dois valores da energia dipolar. O ajuste desses pontos, como no caso de spins de Ising, também é consistente com uma dependência $(D/a)^{-5}$. Entretanto, apesar da correção ao termo dipolar ser essencialmente a mesma para spins de Ising e vetores de spins clássicos, notamos uma mudança qualitativa no comportamento dessas curvas. Enquanto na figura 22, spins de Ising em duas dimensões, a aproximação do tipo partícula-partícula apresenta valores maiores para a energia dipolar relativamente ao caso do tipo spin-spin, na figura 30, vetores de spin clássicos em três dimensões, ocorre claramente uma inversão dessas curvas em função da distância entre os centros das partículas. Na figura 32 mostramos o comportamento da energia dipolar na aproximação do tipo partícula-partícula em função da razão D/a para três diferentes temperaturas, todas abaixo da temperatura crítica. Como esperado, o valor da energia aumenta rapidamente com a temperatura.

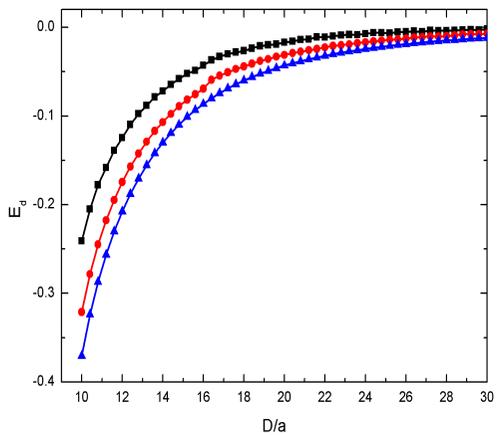


Figura 32: Energia de interação dipolar spin-spin em função da razão D/a para três temperaturas diferentes. $T = 0.6$ (■), $T = 0.3$ (●) e $T = 0.1$ (▲).

3 Efeitos da interação dipolar em sistemas de partículas de domínio único

3.1 Introdução

As nanopartículas magnéticas são formadas por um grande número de momentos magnéticos atômicos, acoplados pela forte interação de troca de curto alcance, dando origem a um enorme momento magnético, cuja direção é ditada pela anisotropia uniaxial. Nos últimos anos, houve um grande avanço no desenvolvimento e aperfeiçoamento de técnicas para produzir e medir as propriedades magnéticas dessas nanoestruturas magnéticas. Estes avanços permitiram a verificação experimental dos primeiros trabalhos teóricos como os de Stoner-Wohlfarth [77] Néel [78] e Brown [79] sobre a reversão da magnetização em monodomínios isolados através de barreiras de energia, devidas à flutuação térmica.

O modelo proposto por Stoner e Wohlfarth [77] ainda é amplamente usado para comparar propriedades magnéticas obtidas experimentalmente de sistemas de partículas do tipo monodomínio, sendo considerado o modelo mais simples para descrever a magnetização desse tipo de sistema [80, 81]. Stoner e Wohlfarth introduziram um modelo para explicar a coercividade de ligas ferromagnéticas feitas de bases metálicas magneticamente “fracas”, cuja magnetização pode ser facilmente revertida ao se aplicar um campo magnético externo que, entretanto, exibiam ainda “partículas”, responsáveis por um comportamento magnético “duro” na liga [80]. Néel estudou o efeito da flutuação térmica e descobriu o fenômeno do superparamagnetismo, de modo que pôde calcular o limite inferior para a estabilidade de domínio único de uma partícula de ferro, que era de $16nm$. O que Néel mostrou foi que a considerável energia devida à flutuação térmica explicava como o fraco campo magnético da Terra é capaz de deixar marcas em rochas ou grânulos cujas forças coercivas podem ter uma intensidade até 1000 vezes maior. Néel propôs a ideia de tempo de relaxação, e mostrou a relação descomunal entre o tamanho da partícula e seu tempo de relaxação: ao dobrar o tamanho da partícula esse tempo é multiplicado por um fator de 10^{10} [39]. O trabalho de Brown [79] também estava relacionado com a relaxação em partículas magnéticas, na mesma linha de Néel.

Além do interesse teórico no comportamento das nanopartículas, suas propriedades podem ser empregadas na produção de novos dispositivos magnéticos de grande relevância para toda humanidade nas mais diversas áreas

tecnológicas [82, 83]. Recentes avanços permitiram a fabricação de partículas na forma de monodomínios [84], algumas vezes denominadas de partículas de Stoner [85], cujo comportamento dinâmico da magnetização, envolvendo a aplicação de campos magnéticos, vem sendo estudada intensivamente [84, 86, 87, 88, 89].

Ao estudar materiais nanoestruturados podemos nos deparar com estruturas de vários tipos [77, 90], com comportamentos distintos determinados pelas interações mais relevantes. No caso de estruturas compostas por nanopartículas magnéticas bem separadas em matrizes não metálicas, como é o caso do trabalho desenvolvido nesta Tese, a interação mais relevante é a dipolar, de longo alcance. A magnitude dessa interação é proporcional ao número de momentos magnéticos acoplados. A interação de troca somente tem importância se a distância entre as nanopartículas adjacentes for menor que $\sim 5\text{\AA}$ ou se a interação Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) estiver presente, como no caso de matrizes metálicas. De qualquer forma, a interação dipolar tende a suprimir o efeito das interações RKKY para partículas com diâmetro maior que 1nm [91].

3.2 Modelo e Simulações de Monte Carlo

Nesta Tese investigamos as propriedades magnéticas de um sistema de nanopartículas magnéticas levando-se em conta que seus eixos fáceis de magnetização estão orientados aleatoriamente em três dimensões, e que interagem unicamente através da interação dipolar, de longo alcance. O fenômeno magnético nesses sistemas origina-se na competição entre a interação dipolar e a energia magnetocristalina de cada nanopartícula [92].

Usamos simulações de Monte Carlo para estudar as propriedades magnéticas de nanopartículas em dois cenários diferentes: no primeiro, um sistema bastante diluído, onde a interação dipolar pode ser desprezada em comparação com a energia magnetocristalina; e no segundo caso, onde os dipolos magnéticos gigantes estão dispostos em uma estrutura cristalina, interagindo entre si através do acoplamento dipolar. Neste caso consideraremos explicitamente uma rede cúbica simples (SC) e uma rede cúbica de face centrada (FCC). Também realizamos nossos cálculos numa estrutura do tipo líquida. As coordenadas das partículas usadas na simulação para a estrutura tipo líquido foram gentilmente cedidas pelo Dr. Adrian Barnes, do H. H. Wills Physics Laboratory, University of Bristol, Inglaterra.

Enquanto o grau de diluição é alto e as partículas ficam muito distantes

entre si, a magnitude da interação dipolar é bastante pequena comparada à energia associada ao campo cristalino. Nessa situação, a dinâmica do sistema é governada apenas pelo campo magnético externo, a anisotropia uniaxial efetiva e o acoplamento com o banho térmico. Por outro lado, este cenário muda completamente quando a concentração de nanopartículas aumenta e a interação dipolar entre elas precisa ser levada em conta. Na presença da interação dipolar a barreira de energia, que antes era apenas decorrente da anisotropia uniaxial, é modificada. A maneira como se dá essa modificação é ainda uma questão de debate na literatura [60]. Mesmo para valores muito pequenos da interação dipolar, em alguns experimentos a temperatura de bloqueio aumenta com a concentração, enquanto em outros ela diminui [93, 94, 95].

Atualmente, é bem conhecida a propriedade de que o estado fundamental e o arranjo de sistemas puramente dipolares dependem fortemente da simetria da rede [96]. Assim, o desenvolvimento de novas técnicas que permitem a produção de redes ordenadas de nanopartículas magnéticas [97, 98, 84] traz novas perspectivas no estudo das propriedades magnéticas desses sistemas.

Para verificar essa propriedade e outras associadas a um conjunto de nanopartículas magnéticas, comparamos os resultados para a temperatura de bloqueio, remanência e campo coercivo em função da intensidade da interação dipolar para os sistemas cristalinos referidos acima e para a estrutura do tipo líquido (figura 33).

Como dissemos anteriormente, cada nanopartícula individual é formada por centenas ou milhares de momentos magnéticos atômicos fortemente acoplados pela interação de troca. A direção desse momento de dipolo magnético resultante é determinado pela anisotropia uniaxial efetiva, que inclui as contribuições da energia de anisotropia de forma e magnetocristalina. Assumimos que os eixos de fácil magnetização estão distribuídos aleatoriamente nas três dimensões espaciais, e a barreira de energia, relacionada à magnitude da anisotropia uniaxial, obedece a uma distribuição gaussiana. Essa distribuição para a magnitude da anisotropia uniaxial, que depende do volume de cada partícula, na realidade está relacionada com a própria distribuição de tamanho dessas partículas.

Assim sendo, a magnitude da anisotropia é dada por $d = KV$, onde K é a densidade de energia e V é o volume da partícula, que neste trabalho escolhemos como tendo uma distribuição gaussiana. O momento magnético da i -ésima partícula é escrito como $\vec{\mu}_i = \mu\vec{S}_i$, onde \vec{S}_i é um vetor unitário, $|\vec{S}_i| = 1$, e $\vec{S}_i = (S_{ix}, S_{iy}, S_{iz})$. Nós também escrevemos μ na forma $\mu = M_s V$, onde M_s é a magnetização de saturação da partícula. Um campo magnético

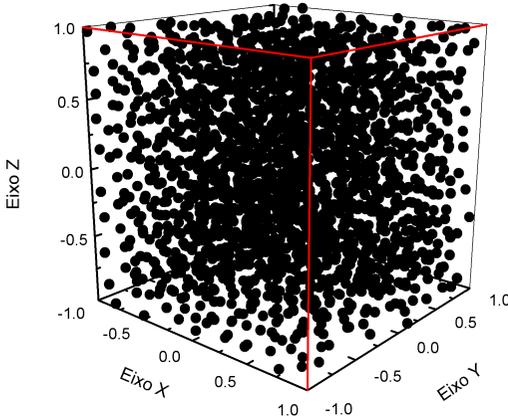


Figura 33: Ilustração da distribuição espacial das nanopartículas numa estrutura do tipo líquido. O tamanho das nanopartículas não está na escala correta.

externo, de magnitude H , é aplicado na direção x da rede cristalina correspondente. As partículas interagem através de um termo dipolar e a magnitude da energia dipolar é escrita em função do acoplamento $g = \mu^2/a^3$, onde a é o parâmetro de rede. A hamiltoniana para um conjunto de N partículas é

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2}g \sum_{i=1}^N \sum_{j \neq i}^N \left[\frac{\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j}{r_{ij}^3} - 3 \frac{(\vec{S}_i \cdot \vec{r}_{ij})(\vec{S}_j \cdot \vec{r}_{ij})}{r_{ij}^5} \right] - \sum_{i=1}^N h S_{xi} - \sum_{i=1}^N d(\vec{e}_i \cdot \vec{S}_i)^2, \quad (53)$$

onde r_{ij} é a distância entre os momentos magnéticos localizados nos sítios i e j e é medida em unidades do parâmetro de rede a . Nós também definimos que $h = \mu H$. O vetor \vec{e}_i é o vetor unitário na direção do eixo fácil da partícula no sítio i . Um parâmetro importante em nossa análise é $\alpha = g/d$, que nos dá a razão entre as energias dipolar e de anisotropia.

As simulações de Monte Carlo foram utilizadas para estudar o comportamento magnético do sistema através das curvas de magnetização ZFC (*Zero Field Cooled*). No processo ZFC o estado inicial de cada amostra é obtido através de um rápido congelamento, partindo de uma temperatura muito alta, bem acima da temperatura de bloqueio (T_B), onde o sistema está no estado paramagnético, com a magnetização flutuando próximo de zero, e não há

campo aplicado. A temperatura baixa deve ser bem inferior à T_B . Partindo desse estado congelado, o sistema é lentamente aquecido na presença de um campo magnético fraco, em comparação ao valor da anisotropia uniaxial, até uma temperatura bem acima de T_B [99]. Enquanto a temperatura é baixa e o campo ainda não foi ligado, o sistema encontra-se em um estado onde a magnetização total é próxima de zero, e para cada partícula, o momento magnético aponta, com a mesma probabilidade, nas duas direções possíveis ao longo de seu eixo fácil. Depois que o campo é aplicado, os momentos magnéticos individuais desviam-se ligeiramente da direção dos seus respectivos eixos de fácil magnetização, devido à contribuição de Zeeman à energia do sistema. Devido às barreiras de energia existentes no sistema, a amostra não consegue atingir o estado de equilíbrio correspondente a esta temperatura tão baixa, e este campo sendo tão fraco não é suficiente para fazer o sistema relaxar para o estado de equilíbrio dentro de um intervalo de tempo observável. Entretanto, com o aumento da temperatura, a taxa de relaxação aumenta exponencialmente, de modo que cada vez mais momentos magnéticos conseguem ultrapassar a barreira de energia e se alinhar com o campo magnético externo, levando a um aumento na magnetização do sistema. O aumento da magnetização se mantém enquanto a temperatura cresce, até o sistema atingir um estado de equilíbrio, onde a taxa de transição dos momentos magnéticos através da barreira de energia, em ambas as direções, é a mesma. Se a temperatura continuar aumentando, a magnetização diminui, seguindo a lei de Curie, pois nesse caso a agitação térmica começa a destruir o alinhamento na direção do campo. Esse pico na magnetização se localiza numa temperatura geralmente chamada de temperatura de bloqueio (T_B), porque abaixo dela o momento magnético se encontra “bloqueado” pela barreira de energia de anisotropia e, acima dela, a energia térmica torna-se maior que aquela associada a esta própria barreira de energia.

Desde que o interesse é entender o que ocorre com a barreira de energia vista por uma nanopartícula ao tentar mudar seu estado, existe também a possibilidade de se trabalhar com uma curva de magnetização chamada FC (*Field Cooled*). Essa curva é obtida medindo-se a magnetização enquanto a amostra é resfriada lentamente na presença de um campo magnético fraco, até uma temperatura bastante baixa [99]. Neste trabalho optamos pela curva ZFC porque a preparação inicial da amostra é bem mais simples, e podemos observar a temperatura de bloqueio através do máximo que surge na curva da magnetização em função da temperatura.

Em nossos cálculos consideramos um sistema de $N = 343$ partículas e

os parâmetros utilizados nesses simulações foram os seguintes: $d_0 = 0.5$ and $\sigma = 0.1$ que correspondem ao valor médio e desvio padrão, respectivamente, da distribuição gaussiana para a anisotropia uniaxial. Nos experimentos ZFC tomamos para o campo magnético externo um valor $h = 0.05d_0$ e um total de cerca de 200 amostras independentes foram utilizadas para determinar os valores médios de interesse. A temperatura em nossas simulações é sempre medida em unidades de $\frac{d_0}{k_B}$. Em todas as simulações empregamos condições de contorno livres. O procedimento utilizado para determinar os estados estacionários e de equilíbrio do sistema é baseado na minimização de sua energia livre através da técnica de Monte Carlo e da utilização do algoritmo de Metropolis. De acordo com esse procedimento, um dado momento magnético é selecionado aleatoriamente, e nós tentamos mudar a sua orientação de tal forma que o desvio da velha orientação para a nova seja também feita aleatoriamente, porém dentro de um ângulo sólido máximo, de tal forma que aproximadamente metade das tentativas de mudança sejam aceitas. Esta é a parte mais lenta da simulação, porque uma vez aceita uma nova configuração, precisamos recalculamos o campo dipolar efetivo que atua sobre todas as outras partículas do sistema. A unidade de tempo em nossos cálculos é o denominado passo de Monte Carlo (pMC) que corresponde a N tentativas independentes para se alterar o estado do sistema.

Na maioria dos casos estudados um total de 10^4 pMC é suficiente para calculamos as propriedades do sistema. Nesse caso, os primeiros 2×10^3 passos de Monte Carlo (pMC) são descartados. Determinamos além da temperatura de bloqueio do sistema, a remanência, o campo coercivo, bem como as curvas completas de histerese.

Como podemos verificar na figura 34, a escolha do número de passos de Monte Carlo tem uma influência nos valores obtidos para as propriedades físicas [58]. Isso ocorre porque o sistema simulado pode não ter ainda atingido um estado estacionário para a temperatura selecionada. Não é desejável também esperar por um tempo extremamente longo, caso contrário o sistema entraria, cedo ou tarde, num estado de equilíbrio. Se esperarmos um tempo muito longo, a taxa de transição através da barreira de energia torna-se igual em ambas as direções de cada eixo de fácil magnetização. As nanopartículas estão sob a ação de um campo magnético fraco, cerca de 5% da altura da barreira, porém ele serve para quebrar a simetria do sistema, e é responsável pelo rápido crescimento da magnetização no início da simulação (figura 35). Depois, a anisotropia tenta manter o sistema como estava, ou seja, os momentos magnéticos estão bloqueados em baixas temperaturas. O

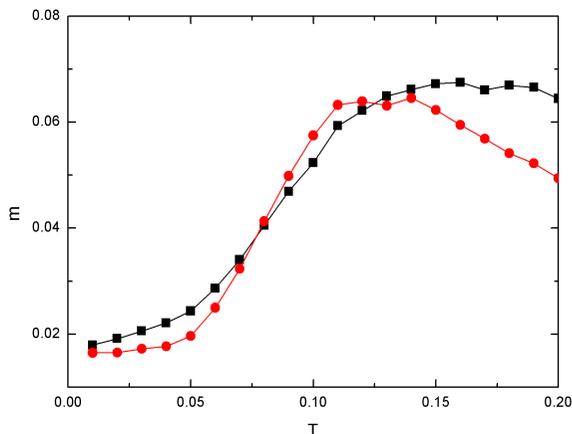


Figura 34: Magnetização de um sistema de nanopartículas em função da temperatura. A magnetização foi calculada a partir de médias tomadas após 1000 pMC (■) e 2000 pMC (●). Podemos observar o deslocamento no máximo das curvas, cujos picos estão associados à temperatura de bloqueio.

processo de relaxação consiste em tentativas que cada momento magnético realiza para se alinhar ao campo. A energia de Zeeman não é suficiente para vencer a barreira de energia, para temperaturas muito baixas. Quando então a temperatura cresce, devido às flutuações térmicas, energia suficiente pode ser transferida à nanopartícula para que ela mude de um estado de mínima energia para outro. Se esperarmos um tempo suficientemente longo, todas as partículas terão a oportunidade de vencer a barreira de energia. Esse tipo de comportamento ocorre mesmo que as interações entre as nanopartículas sejam desprezíveis. Note na figura 34 o comportamento da magnetização para um sistema de partículas não interagentes quando calculamos a magnetização em função da temperatura fazendo-se médias após 1000 pMC e 2000 pMC. Se não esperamos o sistema entrar no estado estacionário, a temperatura de bloqueio parece ser muito mais alta do que quando o estado estacionário é alcançado para cada valor de temperatura. Se tomarmos, por exemplo, 3000 pMC os resultados não se modificam relativamente ao caso de 2000 pMC. Na figura 35 vemos a influência da temperatura na magnetização ZFC.

Agora vamos levar em conta o efeito das interações dipolares em nossos

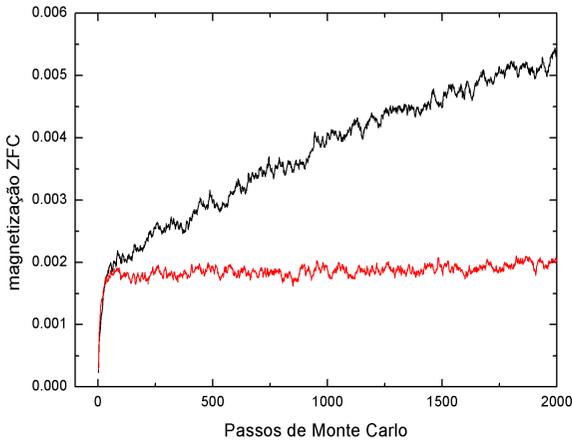


Figura 35: Magnetização de um sistema de nanopartículas em função do número de passos de Monte Carlo. A curva superior (em preto) é para a temperatura $T = 0.09$ um pouco acima da temperatura $T = 0.05$ utilizada na curva inferior (em vermelho).

cálculos. Como dissemos anteriormente, ele é medido através do parâmetro $\alpha = g/d$, razão entre a magnitude da interação dipolar e a altura da barreira devido à anisotropia uniaxial. As curvas de magnetização ZFC apresentam um pico em uma temperatura específica, denominada “temperatura de bloqueio”, o que pode ser visto, por exemplo, na figura 36. Abaixo dessa temperatura, cada momento magnético gigante, de cada nanopartícula, está tentando vencer a barreira efetiva energia, já que agora, além da anisotropia uniaxial, temos a contribuição das interações dipolares. Acima desta temperatura, o sistema exibe um comportamento do tipo paramagnético, pois o momento magnético gigante flutua, em torno da direção do campo magnético externo. A magnetização das $N = 343$ partículas se aproxima de próxima de zero, apontando na direção do campo magnético externo.

3.3 Resultados e Conclusões

Na figura 36 são mostrados resultados para um caso em que a interação dipolar é zero, o que reflete um sistema muito diluído, e outros dois casos de um sistema de nanopartículas dispostas em uma rede cúbica de face centrada

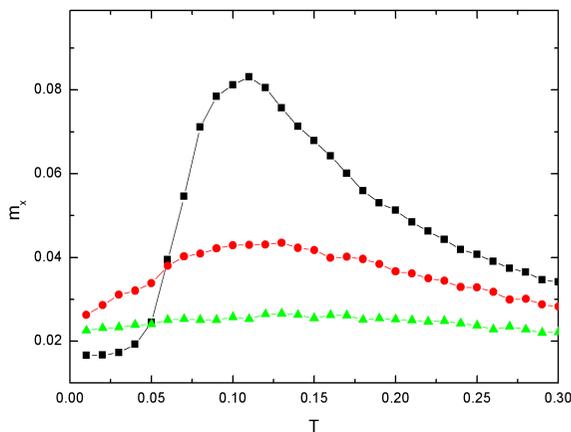


Figura 36: Magnetização “Zero Field Cooled” para partículas não interagentes (■), $\alpha = 0.0$, partículas interagentes dispostas em uma rede FCC, com $\alpha = 0.1$ (●) e $\alpha = 0.2$ (▲) em função da temperatura. A temperatura é medida em unidades de d/k_B .

- FCC, com dois valores diferentes para a contribuição da interação dipolar. Notamos claramente que a introdução dessa interação torna as curvas muito mais largas, dificultando a localização do máximo, que corresponde à temperatura de bloqueio do sistema. A temperatura de bloqueio do sistema aumenta ligeiramente com a magnitude da interação dipolar e a magnetização é reduzida para esta rede.

Também foram obtidas, através de simulações de Monte Carlo, curvas de magnetização ZFC para sistemas em diferentes redes, como a rede cúbica e a estrutura tipo líquido. Os resultados podem ser vistos na figura 37, onde são também mostrados os resultados para a rede FCC e para um sistema diluído, interação desprezível. Para as estruturas tipo líquido e cúbica simples, observa-se uma diminuição da temperatura de bloqueio relativamente ao valor obtido para o sistema diluído.

O campo coercivo, que é o valor do campo aplicado necessário para levar a magnetização a zero, é mostrado na figura 38 em função da temperatura para um sistema diluído e para uma rede FCC com dois valores diferentes para a magnitude da interação dipolar. Podemos observar que a temperatura onde o campo coercivo vai a zero também serve para definir a temperatura

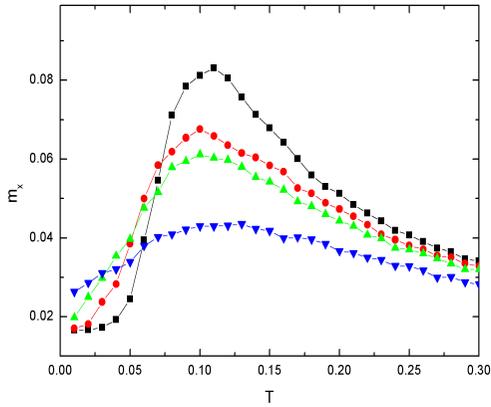


Figura 37: Magnetização ZFC para partículas não interagentes (■), partículas interagentes dispostas em: rede cúbica simples (●), estrutura do tipo líquido (▲) e rede FCC (▼), sempre para $\alpha = 0.1$, em função da temperatura.

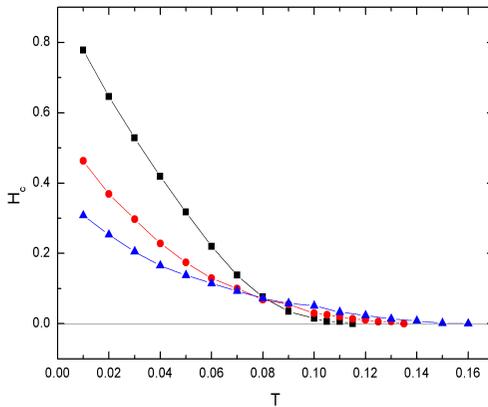


Figura 38: Campo coercivo em função da temperatura para nanopartículas não interagentes (■) e interagentes, dispostas em uma rede FCC para dois valores do parâmetro de interação dipolar: $\alpha = 0.1$ (●) e $\alpha = 0.2$ (▲). A temperatura é medida em unidades de d/k_B .

de bloqueio. A partir desse gráfico, notamos também que temperatura T_B aumenta ligeiramente com α . É interessante observar que o campo coercivo decresce mais suavemente com a temperatura quanto maior for a intensidade do acoplamento dipolar.

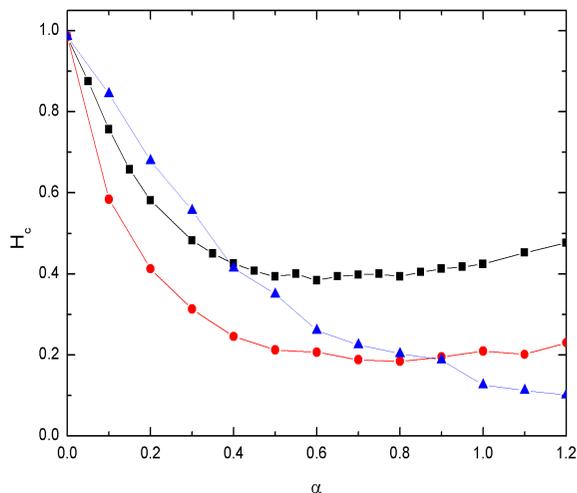


Figura 39: Campo coercivo em função da magnitude da interação dipolar para nanopartículas dispostas em uma estrutura tipo líquido (■), rede FCC (●) e rede cúbica simples (▲), sendo que todos os dados foram obtidos em baixas temperaturas.

A curva do campo coercivo em função do valor da intensidade da interação dipolar pode ser visto na figura 39, onde são apresentados os resultados para a estrutura do tipo líquido, redes cúbica de face centrada e cúbica simples. Esses gráficos foram efetuados para temperatura bastante baixa, próxima de zero. Nesta figura podemos observar o surgimento de um mínimo na coercividade para as estruturas tipo líquido e na rede FCC. Devemos ter em mente, entretanto, que a intensidade da interação dipolar é muito alta na região onde aparece esse ponto de mínimo e que do ponto de vista experimental não podemos observar esse fenômeno, pois a magnitude do acoplamento dipolar nos sistemas reais conhecidos é sempre menor que $\alpha = 0.2$.

A figura 40 mostra o gráfico da remanência (valor da magnetização do sistema quando o campo externo é nulo) em função da temperatura. É mostrada

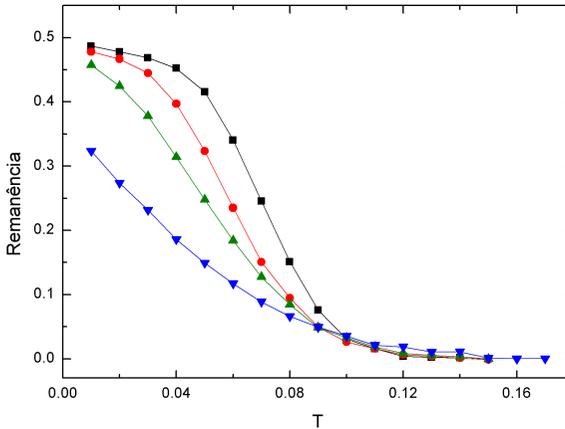


Figura 40: Remanência em função da temperatura para nanopartículas não interagentes (■) e interagentes, com $\alpha = 0.1$, numa rede cúbica simples (●), estrutura tipo líquido (▲) e rede FCC (▼). A temperatura é dada em unidades de d/k_B .

a remanência para todos os casos estudados: o sistema diluído, estrutura do tipo líquido, e redes cúbica simples e FCC. Como no caso do campo coercivo, a temperatura na qual remanência vai a zero também pode ser identificada com a temperatura de bloqueio. Na região de baixas temperaturas observa-se que a distribuição das nanopartículas na rede FCC leva aos menores valores para a remanência, ou seja, nessa rede, com as condições de contorno livres que estamos utilizando, as interações dipolares favorecem um ordenamento preferencialmente antiferromagnético para essas nanopartículas.

O comportamento da remanência na medida em que se varia a intensidade da interação dipolar, dada pelo fator α , pode ser vista na figura 41, para os sistemas interagentes estudados, para temperaturas muito menores que a de bloqueio. Mais uma vez notamos que a remanência é consideravelmente menor na rede FCC.

As figuras 39 e 41, que mostram o comportamento do campo coercivo e da remanência em função do acoplamento dipolar em baixas temperaturas, estão qualitativamente de acordo com medidas experimentais recentes realizadas em sistemas de nanopartículas de magnetoferritina [100].

A figura 42 mostra as curvas de histerese para temperaturas bem menores

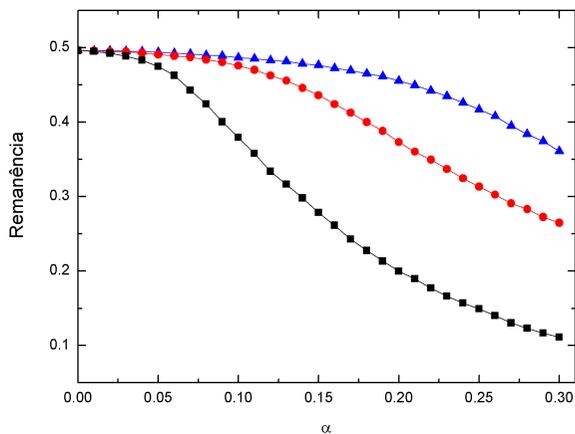


Figura 41: Remanência em função do acoplamento dipolar para nanopartículas dispostas em uma rede cúbica simples (▲), estrutura do tipo líquido (●) e rede FCC (■), em baixas temperaturas.

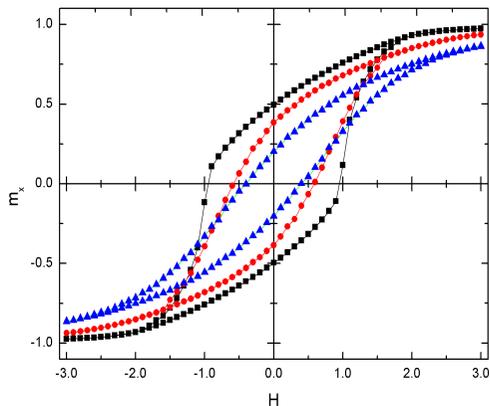


Figura 42: Curvas de histerese para sistemas de nanopartículas interagentes em uma rede FCC para $\alpha = 0.1$ (●) e $\alpha = 0.2$ (▲) e não interagentes (■), em baixas temperaturas.

que a temperatura de bloqueio, de um sistema de partículas não interagentes

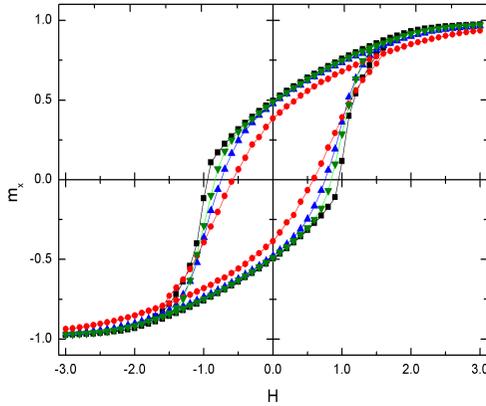


Figura 43: Curvas de histerese para sistemas de nanopartículas não interagentes (■) e interagentes: rede cúbica simples (▼), estrutura tipo líquido (▲) e rede FCC (●), para $\alpha = 0.1$ em baixas temperaturas.

e para dois valores selecionados do parâmetro de interação dipolar de um sistema de partículas dispostas em uma rede FCC [101]. A área entre as curvas se torna menor à medida que a interação dipolar torna-se mais intensa, para partículas distribuídas nos sítios de uma estrutura FCC, o que está de acordo com simulações micromagnéticas realizadas recentemente [90], para o mesmo tipo de rede, bem como os resultados já citados para os dados experimentais obtidos para a nanopartícula magnetoferritin [100]. Na figura 43 mostramos as curvas de histerese obtidas para a mesma intensidade do acoplamento dipolar ($\alpha = 0.1$), e na região de baixas temperaturas, para partículas não interagentes, estrutura do tipo líquido e redes cúbica simples e de face centrada. Como nos casos anteriores o ciclo de histerese na rede FCC apresenta a menor área.

4 Conclusões

Estudamos o efeito do acoplamento dipolar nas propriedades magnéticas de dois tipos de sistemas. O primeiro deles consiste de duas pequenas partículas ferromagnéticas, com estruturas internas, interagindo através da interação dipolar de longo alcance. Cada partícula é representada por uma rede bidimensional finita de spins de Ising, ou por redes finitas, em duas e três dimensões, com vetores de spin clássicos localizados em cada sítio da estrutura. Em todos os casos assumimos a presença de um spin central envolvido por um número variável de camadas magnéticas. O acoplamento entre spins dentro de cada partícula é do tipo ferromagnético e assumimos uma interação dipolar entre as partículas. As propriedades magnéticas do sistema foram investigadas em função da temperatura, número de camadas em cada partícula e da distância entre os centros dessas partículas. Para os sistemas onde a interação de troca entre spins vizinhos ocorre via a hamiltoniana de Ising, empregamos em nossas análises a aproximação de campo médio e simulações de Monte Carlo. Quando a interação de troca é descrita pela hamiltoniana de Heisenberg utilizamos apenas simulações de Monte Carlo. A interação dipolar é calculada de duas maneiras diferentes. Numa, aproximada, a interação dipolar entre as partículas se dá através de momentos de dipolo efetivos localizados nos centros das partículas. No outro caso, computamos todas as interações dipolares entre pares de spins, um em cada partícula. Mostramos que a diferença na energia dipolar calculada dessas duas maneiras, decai com a distância entre os centros das partículas com uma lei de potência com expoente 5. Determinamos a magnetização e a susceptibilidade em função da temperatura, número de camadas e distância entre os centros das partículas. Mostramos que a temperatura crítica aumenta com o número de spins em cada partícula, sendo mais notável nos cálculos utilizando a aproximação de campo médio do que nas simulações de Monte Carlo.

Um segundo problema estudado nesta Tese, relativo ao papel desempenhado pelas interações dipolares, consiste no estudo das propriedades magnéticas de um conjunto de partículas de domínio único. Este sistema foi investigado somente através de simulações de Monte Carlo em três redes diferentes: rede cúbica simples, rede cúbica de face centrada e numa estrutura desorganizada semelhante a um líquido de esferas duras. As partículas, que apresentam

um momento magnético gigante, interagem através do acoplamento dipolar de longo alcance, e apresentam uma anisotropia uniaxial, cuja magnitude é escolhida a partir de uma distribuição de Gauss, e cujos eixos de fácil magnetização estão orientados aleatoriamente no espaço tridimensional. Nesse caso, determinamos a temperatura de bloqueio e as curvas de histerese do sistema em função da razão entre as magnitudes da interação dipolar e da anisotropia uniaxial. Mostramos que o comportamento de algumas propriedades como a remanência e a coercividade dependem fortemente da estrutura na qual as partículas estão distribuídas. Em particular, a estrutura cúbica de face centrada, apresenta os menores valores para essas propriedades quando a magnitude do acoplamento dipolar aumenta. Esses resultados estão de acordo com cálculos recentes baseados na dinâmica dos momentos magnéticos (teoria do micromagnetismo) e em medidas experimentais realizadas na nanopartícula magnetoferritin.

5 Perspectivas de Trabalhos Futuros

Baseado nos estudos realizados até este momento acerca dos efeitos das interações dipolares nas propriedades de sistemas magnéticos, podemos ainda considerar os seguintes problemas como uma continuidade natural dos estudos realizados nesta Tese:

1) No caso do sistema de partículas interagentes, com estrutura interna, é desejável aumentar o número dessas partículas e colocá-las em diferentes redes. Por exemplo, investigar essas interações numa rede hexagonal [102] e comparar com resultados numa rede quadrada. Também, só levamos em conta interações ferromagnéticas, embora não pareça ser complicado incluir interações antiferromagnéticas. Partículas com uma estrutura central oca também têm sido investigadas experimentalmente [103] onde a diferença entre o número de spins da camada mais externa e da interna leva a propriedades magnéticas não usuais.

2) Uma investigação que se faz necessária no caso das propriedades magnéticas de partículas com um único domínio é em relação às condições de contorno consideradas. Neste trabalho apenas condições livres foram utilizadas, porém, como as interações dipolares são de longo alcance, seria interessante testar o papel das condições periódicas de contorno. O mínimo observado nas curvas da coercividade em função do parâmetro de acoplamento dipolar pode ser um efeito artificial devido às condições de contorno empregadas. Misturas de nanopartículas com diferentes momentos magnéticos também pode ser um trabalho relevante, já que muitas nanopartículas são formadas por diferentes concentrações de íons magnéticos.

3) Muito embora no estudo das partículas de domínio único apenas o momento magnético total é levado em conta, estudos experimentais recentes [104] têm apontado para a importância da superfície dessas nanopartículas. Para explicar certas propriedades magnéticas admite-se que a superfície apresente uma desordem magnética, enquanto que o núcleo da partícula pode ser tratado como apresentando um momento magnético fixo. Nesse caso, podemos reunir os estudos que fizemos para nanopartículas de domínio único, com aqueles que levam em conta a estrutura interna de cada partícula. Para simplificar, poderíamos assumir uma estrutura interna apenas para as últimas

camadas de cada partícula.

Referências

- [1] R. C. O'Handley, *Modern Magnetic Materials: Principles and Applications* (Wiley and Sons, New York, 2000).
- [2] H. Kronmüller e M. Fähnle, *Micromagnetism and the Microstructure of Ferromagnetic Solids* (Cambridge University Press, Cambridge, 2003).
- [3] J. C. Maxwell, *A Treatise on electricity and magnetism* (Oxford Clarendon Press, England, 1873).
- [4] D. C. Jiles, *Acta Materialia* **51**, 5907 (2003).
- [5] J. Bohannon, *Science* **318**, 904 (2007).
- [6] C. Walcott, J. L. Gould e J. L. Kirschvink, *Science* **205**, 1027 (1979).
- [7] W. Wiltschko e R. Wiltschko, *Journal of Experimental Biology* **199**, 29 (1996).
- [8] P. Curie, *Propriétés magnétiques des corps à diverses températures (thèse - Faculté des sciences de Paris)* (Gauthier-Villars et fils, Paris, 1895), p. 119.
- [9] P. Langevin, *Ann. chim. et phys* **5**, 289 (1905).
- [10] P. Weiss, *Journal de Physique theorique et appliquee* **6**, 661 (1907).
- [11] L. Néel, *C. R. Acad. Sci. Paris* **203**, 304 (1936).
- [12] D. Jiles, *Introduction to magnetism and magnetic materials* (Chapman and Hall, USA, 1998).
- [13] F. Bloch, *Z. Phys.* **74**, 295 (1932).
- [14] V. S. Leite e Figueiredo W., *Rev. Bras. Ensino Fís.* **29**, 53 (2007).
- [15] M. N. Baibich et. al., *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2472 (1988).
- [16] S. S. P. Parkin, N. More e K. P. Roche, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2304 (1990).
- [17] J. W. P. Pratt et. al., *Phys. Rev. Lett.* **66**, 3060 (1991).
- [18] A. E. Berkowitz et. al., *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3745 (1992).

- [19] J. Q. Xiao, J. S. Jiang e C. L. Chien, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3749 (1992).
- [20] A. P. Guimarães, *Principles of Nanomagnetism* (Springer, Berlin Heidelberg, 2009).
- [21] A. Abanov, V. Kalatsky, V. L. Pokrovsky e W. M. Saslow, *Phys. Rev. B* **51**, 1023 (1995).
- [22] Y. Z. Wu *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 117205 (2004).
- [23] A. Vaterlaus *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 2247 (2000).
- [24] S. D. Bader, *Rev. Mod. Phys.* **78**, 1 (2006).
- [25] J. Pérez-Arantegui *et al.*, *J. Am. Ceram. Soc.* **84**, 442 (2001).
- [26] I. Borgia, *Appl. Surf. Sci.* **185**, 206 (2002).
- [27] S. Padovani *et al.*, *J. Appl. Phys.* **93**, 10058 (2003).
- [28] Q. A. Pankhurst, J. Connolly, S. K. Jones e J. Dobson, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **15**, R841 (2003).
- [29] M. E. Evans e F. Heller, *Environmental magnetism: principles and applications of enviromagnetics* (Academic Press, San Diego, 2003).
- [30] J. F. Bobo, L. Gabillet e M. Bibes, *J. Phys. Cond.: Matter* **85**, 5365 (1999).
- [31] J. K. A. Gschneidner e V. K. Pecharsky, *J. Appl. Phys.* **85**, 5365 (1999).
- [32] A. S. Edelstein e R. C. Cammarata, *Nanomaterials: Synthesis, Properties and Applications* (CRC Press, USA, 1998).
- [33] J. I. Martin *et al.*, *J. Magn. Magn. Mater.* **256**, 449 (2003).
- [34] G. C. Hadjipanayis e G. A. Prinz, *Science and Technology of Nanostructured Magnetic Materials* (Plenum Press, New York, 1991).
- [35] K. Kawasaki, in *Magnetic Properties of Fine Particles*, editado por J. L. Dormann e D. Fiorani (North-Holland Delta Series, Amsterdam, 1992).
- [36] M. A. Willard *et al.*, *Int. Mater. Rev.* **49**, 125 (2004).

- [37] D. P. Landau e K. Binder, *A guide to Monte Carlo simulations in statistical physics* (Cambridge University Press, USA, 2000).
- [38] L. Néel, *Ann. Geophys.* **5**, 99 (1949).
- [39] M. Prévot e D. Dunlop, *Phys. Earth Planet. Inter.* **126**, 3 (2001).
- [40] J. M. Vargas *et al.*, *Phys. Rev. B* **72**, 184428 (2005).
- [41] R. Skomski, *J. Phys.: Condens. Matter* **15**, R841 (2003).
- [42] D. Kechrakos, *arXiv.org, e-Print Arch., Condens. Matter* **1**, 1 (2009).
- [43] R. Skomski, *Europhys. Lett.* **48**, 455 (1999).
- [44] D. J. Dunlop, *Rep. Prog. Phys.* **53**, 707 (1990).
- [45] D. Craik, *Magnetism: Principles and Applications* (Wiley, New York, 1995).
- [46] A. Aharoni, *Introduction to the Theory of Ferromagnetism* (Oxford University Press, New York, 1996).
- [47] S. Shtrikman E. H. Frei e D. Treves, *Phys. Rev.* **106**, 446 (1949).
- [48] M. Bahiana *et. al.*, *Phys. Rev. B* **74**, 174412 (2006).
- [49] J. Snider e C. C. Yu, *Phys. Rev. B* **72**, 214203 (2005).
- [50] J. F. Fernández, *Phys. Rev. B* **78**, 064404 (2008).
- [51] J. M. Luttinger e L. Tisza, *Phys. Rev.* **70**, 954 (1946).
- [52] V. M. Rozenbaum, V. M. Ogenko e A. A. Chuiko, *Sov. Phys. Usp.* **34**, 883 (1991).
- [53] E. Rastelli, S. Regina e A. Tassi, *Phys. Rev. B* **66**, 054431 (2002).
- [54] P. Politi e M. G. Pini, *Phys. Rev. B* **66**, 214414 (2002).
- [55] P. Politi, M. G. Pini e R. L. Stamps, *Phys. Rev. B* **73**, 020405 (2006).
- [56] D. Kechrakos e K.N. Trohidou, *Phys. Rev. B* **58**, 12169 (1998).
- [57] V. Russier, *J. Appl. Phys.* **89**, 1287 (2001).

- [58] O. Iglesias e A. Labarta, Phys. Rev. B **70**, 144401 (2004).
- [59] W. Figueiredo e W. Schwarzacher, J. Phys. Condens. Matter **19**, 276203 (2007).
- [60] W. Figueiredo e W. Schwarzacher, Phys. Rev. B **77**, 104419 (2008).
- [61] I. Booth, A. B. MacIsaac, J. P. Whitehead e K. De’Bell, Phys. Rev. Lett. **75**, 950 (1995).
- [62] K. De’Bell, A. B. MacIsaac e J. P. Whitehead, Rev. Mod. Phys. **72**, 225 (2000).
- [63] A. Giuliani, J. L. Lebowitz e E. H. Lieb, Phys. Rev. B **74**, 064420 (2006).
- [64] S. A. Cannas, M. F. Michelon, D. A. Stariolo e F. A. Tamarit, Phys. Rev. E **78**, 051602 (2008).
- [65] V. S. Leite e W. Figueiredo, Physica A **350**, 379 (2005).
- [66] V. S. Leite, M. Godoy e W. Figueiredo, Phys. Rev. B **71**, 094427 (2005).
- [67] V. S. Leite, B. C. S. Grandi e W. Figueiredo, Phys. Rev. B: Condens. Matter **74**, 094408 (2006).
- [68] V. S. Leite e W. Figueiredo, Phys. Lett. A **372**, 898 (2008).
- [69] W. H. Press et. al., *Numerical recipes in Fortran 77: the art of scientific computing* (Cambridge University Press, USA, 1992).
- [70] N. Metropolis *et al.*, J. Chem. Phys. **21**, 1087 (1953).
- [71] D. P. Landau e K. Binder, *A Guide to Monte Carlo Simulations in Statistical Physics* (Cambridge University Press, UK, 2000).
- [72] M. E. J. Newman e G.T. Barkema, *Monte Carlo Methods in Statistical Physics* (Clarendon Press, Oxford, 1999).
- [73] V. S. Leite e W. Figueiredo, *Tese de Doutorado* (Curso de Pós-graduação em Física, UFSC, 2006).
- [74] V. S. Leite e W. Figueiredo, Braz. J. Phys. **36**, 652 (2006).

- [75] A. Weizenmann e W. Figueiredo, *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications* **389**, 5416 (2010).
- [76] W. Yu *et al.*, *Mater. Lett.* **60**, 2998 (2006).
- [77] E. C. Stoner e E. P. Wohlfarth, *Philos. Trans. R. Soc. London A* **240**, 599 (1948).
- [78] L. Néel, *Ann. Geophys.* **5**, 99 (1949).
- [79] W. F. Brown, *J. Appl. Phys.* **30**, S130 (1959).
- [80] M. A. Chuev e J. Hesse, *J. Phys. Condens. Matter* **19**, 506201 (2007).
- [81] C. Tannous e J. Gieraltowski, *Eur. J. Phys.* **29**, 475 (2008).
- [82] S. D. Bader, *Rev. Mod. Phys.* **78**, 1 (2006).
- [83] D. Laroze *et al.*, *Nanotechnol.* **18**, 415708 (2007).
- [84] S. Sun *et al.*, *Science* **287**, 1989 (2000).
- [85] Z. Z. Sun, A. Lopez e J. Schliemann, *Arxiv preprint arXiv:1005.1828* **1**, 4 (2010).
- [86] C. H. Back *et al.*, *Science* **285**, 864 (1999).
- [87] H. W. Schumacher *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 17204 (2003).
- [88] C. Thirion, W. Wernsdorfer e D. Mailly, *Nat. Mater.* **2**, 524 (2003).
- [89] Z. Z. Sun e X. R. Wang, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 77205 (2006).
- [90] M. L. Plumer, J. Lierop, B. W. Southern e J. P. Whitehead, *J. Phys. Condens. Matter* **22**, 296007 (2010).
- [91] R. Skomski, *Europhys. Lett.* **48**, 455 (1999).
- [92] D. Kechrakos, *ArXiv e-prints* **0907**, 1 (2009).
- [93] W. Luo, S. R. Nagel, T. F. Rosenbaum e R. E. Rosensweig, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 2721 (1991).
- [94] S. Mørup e E. Tronc, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 3278 (1994).

- [95] J. Ma, X. Ni, J. Huang e J. Li, *Journal of Nanoscience and Nanotechnology* **10**, 791 (2010).
- [96] J. M. Luttinger e L. Tisza, *Phys. Rev.* **70**, 954 (1946).
- [97] O. Kasyutich *et al.*, em *Nanoscale Phenomena and Structures*, editado por D. Kashchiev (Publishing House, Sofia, 2008).
- [98] R. D. Desautels, O. Kasyutich e J. van Lierop, *J. Appl. Phys.* **107**, 09B512 (2010).
- [99] Y. Liu, D. Shindō e D. J. Sellmyer, *Handbook of advanced magnetic materials* (Springer, Beijing, 2005), Vol. 1.
- [100] O. Kasyutich, A. Sarua e W. Schwarzacher, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **41**, 134022 (2008).
- [101] A. Weizenmann e W. Figueiredo, 11th International Conference on Advanced Materials **E575**, 1 (2009).
- [102] D.V. Talapin *et al.*, *Nano Lett* **7**, 1213 (2007).
- [103] E. L. Jr *et al.*, *Nanotechnology* **20**, 045606 (2009).
- [104] R. D. Desautels, O. Kasyutich e J. van Lierop, *J. Appl. Phys.* **107**, 09B512 (2010).