



UNIVERSIDADE FEDERAL DO CEARÁ
CENTRO DE CIÊNCIAS
DEPARTAMENTO DE FÍSICA
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA

DANILO DA SILVA BORGES

TRANSIÇÃO DE FASE MORFOLÓGICA NA INJEÇÃO DE FIOS
MAGNÉTICOS EM CAVIDADES

FORTALEZA - CE
2021

DANILO DA SILVA BORGES

TRANSIÇÃO DE FASE MORFOLÓGICA NA INJEÇÃO DE FIOS MAGNÉTICOS
EM CAVIDADES

Tese apresentada a Coordenação do Programa de Pós-Graduação em Física da Universidade Federal do Ceará, como parte dos requisitos para obtenção do título de Doutor em Física. Área de concentração: Física da Matéria Condensada.

Orientador: Prof. Dr. Ascânio Dias Araújo.

FORTALEZA - CE

2021

Dados Internacionais de Catalogação na Publicação
Universidade Federal do Ceará
Biblioteca Universitária
Gerada automaticamente pelo módulo Catalog, mediante os dados fornecidos pelo(a) autor(a)

- B731t Borges, Danilo da Silva.
Transição de Fase Morfológica na Injeção de Fios Magnéticos em Cavidades / Danilo da Silva Borges. –
2021.
109 f. : il. color.
- Tese (doutorado) – Universidade Federal do Ceará, Centro de Ciências, Programa de Pós-Graduação em
Física, Fortaleza, 2021.
Orientação: Prof. Dr. Ascânio Dias Araújo.
1. Transição de fase. 2. Dipolo Magnético. 3. Experimento. 4. Simulação. 5. Material Granular. I. Título.
CDD 530
-

DANILO DA SILVA BORGES

TRANSIÇÃO DE FASE MORFOLÓGICA NA INJEÇÃO DE FIOS MAGNÉTICOS
EM CAVIDADES

Tese apresentada a Coordenação do Programa de Pós-Graduação em Física da Universidade Federal do Ceará, como parte dos requisitos para obtenção do título de Doutor em Física. Área de concentração: Física da Matéria Condensada.

Orientador: Prof. Dr. Ascânio Dias Araújo.

Aprovada em: 01/09/2021.

BANCA EXAMINADORA

Prof. Dr. Ascânio Dias Araújo (Orientador)
Departamento de Física – UFC

Prof. Dr. José Soares de Andrade Jr.
Departamento de Física – UFC

Prof. Dr. Hans Jürgen Herrmann
Departamento de Física – UFC

Prof. Dr. Nuno Azevedo Machado de Araújo
Universidade de Lisboa, Faculdade de Ciências da Universidade de Lisboa.

Prof. Dr. Eric Josef Ribeiro Parteli
University of Duisburg-Essen Faculty of Physics.

*Aos meus pais,
aos meus irmãos
e aos meus amigos.*

AGRADECIMENTOS

- Primeiramente agradeço a Deus, por ter me mantido são fisicamente e mentalmente nessa longa jornada de doutoramento.
- Agradeço aos meus pais, Hidelberto e Luiza, por ter oferecido apoio emocional e financeiro.
- Agradeço ao professor Ascânio Dias Araújo pela orientação durante o período de doutoramento.
- Agradeço as minhas amigas Roberta e Palloma por ter me ajudado nas correções gramaticais e textuais da minha tese.
- Agradeço ao meu sogro, Paulo Roberto por ter me levado em segurança inúmeras vezes à UFC.
- Agradeço ao professor Carmona pela ajuda na parte computacional.
- Agradeço também ao professor Nildo Loiola e ao professor Marcos Antônio por terem permitido o uso do Laboratório de Instrumentação do Departamento de Física.
- Agradeço ao professor Wandemberg por permitir a minha estadia na sala do GTMC, onde pude trabalhar em um ambiente repleto de boas amizades, dando um conforto para inúmeras conversas produtivas e conseqüentemente me levando a novas perspectivas durante o programa de doutoramento.
- Aos funcionários do Departamento de Física e da Coordenação de Pós-Graduação, especialmente a Ana Lúcia Simplício Monteiro.
- O presente trabalho foi realizado com apoio da Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior - Brasil (CAPES) - Código de Financiamento 001.

“Se você conhece o inimigo e conhece a si mesmo, não precisa temer o resultado de cem batalhas.”

A Arte da Guerra de Sun Tzu

RESUMO

Esferas magnetizadas podem se atrair formando cadeias. Injetemos essas cadeias em uma célula Hele-Shaw com diferentes inclinações e descobrimos que elas formam espontaneamente padrões auto-semelhantes. Dependendo do ângulo de inclinação da célula, surgem duas situações completamente diferentes; acima do ângulo crítico, limite para o atrito estático, o padrão formado assemelha-se ao empilhamento de uma corda e abaixo desse ângulo crítico, o padrão formado assemelha-se a uma fortaleza vista de cima. Para essas estruturas, localmente, o primeiro padrão forma uma rede quadrada, enquanto o segundo padrão exibe uma simetria triangular. Para ambos os padrões, as distribuições de tamanho das áreas fechadas, definidos como laços, seguem leis de potência. Caracterizamos a transição morfológica entre os dois padrões por meio de experimentos e simulações computacionais e justificamos a mudança na orientação dos dipolos como uma disputa entre a flexão do fio induzida pelo atrito e os efeitos da gravidade durante o processo de injeção do fio no interior da cavidade.

Palavras-chave: transição de fase; dipolo magnético; experimento; simulação; material granular.

ABSTRACT

Magnetic beads attract each other, forming chains. We push such chains into an inclined Hele-Shaw cell and discover that they spontaneously form self-similar patterns. Depending on the angle of inclination of the cell, two completely different situations emerge; namely, above the static friction angle the patterns resemble the stacking of a rope and below they look similar to a fortress from above. Moreover, locally the first pattern forms a square lattice, while the second pattern exhibits triangular symmetry. For both patterns, the size distributions of enclosed areas follow power laws. We characterize the morphological transition between the two patterns experimentally and numerically and explain the change in polarization as a competition between friction-induced buckling and gravity.

Keywords: phase transition; magnetic dipole; experiment; simulation; granular matter.

LISTA DE FIGURAS

- 2.1 Três possíveis comportamentos da matéria granular. Em (a), o castelo de areia apresenta uma estrutura rígida, deixando o agregado em um aspecto sólido. Em (b), a soja flui continuamente como um líquido, do silo para o contêiner. Em (c), uma tempestade de areia. A mistura de ar com a areia deixa o material granular com um aspecto semelhante a um composto gasoso.24
- 2.2 Analisando a estrutura interna de meio granular Qicheng Sun *et.al* [32] propõe que tal sistema é intrinsecamente multiescala, *i.e.* a micro, meso e macro escala estão correlacionados. De (a) a (c) mostra três escalas da matéria granular, micro, meso e macro [32, 19]. De (d) a (f) explica como as três escalas se comunicam. Na microescala, atuam as forças entre os constituintes, que, por sua vez, constroem a rede de contato, como mostrado em (a). Essas cadeias de contato formam um esqueleto granular no qual as forças podem ser transmitidas via interação de contato partícula-partícula. Essas estruturas são chamadas cadeias de forças, como mostrado em (b). Em (c), quando o meio granular é posto sob algum processo no qual o material está em movimento, essas cadeias evoluem e interagem entre si. As interações entre os constituintes da escala microscópica somadas às interações entre as cadeias de força da escala mesoscópica regem as propriedades mecânicas macroscópicas. Como por exemplo, a estabilidade, a elasticidade, a fluidez e a relação entre a tensão e o cisalhamento, importante para a descrição das equações constitutivas usadas na abordagem *Lagrangeana* [35]. 26

2.3	Empacotamento do <i>DNA</i> de um vírus bacteriófago. Em a [70], um esquema mostrando como o bacteriófago injeta o seu material genético dentro de uma bactéria. Estudos sobre empacotamento de <i>DNA</i> por simulações exigem pelo menos 3 milhões de nucleotídeos, contudo, é possível fazer uma redução do nível dos detalhes da cadeia a fim de reduzir o número de interações a serem calculadas. Tal técnica é chamada <i>Coarse-graining</i> [73, 71]. Em b mostra a redução do nível dos detalhes de uma cadeia de <i>DNA</i> . Longas cadeias como o <i>DNA</i> são frequentemente modeladas como polímeros, ou seja, uma macro-molécula linear composta por N monômeros conectadas por $N - 1$ ligações. Essas ligações representam algum potencial ou vínculo geométrico. Em c , as ligações são representadas por potenciais harmônicos e os monômeros como esferas duras, fazendo o uso do potencial de <i>Lennard-Jones</i> . Além das interações de curto alcance, também são implementados potenciais de longo alcance como <i>coulombiana</i> [71] ou <i>dipolar</i> [93]	29
2.4	Frustração geométrica [116]. Em (a), primeiros vizinhos tendem a se alinhar em uma configuração antiferromagnética. Essa configuração é completamente satisfeita para uma rede quadrada. Entretanto, para uma rede triangular, não é possível alinhar todos os spins em uma configuração antiferromagnética. Dessa maneira, dizemos que o sistema é frustrado. A consequência imediata da frustração é que o sistema passa a ter um estado fundamental degenerado. Em (b), barras quando submetidas a uma deformação tendem a preservar os ângulos nas junções para minimizar a energia de deformação. Quando as barras estão dispostas como um quadrado, a minimização da energia é realizada simultaneamente em todas elas, contudo, não é possível para o caso triangular.	31
2.5	Estados possíveis de mínimos de energia em uma célula triangular usando o modelo de Ising com spins acoplados antiferromagneticamente [123]. Em vermelho mostra o par de interação frustrado.	32
2.6	Frustração geométrica em empacotamento. Em (a), sistema não frustrado com um único estado fundamental. Em (b) sistema frustrado duplamente degenerado. É impossível cobrir perfeitamente uma rede pentagonal de lado l com discos de raio $l/2$ colocando os centros dos círculos nos vértices dessa rede.	34

2.7	Frustração friccional durante o contato de discos [132]. Em (a) e (b), mostra discos idênticos em contato, livres somente para girar em torno de seus respectivos centros e interagindo apenas por atrito. Tanto em (a) como em (b), se mantermos a velocidade angular da esfera 1 constante, $\omega_1 = \omega$, observaremos dois resultados bastante diferente. Em (a), o sistema consegue girar sem deslizar, pois com $\omega_1 = \omega$ teremos $\omega_2 = -\omega$, $\omega_3 = \omega$ e $\omega_4 = -\omega$. Em (b), a esfera 1 induz uma rotação no sentido horário em 2, a esfera 2 induz uma rotação no sentido anti-horário na esfera 3 e por fim, a esfera 1 induz uma rotação no sentido horário na esfera 3. Tal arranjo triangular não deixa a esfera 3 girar sem deslizar simultaneamente com as demais esferas em contato, deixando o sistema frustrado. A situação em (c) e (d) é similar a (b), pois durante a colisão temos o contato mutuo entre três corpos com atrito. Nesse contexto, a <i>frustração colisional</i> ocorre devido a impossibilidade de manter contatos não deslizantes entre os discos em colisão e superfície.	35
2.8	Diagrama de fases para a água. Em (a), três fases são determinadas e separadas por curvas bem definidas. As figuras (b) e (c) ilustram como a densidade pode servir de parâmetro de ordem, deixando evidente a distinção entre as fases. Reproduzido de [140].	38
2.9	Transição em um sistema de <i>spin</i> . Foi usado um Modelo 2D de Ising, em uma rede quadrada 100×100 . Foram utilizadas duas condições iniciais, uma em que a maioria dos spins aponta para cima (triângulo preenchido) e outra em que a maioria dos <i>spins</i> aponta para baixo (triângulo aberto). Uma transição ocorre em $T_c = 2.27$, ponto em que, independente da temperatura, a magnetização se torna nula. Reproduzido de [140].	39
2.10	Padrões em materiais granulares sujeitos à vibração vertical [162]. Os padrões foram obtidos variando dois parâmetros de controle, quais sejam, a frequência de oscilação f e a amplitude de oscilação Γ . Padrões de ondas estacionárias: (a) quadrados, (b) listras, (c) e (d) fases alternadas de hexágonos, (e) camada plana, (f) quadrados, (g) listras e (h) hexágonos.	43
2.11	<i>Jamming</i> em silo [183]. A imagem mostra o escoamento de discos em um silo. Os discos fluem como um líquido em um funil, mas em um determinado momento, alguns deles formam um arco (discos coloridos), que sustentam todo o peso do sistema, e que, eventualmente, congestionam o fluxo, o que é mostrado no <i>inset</i> . O estado <i>jamming</i> ocorre inclusive no caso sem atrito entre disco-disco e disco-cavidade.	45

- 2.12 Ilustração mostrando as três categorias do *jamming*. Em **a**, discos confinados em uma caixa retangular rígida, organizada em um padrão de empacotamento hexagonal, está em um estado de *jamming* local. Contudo, não está em um estado de *jamming* coletivo, pois a rotação de uma subestrutura hexagonal em torno de seu centro de massa tira o sistema do estado *jamming* (com exceção de ângulos múltiplos de 60°). Em **b**, um empacotamento de discos em uma rede quadrada dentro de uma caixa quadrada rígida se qualifica em um estado de *jamming* coletivo. Em **c**, para a rede quadrada, as únicas deformações simétricas não expansivas permitidas vem através de cisalhamentos orientadas ao longo de linhas horizontais, todas as deformações de cisalhamento com outras orientações são resistidas. 46
- 3.1 Distorção em uma imagem. Um design não simétrico das lentes e uma abertura antes ou atrás do centro óptico da lente levam a distorções na imagem. Em **a**, se o *stop* de abertura estiver na frente da lente e o conjunto abertura-lente não estiver perfeitamente alinhado, teremos uma distorção de barril na imagem. Em **b**, uma sobreposição de duas malhas de pontos, uma real e a outra alterada, deixa evidente a distorção causada pela lente. .. 49
- 3.2 Malha quadrada usada para medir a distorção da lente. A câmera usada nesse trabalho possui uma resolução de $4160 \times 3120 \text{ pixel}$, distância focal de $f = 28 \text{ mm}$, com uma abertura igual a $f/1.9$, posicionada a uma distância de 27 cm do objeto, gerando uma distorção do tipo barril nas imagens. Em **a** usamos uma linha verde como guia para mostrar a distorção, que, como pode ser vista, é bem pequena. Usando a Eq. 3.1 podemos quantificar a distorção, a qual na imagem em questão tem o valor de $D_I = 0.025$ 50
- 3.3 Transformação Hough Circular (THC). Em (a), um objeto circular com um raio $r = 48 \text{ pixel}$. Somente com essa informação podemos iniciar o algoritmo. Em (b), foi usado o algoritmo Canny [204] para detectar a borda, mostrada em branco. Em (c) o algoritmo THC desenha círculos, mostrados na cor azul, os quais têm raio $r = 48$. Em seguida, o algoritmo localiza e contabiliza os centros dos círculos no espaço dos parâmetros (a, b, r) . O pico localiza as coordenadas do centro. 53
- 3.4 Em (a) vista superior das esferas com $r = 5 \text{ mm} = 15 \text{ pixels}$. Foi usado o mesmo protocolo experimental da Fig. 3.2. O algoritmo THC não é usado em toda a imagem, apenas na região de interesse (RDI). Na imagem a RDI compreende a região dentro do círculo laranja. Em (b) é mostrado, em círculos azuis, como 762 esferas foram detectadas. Foi usada a função `imfindcircles()` do *MATLAB* [206]. Dados os ajustes nos parâmetros e atribuindo os devidos cuidados na preparação das imagens, é possível obter um resultado satisfatório. 54

- 4.1 Três condições de contorno usados em DM. As setas nos centros dos discos representam a sua orientação. Em **a**, condição de contorno periódica. Partículas que experimentam sair pelo lado direito da caixa de simulação emergem pelo lado esquerdo, e vice-versa, valendo o mesmo para a base e o topo da caixa. Essa estratégia de confinamento é análoga a uma coleção infinita de sistemas idênticos. Esses sistemas infinitos estão representados por uma cor mais transparente em volta do sistema em estudo. Em **b**, uma partícula ao tentar atravessar a base da caixa de simulação, sente uma força normal ao plano e que aponta para dentro da cavidade. A linha pontilhada mostra a trajetória paralela ao vetor velocidade (seta vermelha), antes e depois da colisão. Para colisões inelásticas, utiliza-se uma força de amortecimento, usualmente proporcional à velocidade [213]. Em **c**, é mostrado que o confinamento passa a ser feito por linhas de discos com posições fixas. Nessa situação, dizemos que o confinamento é feito de forma explícita [214]. . 57
- 4.2 Esquema mostrando três perspectivas da interação de contato entre duas esferas de raio r . Em **a**, duas esferas com velocidades angulares ω_1 e ω_2 com seus centros de massa se movendo a velocidades \mathbf{v}_1 e \mathbf{v}_2 . No meio e em transparência, temos o plano de colisão que é usado como referência para a decomposição das forças e dos momentos. A normal do plano é paralela ao eixo que liga os centros das esferas. Em **b**, é mostrada a área circular entre duas esferas formada pela deformação elástica devido à aplicação de uma força. A relação entre força e área deformada é dada pela Eq. (4.1) e pela Eq. (4.2), respectivamente. Em **c**, é mostrada a projeção das esferas no plano. Em DM a deformação das esferas é parametrizada por um comprimento de penetração δ . Quando a distância entre os centros é menor do que a soma dos raios, aplica-se uma força de repulsão do tipo $F \propto k\delta^\alpha$. Nessa força, $\delta = 2r - (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2) \cdot \hat{\mathbf{n}}$, k é uma constante que representa a dureza do material e α é um expoente que controla a resposta entre comprimento e força. Para $\alpha = 1$, temos o modelo linear e, para $\alpha = 3/2$, temos o modelo de Hertz. Nessa tese, iremos usar o modelo linear, pois ele tem a vantagem de ter solução analítica e de ter um tempo de escala intrínseco. 59
- 4.3 Coeficiente de restituição normal pela velocidade de pré-colisão [219]. (○) Modelo linear com amortecimento linear. (□) Modelo de Hertz com amortecimento linear. (◇) Modelo de Hertz-Kuwabara-Kono. (△) Modelo de Walton-Braun. 61
- 4.4 Modelo de atrito descrito pela Eq. 4.8. A força de atrito \mathbf{F}_t tem a mesma direção da velocidade tangencial relativa \mathbf{v}_{12}^t , mas sentido contrário. Para baixas velocidades \mathbf{v}_{12}^t , passa a atuar na Eq. 4.8, a força viscosa $\gamma_s|\mathbf{v}_{12}^t|$. Com esse modelo é possível fazer uma esfera rolar sem deslizar em um plano com atrito. 61

4.5	Estados fundamentais para esferas rígidas magnetizadas no plano. Em (a), a energia reduzida u_N pelo número de esferas N [226]. A orientação dos dipolos está destacada por setas vermelhas. A linha pontilhada corresponde à energia de uma cadeia circular. As configurações foram encontradas usando o método Monte Carlo. Em (b) e em (c), no limite termodinâmico com $T = 0$, quando os <i>spins</i> estão localizadas no plano e organizados em uma rede quadrada há apenas dois estados fundamentais, ambos com a mesma energia, com fase antiferromagnética e com um sistema continuamente degenerado [228, 229]. A configuração em (c) é obtida a partir de (b), pela rotação da subrede A (em vermelho) por $\theta = \pi/6$, e da subrede B (em azul), por $\theta = -\pi/6$	67
4.6	A estrutura hexagonal minimiza a energia de um conjunto de esferas magnetizadas para dipolos paralelos ao plano [226]. Essas estruturas hexagonais perfeitas possuem p esferas na camada mais externa. Para o presente caso, $p = 8$. Estruturas hexagonais sem buraco central possuem $N_{hexa} = 3p^2 - 3p + 1$ esferas, mas estruturas hexagonais com buraco possuem $N_{hexa} = 3p^2 - 3p$ esferas. No limite em que $p \rightarrow \infty$ a energia reduzida tende a $u_{plano} = -2.759$ [227].	68
5.1	Configuração esquemática para o experimento realizado. A cadeia de esferas magnéticas são empurradas de baixo para cima, em uma célula de Hele-Shaw inclinada em θ graus. A célula de Hele-Shaw é formada por meio de um cavidade cilíndrica de raio R coberta por meio de uma placa de acrílico transparente.	70
5.2	Padrões obtidos depois que nenhuma esfera pode ser injetada na células para (a), $R = 40d$ e $\theta = 0^\circ$; (b), $R = 40d$ e $\theta = 90^\circ$; (c), $R = 20d$ e $\theta = 0^\circ$. Em (d) duas cadeias são injetadas na célula diametralmente, conforme indicado pelas setas pretas, com $\theta = 0^\circ$. Para (a) e (c) observamos o padrão <i>poligonal</i> e para (b) e (d) o padrão <i>empilhado</i> . A área ampliada em (a) e (b) realça os dois padrões, o <i>poligonal</i> e o <i>empilhado</i> , respectivamente. A legenda de cores indica o número de primeiros vizinhos de cada esfera. Podemos observar, que no padrões poligonal, localmente, a maioria das partículas tem seis vizinhos, produzindo assim uma rede triangular, enquanto no padrões empilhado, quatro vizinhos mais próximos prevalecem, resultando em uma rede quadrada. Apenas em (a) a cadeia nunca atinge a parede da cavidade. Os pontos pretos em (a), (b) e (c) indica o ponto de injeção.	71
5.3	O padrão <i>poligonal</i> é formado por listras de cadeias paralelas com um arranjo localmente triangular. Essas listras criam espontaneamente quinas, formando ângulos de 120° , como mostrado em (a) e ampliado em (b).	71

- 5.4 As áreas delimitadas pelos laços dentro da cadeia de esferas magnéticas são mostradas em azul para dois experimentos de injeção, resultando em (a) o padrão *empilhado* e (c) o padrão *poligonal*. A área adimensionalizada $A_b^* = A_b/A_0$ é calculada das imagens em preto e branco, onde A_b é a área do buraco medida em pixels e $A_0 = \pi(d/2)^2$. A distribuição das áreas estão mostradas em (b) para o padrão *empilhado* e em (d) para o padrão *poligonal*, calculada sob uma média de 15 realizações experimentais em cada caso. As linhas sólidas azuis foram feitas pelo ajuste dos mínimos quadrados resultando na lei de potência, $P(A_b^*) \propto A_b^{*-\gamma}$, calculada para áreas maiores do que 10 pixels, com expoentes $\gamma = 2.31 \pm 0.03$ e 0.85 ± 0.03 , para (b) e (d), respectivamente. 73
- 5.5 Parâmetro de ordem ϕ_6 da transição de fase morfológica em função da inclinação θ para $R = 40d$ (círculos) e $R = 20d$ (estrela). ϕ_6 é definido como a fração média de partículas que possuem seis vizinhos. Observa-se claramente um salto abrupto perto do ponto crítico $\theta_c = 19.4^\circ$, sendo a assinatura de uma transição de fase de primeira ordem. O detalhe da figura mostra como as frações médias ϕ de esferas com n vizinhos muda drasticamente quando o ângulo vai de $\theta = 0^\circ$ para $\theta = 90^\circ$, ambos para $R = 40d$ 74
- 5.6 Número N de esferas no padrão em função do ângulo de inclinação θ da célula, para $R = 40d$ (círculos preenchidos) e $R = 20d$ (estrelas). A linha tracejada vertical verde em $\theta_c = 19.4^\circ$ corresponde ao coeficiente de atrito estático da base da célula. O coeficiente foi medido deixando três esferas, no formato de um triângulo, deslizar no plano da cavidade a fim de calcular o ângulo crítico que deixa as esferas na iminência de deslizar. A relação entre o ângulo crítico e o coeficiente de atrito estático é $\mu_e = \tan(\theta_c) \approx 0.35$. Acima de θ_c , o número de esferas N se torna independente de θ , mas depende do raio R . No detalhe da figura, mostramos padrões observados ao final das simulações para $\theta = 0^\circ$ sem (superior) e com (inferior) enfraquecimento das forças dipolares na entrada da cadeia. 74
- 5.7 (a) Padrões obtidos pela injeção de uma cadeia de esferas magnéticas, injetada diametralmente, com raios $R = 10d$, $R = 20d$, $R = 30d$ e $R = 40d$. Primeira linha: experimentos realizados para quatro diferentes raios de cavidade. Segunda linha: simulações usando o Modelo de Elemento Discreto (MED). Em (b), Rede de contato (grafo) de um padrão de esferas obtidas nos experimentos em uma cavidade de raio $R = 10d$. Os vértices representam os centros das esferas enquanto as arestas são desenhadas quando a distância entre duas esferas é menor ou igual ao diâmetro das esferas. Um laço está destacado em vermelho. 75

5.8	<p>Quatro diferentes imagens durante o processo de empacotamento. A cadeia de dipolos é injetada por baixo e na posição central da cavidade. Durante o processo de injeção nenhuma aresta (contato) é quebrada enquanto novos contatos são formados. Para esse caso de injeção, em particular, o padrão apresenta uma simetria local triangular. A formação de defeitos na estrutura cristalina é um efeito da frustração, pois a configuração inicial dos dipolos <i>head-to-tail</i> compete com a estrutura triangular. No presente caso, a frustração é responsável por quebrar a simetria global hexagonal do sistema. Sendo assim, estamos diante de uma estrutura geometricamente frustrada (EGF).</p>	77
5.9	<p>Configuração de menor energia magnética para uma rede triangular. Em (a), experimento injetando a cadeia por baixo da cavidade. Em (b), simulação usando MC para dipolos com posições fixas mas orientações livres com condição de contorno periódico na vertical e horizontal. Em ambos os casos, o norte magnético dos dipolos são identificados pelo hemisfério pintado em vermelho. Para uma melhor visualização no experimento, nós separamos o norte e o sul magnético por linhas verdes tracejadas em (c). Em (d), para uma melhor visualização, destacamos e ampliamos uma parte da Fig. 5.9 (b). Nós cercamos com uma linha verde tracejada parte do padrão obtido numericamente em (b), onde as orientações dos dipolos magnéticos apresentam considerável similaridade com o experimento, como mostrado em (c). Nessas regiões selecionadas, o padrão dos dipolos magnéticos corresponde a uma configuração de menor energia.</p>	78

LISTA DE TABELAS

- 2.1 Classificação de algumas redes ordenadas formadas pelo processo de empacotamento de esferas de mesmo raio em duas e três dimensões, onde Z denota o número de coordenação e ϕ é a fração de empacotamento para estruturas infinitas. Com condições de contorno apropriadas, a rede Kagomé está local, coletiva e estritamente no estado *jamming* [184]..... 47

LISTA DE ABREVIATURAS E SIGLAS

<i>0D</i>	Zero-dimensional
<i>1D</i>	Unidimensional
<i>2D</i>	Bidimensional
<i>3D</i>	Tridimensional
FCC	Face de Cubo Centrado
BCC	Cubo de Corpo Centrado
HCP	Hexagonal Close Packing
EGF	Estrutura Geometricamente Frustrada
DM	Dinâmica Molecular
MC	Monte Carlo

LISTA DE NOMENCLATURAS

ϕ	Fração de empacotamento
N	Número de partículas
N_c	Número de Contatos
N_l	Número de <i>loops</i>
E	Energia total de um sistema composto por dipolos magnéticos
E_0	Energia magnética entre dois dipolos alinhados paralelamente
θ°	Ângulo entre o plano confinante e o plano base

SUMÁRIO

1	INTRODUÇÃO	22
2	ASPECTOS TEÓRICOS	24
2.1	Material Granular	24
2.2	A Física do Empacotamento	28
2.3	Frustração	30
2.3.1	<i>Frustração em Sistemas de Spin</i>	31
2.3.2	<i>Frustração em Sistemas de Discos e Esferas</i>	33
2.4	Transição de Fase	37
2.4.1	<i>Transições no Equilíbrio Termodinâmico</i>	37
2.4.2	<i>Transições de Fase em Materiais Granulares</i>	42
3	ANÁLISE DE IMAGENS	48
3.1	Calibração da Imagem e Câmera	48
3.2	Método para Detectar Centro de Massa de Discos	52
4	MÉTODOS NUMÉRICOS	55
4.1	Dinâmica Molecular	55
4.1.1	<i>Um Algoritmo de Dinâmica Molecular</i>	55
4.1.2	<i>A Mecânica de Contato em Materiais Granulares</i>	58
4.1.3	<i>Runge Kutta 4^a Ordem (RK4)</i>	61
4.2	Monte Carlo	65
4.2.1	<i>Estruturas versus Energia</i>	66
5	RESULTADOS	69
6	CONCLUSÕES	79
	REFERÊNCIAS	81
	APÊNDICE - TRABALHOS PUBLICADOS	101

INTRODUÇÃO

Os materiais granulares estão presentes tanto na natureza quanto na indústria onde apresentam uma variedade de formas, tamanhos e propriedades mecânicas/químicas. Materiais granulares podem ser consideradas partículas rígidas e quando estudados em movimento podem ser tratados por meio de colisões inelásticas dissipando energia até cessarem o movimento. Devido ao tamanho não apresentam flutuações térmicas. Na condição de confinamento, formam estruturas variadas com diferentes topologias e quando submetidos a forças externas repondem na forma de um sistema complexo. Das inúmeras categorias de estruturas formadas por materiais granulares, podemos destacar as estruturas cristalinas. Dependendo do protocolo experimental e das interações envolvidas é possível encontrar nos materiais granulares, tanto estruturas ordenadas como estruturas amorfas [1].

Os materiais granulares podem ser agrupados em cadeias por meio de um vínculo físico, como ocorre por exemplo em uma corrente, ou por meio de uma interação magnética como em cadeias formadas por esferas magnéticas. Nesta condição particular, os materiais granulares apresentam propriedades comum aos fios, como flexibilidade e podem ser utilizados com a mesma finalidade. A injeção de fios metálicos e plásticos em cavidades rígidas são usados em processos de empacotamento de DNA em glóbulos e capsídeos virais [2, 3], bem como em tratamentos minimamente invasivos para aneurismas saculares [4]. Padrões fractais são observados no empacotamento de fios em cavidades com uma força de injeção que diverge para infinito como uma lei de potência [5, 6, 7, 8]. Modificando-se o atrito e a rigidez à flexão do fio, três diferentes padrões já foram observados e organizados em um diagrama de fase: uma fase espiral, uma fase de laços e uma fase caótica [9, 10]. Além de cavidades rígidas, cavidades deformáveis também já foram utilizadas em processos de empacotamento [11, 12].

Conforme descrito em trabalhos publicados anteriormente sobre o tema, a relevância do empacotamento de fios em cavidades é uma realidade com muitas aplicações. A natureza do fio é na maioria dos casos plástica e/ou metálica, cujas propriedades relacionadas com a deformação e empacotamento, dependem basicamente da torção, fricção e plasticidade. Neste cenário, as forças envolvidas são usualmente de curto alcance, ou seja, estão relacionados ao contato entre as partes. Quando um fio magnético formado por esferas magnetizadas é utilizado durante o empacotamento em cavidades, um novo aspecto entra em cena. As interações de longo alcance devido a natureza magnética do material. Essa interação pode ser de atração (polos opostos) ou repulsão (polos iguais). Com a inclusão

desta característica nas forças de interação entre as partes do fio, novos padrões devem emergir durante o empacotamento desses fios com propriedades magnéticas. Quando a condição de contorno do problema pode ser alterada de forma gradual, como por exemplo, as forças de atrito entre o fio e a superfície da cavidade, um ingrediente adicional passa a ser atuante no sistema.

Considerando todos esses ingredientes adicionais, apresentamos nesse trabalho um estudo sobre a injeção de fio em cavidades cilíndricas, porém, diferente dos trabalhos anteriores, este fio é formado por uma cadeia de esferas magnetizadas, incluindo interações repulsivas e atrativas entre as secções do fio magnético.

A cavidade será substituída por uma célula de Hele-Shaw. Analisaremos os padrões obtidos durante a injeção das esfera magnetizadas em função de parâmetros pertinentes ao sistema: fração de empacotamento dentro da célula, ângulo de inclinação da célula de Hele-Shaw relacionado com a intensidade do atrito, tamanho da cavidade e finalmente, o ângulo de injeção das eferas no interior da cavidade. Esta análise é conduzida por meio de experimentos e simulações. A coleta de dados experimentais foi realizada por meio da obtenção de imagens (filmes gravados), usando a técnica *hough transform*. As simulações complementam a análise das morfologias, trazendo informações adicionais acerca da orientação dos dipolos e sobre a quantidade de energia magnética armazenada nos padrões encontrados. Este último torna-se um parâmetro importante para explicar a forma dos padrões estabelecidos no interior da cavidade.

Esta tese é composta de cinco Capítulos organizados na seguinte forma.

O Capítulo 2 apresenta alguns conceitos pertinentes ao estudo de materiais granulares, exibindo as propriedades e os efeitos que são comuns e únicos a este estado da matéria. É citado exemplos do processo de empacotamento em sistemas físicos e biológicos, como também expõe a importância industrial e teórica de tal mecanismo. Definimos termos como frustração, transição de fase e auto-organização. Tais efeitos emergem espontaneamente nas morfologias encontradas durante o empacotamento dos fios magnéticos.

No Capítulo 3, descrevemos em detalhes como inferir as posições da esferas a partir de imagens. Ainda nesse contexto, será discutido a origem dos erros de medida, como a distorção da lente e a técnica *hough transform*.

No Capítulo 5, detalhamos o protocolo experimental adotado e analisamos os resultados obtidos tanto por meio experimental como através das simulações computacionais. Aqui, caracterizamos as morfologias obtidas experimentalmente e numericamente durante o processo de empacotamento do fio na cavidade. Apresentamos ainda, como as estruturas obtidas estão relacionadas com efeitos como a frustração, a auto-organização e a transição de fase estrutural. Por fim, no Capítulo 6, temos as conclusões dos resultados, encerrando o mesmo com possíveis sugestões para trabalhos futuros.

ASPECTOS TEÓRICOS

2.1 Material Granular

O contato e a existência dos materiais granulares sempre fez parte da experiência humana, seja brincando na praia com areia, ou fazendo o café com açúcar pela manhã antes de ir para o trabalho. Fora do ambiente urbano, tais materiais estão presentes em um conjunto de fenômenos tais como, avalanches nos alpes Suíços e o movimento de dunas em Jericoacoara. Na Fig. 2.1 é possível ver o material granular com três possíveis comportamentos: sólido, líquido e gasoso. O uso desses materiais na indústria é abundante, já que boa parte da matéria prima e dos insumos que são fornecidos, transportados e armazenados, estão na forma granular [13]. Outros processos de interesse industrial como a mistura homogênea de compostos granulares ou o fluxo regular de grãos em silos na forma de funil não são fáceis de obter, pois tais materiais tendem a segregar quando submetidos a vibração e tendem a cessar o escoamento em silos devido à obstrução (*Jamming*) na forma de tubo ou abóbada [14, 15, 16, 17]. Tendo em vista que tais processos são amplamente usados na indústria farmacêutica, química e agrícola, fica evidente a necessidade de compreendê-los e de ter o controle sobre esses efeitos físicos.



Figura 2.1: Três possíveis comportamentos da matéria granular. Em (a), o castelo de areia apresenta uma estrutura rígida, deixando o agregado em um aspecto sólido. Em (b), a soja flui continuamente como um líquido, do silo para o contêiner. Em (c), uma tempestade de areia. A mistura de ar com a areia deixa o material granular com um aspecto semelhante a um composto gasoso.

Devido ao seu tamanho macroscópico, tais sistemas são imunes às flutuações térmicas, sendo classificados como sistemas *atermais*¹. Conseqüentemente, um agregado granu-

¹Quando as flutuações térmicas não influenciam na dinâmica e na estática do sistema, o classificamos como atermal.

lar não atinge um *equilíbrio termodinâmico* e sim uma coleção de estados *metaestáveis* [18, 19]. Diferente de sistemas onde a temperatura é um parâmetro de controle que pode induzir transições de fase, em materiais granulares tais mudanças estruturais são dirigidas pela fração de empacotamento, campos externos ou estresses aplicados. As interações entre as partículas que constituem esses materiais podem ser de curto ou longo alcance. Colisão e fricção são exemplos de forças que quase sempre ocorrem naturalmente em materiais granulares. Como exemplos de forças de longo alcance, podemos citar forças elétricas e magnéticas, as quais podem surgir espontaneamente devido às ações tribológicas como a fricção e o desgaste entre superfícies [20, 21]. Além das interações partícula-partícula, estas também podem ser submetidas à vibração, ao cisalhamento ou estar imersas em campos externos ou em fluidos. Essas interações podem induzir efeitos coletivos além da segregação e *Jamming*, tais como transições entre estados sólido, líquido e gasoso [22, 23]. Materiais granulares exibem uma coleção de efeitos que não são encontrados em outros estados da matéria, assim podemos dizer que ela, sozinha, forma um estado distinto, o estado granular [22, 24].

Do ponto de vista teórico, uma única e completa descrição, fundamentada a partir de primeiros princípios, ainda permanece rudimentar e incompleta [22, 25, 26], à exemplo da mecânica estatística de Edward, que é uma abordagem teórica, mas somente válida para *ensembles* densos movendo-se lentamente [27]. Ainda não existe uma descrição hidrodinâmica ou macroscópica que explique de forma satisfatória todos os mecanismos e efeitos encontrados nesse estado da matéria (e.g., Navier-Stokes) [23]. Modelos para esses materiais são basicamente fenomenológicos e servem apenas para resolver problemas práticos de engenharia [28].

Essa dificuldade surge por vários motivos. O primeiro deles é que a dissipação de energia pelo atrito ou pelas colisões inelásticas, faz com que o sistema granular seja *não-Hamiltoniano* [29, 30], deixando inválido todos os postulados da mecânica estatística de equilíbrio. Para o caso da hipótese *ergótica*, dependendo do protocolo experimental, é possível obter um sistema granular *ergótico* ou *não-ergótico* [31]. O segundo motivo é que para esses materiais, a escala espacial da dinâmica das partículas não é separada da escala macroscópica, assim esses materiais são intrinsecamente de multiescala [32]. Ou seja, as interações entre as partículas (micro-escala) constroem cadeias de forças [33] (meso-escala), que por sua vez são controladas pelas propriedades das partículas e das condições de contorno (macro-escala). A evolução dessas cadeias de força controla as propriedades mecânicas desses materiais (macro-escala) [34], como explica a Fig. 2.2.

Além do estudo em seu próprio domínio, os materiais granulares são usados como modelo para estudar propriedades emergentes em sistemas dentro e fora do equilíbrio. Algumas ideias, originalmente desenvolvidas dentro do estudo da matéria granular, têm sido exportadas para explicar e modelar outras áreas da física da matéria condensada. Como exemplo, podemos citar o conceito de *Jamming*, dando uma nova visão sobre as transições de vidro [36, 37, 25] em agregados densos e amorfos, tais como coloides e po-

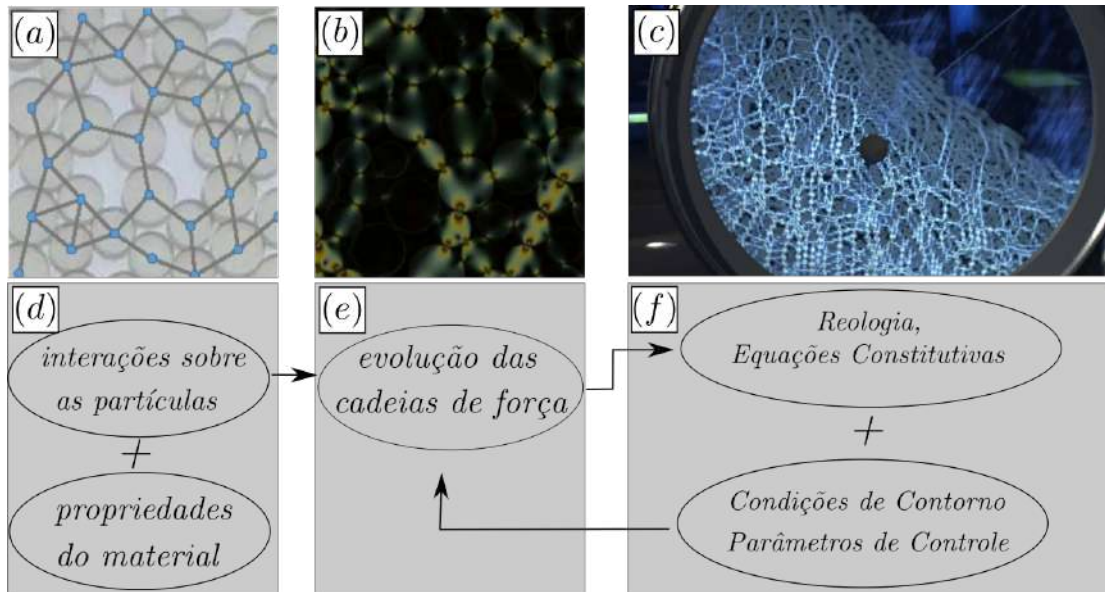


Figura 2.2: Analisando a estrutura interna de meio granular Qicheng Sun *et.al* [32] propõe que tal sistema é intrinsecamente multiescala, *i.e.* a micro, meso e macro escala estão correlacionados. De (a) a (c) mostra três escalas da matéria granular, micro, meso e macro [32, 19]. De (d) a (f) explica como as três escalas se comunicam. Na microescala, atuam as forças entre os constituintes, que, por sua vez, constroem a rede de contato, como mostrado em (a). Essas cadeias de contato formam um esqueleto granular no qual as forças podem ser transmitidas via interação de contato partícula-partícula. Essas estruturas são chamadas cadeias de forças, como mostrado em (b). Em (c), quando o meio granular é posto sob algum processo no qual o material está em movimento, essas cadeias evoluem e interagem entre si. As interações entre os constituintes da escala microscópica somadas às interações entre as cadeias de força da escala mesoscópica regem as propriedades mecânicas macroscópicas. Como por exemplo, a estabilidade, a elasticidade, a fluidez e a relação entre a tensão e o cisalhamento, importante para a descrição das equações constitutivas usadas na abordagem *Lagrangeana* [35].

límeros. Estatísticas de avalanche, estudadas inicialmente nesses materiais, são aplicadas em dinâmica de tráfego [38], em terremotos [39] e até no movimento do fluxo magnético em supercondutores [40, 41, 42, 43].

É abundante na literatura casos que mostram a equivalência entre materiais granulares e outros sistemas físicos. Essa equivalência nos permite, por exemplo, imitar processos físicos microscópicos ou macroscópicos. Longas cadeias moleculares, como polímeros, são usualmente modeladas como uma *cadeia granular* [44, 45], ou seja, uma sequência de esferas duras ligadas por vínculos geométricos ou por potenciais harmônicos. Tal modelo foi primeiramente apresentado por Ben-Naim *et.al* [46].

Mesmo com uma grande diferença intrínseca entre a dissipação inelástica em uma cadeia granular macroscópica e a colisão elástica que ocorre nas moléculas microscópicas dos polímeros, é possível mostrar que ambos os sistemas possuem as mesmas propriedades

estáticas e dinâmicas, propriedades estas previstas na teoria da física de polímero [47, 48].

Processos biológicos como empacotamento de *DNA* por vírus bacteriófagos também são modelados pelo uso de *cadeias granulares* [45]. Várias características no processo de empacotamento de *DNA*, como a translação unidirecional [49], estruturas ordenadas [50, 51] e a relação entre força e velocidade de empacotamento [52] são reproduzidas usando o modelo macroscópico de *cadeias granulares*. Nessa tese, iremos adotar o processo de empacotamento de uma cadeia granular de esferas magnetizadas em cavidades 2D. Tal processo será explicado na Sec. 2.2.

2.2 A Física do Empacotamento

Tarefas do nosso cotidiano, como organizar roupas dentro do guarda-roupa ou as compras do supermercado dentro do porta-malas do carro, são atividades nas quais se deseja poupar espaço. Apesar de sua aparente simplicidade, o processo de empacotamento é um campo de pesquisa interdisciplinar com princípios básicos ainda desconhecidos [53]. Johannes Kepler foi o primeiro a conjecturar, em 1611, e Hales a demonstrar matematicamente, em 2005, [54, 55], que a configuração mais densa para um conjunto infinito de esferas com mesmo raio tem um arranjo cúbico de face centrada (*FCC*), a qual maximiza a densidade, ou equivalentemente, minimiza o volume por esfera. Encontrar a melhor maneira de confinar objetos em cavidades finitas é um problema de interesse industrial e teórico.

Na indústria, o planejamento e design de redes de antenas de comunicação [56] e o corte de estoque [57, 58, 59] estão relacionados ao problema de encontrar a configuração mais densa possível dentro de uma geometria confinante. A encapsulação eficiente de ingredientes ativos como drogas, vitaminas, proteínas, bolhas de gás e até mesmo células vivas é uma técnica experimental que tem ganhado uma crescente atenção por sua aplicabilidade [60]. Dessa maneira, há uma necessidade no desenvolvimento de técnicas laboratoriais capazes de fornecer controle sobre o tamanho, a densidade, a permeabilidade e a elasticidade [61, 62] desses aglomerados. Tais técnicas experimentais são usadas para construir agregados de partículas, que por sua vez, servem como blocos de construção para estruturas mais complexas [63, 64] como por exemplo, unidades de armazenamento de informações [65] ou cápsulas de administração de medicamentos [61, 66].

Na biologia existe uma miríade de fenômenos relacionados ao empacotamento, das quais iremos citar algumas. A aglomeração macromolecular é um efeito importante, pois ela aumenta a força de interação entre as proteínas e o *DNA*, além de ser um fator que controla a difusão de proteínas [67, 68, 69]. Durante a replicação viral [70, 71, 72], o vírus infecta organismos injetando o seu *DNA* dentro das células ou bactérias, como mostra a Fig. 2.3. Outro exemplo interessante é o *DNA* humano, este tem cerca de 4 mil vezes o tamanho do diâmetro do núcleo celular [73]. A auto-organização espacial, devido ao confinamento do *DNA* dentro de um espaço tão pequeno, gera padrões, como a formação de laços. Como essas conformações são realizadas e como a estrutura empacotada está relacionada com as funções do *DNA* são questões que ainda não foram completamente respondidas [73, 74]. A formação de padrões biológicos [75] e a coagulação sanguínea [76] são outros exemplos onde as estruturas atingem uma configuração densa, *space-filling*, pela minimização de algum funcional da energia potencial.

Na física, o confinamento de corpos, com ou sem anisotropia, em cavidades com duas ou três dimensões, tem contribuído para uma compreensão mais ampla da relação entre a estrutura empacotada, a forma do constituinte confinado e a geometria confinante [77, 78, 79, 80, 81]. Contudo, o principal desafio de determinar o princípio de minimização que controla a forma e a densidade das estruturas empacotadas em espaços finitos ainda

é objeto de estudo [62].

Frustração [82, 83, 84, 85, 86], transições de fase [87], vínculos topológicos [88, 89], cristalização espontânea em cadeias unidimensionais de polímeros [82, 87, 90] são alguns exemplos de efeitos que emergem quando constituintes são confinados em cavidades finitas. Investigações usando o modelo de esferas rígidas sob empacotamento, *hard sphere model*, são instrumentos de pesquisa que forneceram informações básicas sobre a estrutura e as propriedades gerais dos estados da matéria condensada, como fases de baixa temperatura, processos fora do equilíbrio [91] e física de polímeros [92, 70, 71].

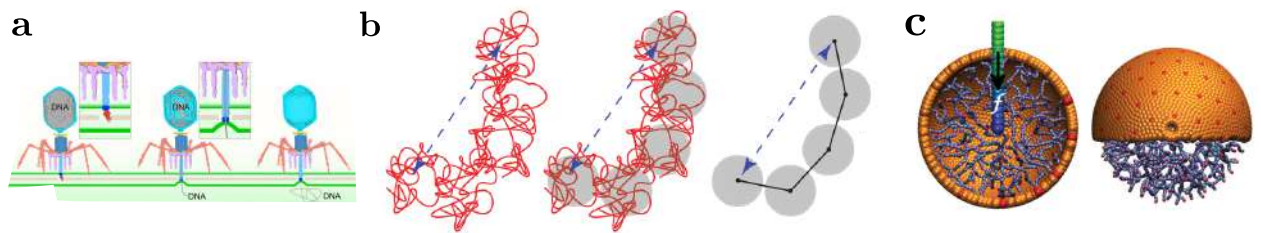


Figura 2.3: Empacotamento do *DNA* de um vírus bacteriófago. Em **a** [70], um esquema mostrando como o bacteriófago injeta o seu material genético dentro de uma bactéria. Estudos sobre empacotamento de *DNA* por simulações exigem pelo menos 3 milhões de nucleotídeos, contudo, é possível fazer uma redução do nível dos detalhes da cadeia a fim de reduzir o número de interações a serem calculadas. Tal técnica é chamada *Coarse-graining* [73, 71]. Em **b** mostra a redução do nível dos detalhes de uma cadeia de *DNA*. Longas cadeias como o *DNA* são frequentemente modeladas como polímeros, ou seja, uma macro-molécula linear composta por N monômeros conectadas por $N - 1$ ligações. Essas ligações representam algum potencial ou vínculo geométrico. Em **c**, as ligações são representadas por potenciais harmônicos e os monômeros como esferas duras, fazendo o uso do potencial de *Lennard-Jones*. Além das interações de curto alcance, também são implementados potenciais de longo alcance como *coulombiana* [71] ou *dipolar* [93]

Polímeros são longas moléculas constituídas de monômeros, conectadas por ligações covalentes [94, 95, 96, 97]. O processo de *nanoconfinamento* de polímeros em geometrias finitas geram morfologias complexas, incluindo fases ordenadas [98], como padrões em laços, helicoidais, toroidais e espirais [99]. Essas morfologias são estudadas tanto pela abordagem teórica da mecânica estatística, fazendo o uso do *ensemble grande canônico*, como pela abordagem computacional, fazendo o uso de aproximações como *coarse-grained* [73] ou o uso do *self-avoiding random walk*. Para alguns processos que envolvem correlação de longo alcance, como o movimento coerente, a modelagem que utiliza a interação dipolar representa uma boa aproximação [93] para explicar esse efeito, o qual é observado experimentalmente. Tal interação será o ingrediente principal desse trabalho.

2.3 Frustração

A frustração se refere à situação na qual somos incapazes de obter algo que desejamos, apesar dos esforços para consegui-lo. Ou, ainda, por não conseguir concretizar as nossas expectativas em relação a determinada pessoa ou a alguma situação. De uma forma geral, a frustração é parte natural de toda tentativa para solucionar problemas, seja um problema que envolve relações humanas ou questões relativas à física. No campo de estudo da física da matéria condensada, a palavra frustração foi usada pela primeira vez em 1977 por Toulouse [100], a fim de explicar um novo efeito físico. Esse efeito tem gerado bastante interesse tanto do ponto de vista teórico quanto do tecnológico.

Dependendo do sistema físico, a frustração possui diferentes definições, mas que compartilham de uma qualidade em comum: a impossibilidade de constituintes de um sistema realizarem algo esperado. Quando essa impossibilidade possui um aspecto geométrico, dizemos que o sistema é geometricamente frustrado.

Para Schiffer e Ramirez [101, 102], a frustração é a incapacidade de um sistema em minimizar simultaneamente a energia de interação entre os seus constituintes. A exemplo, considere o modelo antiferromagnético de Ising ². A Fig. 2.4(a) exibe uma célula de uma rede quadrada e uma célula de uma rede triangular. Para essa última, é dita frustrada. Quando a interação alcança segundos vizinhos, a rede quadrada passa a ser frustrada [103].

Para Sadoc e Mosseri a frustração geométrica existe quando uma ordem local não pode ser propagada livremente pelo espaço, o que leva a descrever a estrutura frustrada como uma mistura de regiões ordenadas com defeitos entre elas [104]. A exemplo temos os sistemas que são representados por *soft-sphere models*, como cristalização de polímeros ou a formação do estado de vidro.

O efeito da frustração ocorre em várias escalas da natureza, na escala microscópica - nas ligas metálicas [105] -, na escala mesoscópica - nas proteínas [106] -, na escala macroscópica - nas esferas magnetizadas [107] - e até nas estruturas astronômicas - nas erupções solares [108].

Na presente tese, iremos investigar o processo de empacotamento, cujo os constituintes são esferas magnetizadas (dipolos) e estão na escala macroscópica, ou seja, a agitação térmica é desprezível. Devido natureza anisotrópica e de longo alcance da interação dipolar o sistema é naturalmente frustrado. A consequência imediata da frustração será a formação de estruturas auto-similares. Esse resultado será abordado em momentos posteriores deste trabalho.

²O modelo de Ising é uma abordagem capaz de descrever sistemas, que podem ser representados por elementos individuais dispostos em uma rede com estados discretos.

2.3.1 Frustração em Sistemas de Spin

A frustração geométrica leva a estados exóticos da matéria, como vidro de spin [109], gelo de spin [110], líquido de spin [111], quantização fracionária da carga elétrica [112], fracionalização do dipolo em monopolo magnético no sistema de gelo de spin [113], além de dirigir processos como enovelamento, catálise e transição alostérica em proteínas [106].

Sistemas frustrados possuem uma superfície de energia altamente degenerada, além de exibirem fenômenos críticos [114, 115].

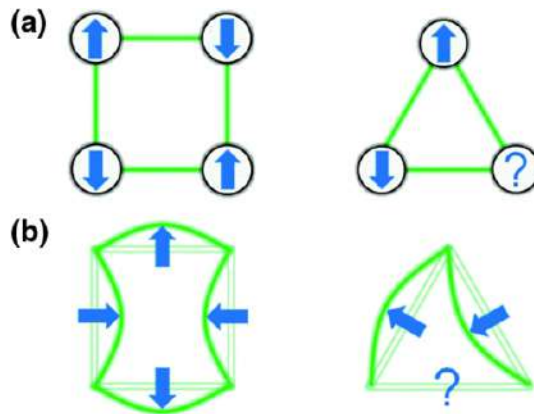


Figura 2.4: Frustração geométrica [116]. Em (a), primeiros vizinhos tendem a se alinhar em uma configuração antiferromagnética. Essa configuração é completamente satisfeita para uma rede quadrada. Entretanto, para uma rede triangular, não é possível alinhar todos os spins em uma configuração antiferromagnética. Dessa maneira, dizemos que o sistema é frustrado. A consequência imediata da frustração é que o sistema passa a ter um estado fundamental degenerado. Em (b), barras quando submetidas a uma deformação tendem a preservar os ângulos nas junções para minimizar a energia de deformação. Quando as barras estão dispostas como um quadrado, a minimização da energia é realizada simultaneamente em todas elas, contudo, não é possível para o caso triangular.

O gelo da água é um exemplo de como a multiplicidade de estados fundamentais, devido à frustração em sistemas interagentes, pode levar a vários graus de liberdade efetivos em baixas temperaturas, o que a leva a entropia residual. No entanto, a relação quantitativa entre a frustração e as propriedades térmicas ainda é um problema em aberto [117].

Muito interesse tem sido despertado na formação de padrões mesoscópicos e microscópicos em sistemas físicos, químicos e biológicos frustrados. Esses padrões surgem pela competição de interações de curto e de longo alcance, levando o sistema à frustração. Tais sistemas exibem uma coleção de fases ordenadas, possuindo uma organização espacial complexa, como estados em espirais [118], defeitos topológicos [119] e curvaturas [120].

Em sistemas de spin, morfologias como listras, labirintos, cadeias lineares e padrões circulares são encontrados em sistemas frustrados. Essas morfologias são vistas em su-

percondutores do tipo I, em filmes de Langmuir e em filmes ultrafinos magnéticos [121]. Assim, a frustração pode levar a estados desordenados, como vidro de spin ou estados ordenados, como listras.

Pequenas modificações em uma rede cristalina ou na orientação da superfície do substrato levam a diminutas mudanças na interação entre os átomos que constroem a rede e, conseqüentemente, surgem efeitos como a frustração, mudando drasticamente as propriedades do sistema. A exemplo do filme de ferro BCC que é ferromagnético sobre substratos de tungstênio na configuração $W(110)$, mas o mesmo filme ferro BCC é antiferromagnético sobre substrato de tungstênio na configuração $W(001)$ [122].

O fenômeno da frustração é importante em nanossistemas. O armazenamento de dados moderno usa a codificação de informações em redes de *spin*, assim, há uma necessidade de entender, a partir de primeiros princípios, como frustração, ordem, desordem e degenerescência de estados estão relacionados. Outro aspecto importante da tecnologia moderna é a produção de fios e de fitas que são constituídos de nanopartículas. Se esses fios ou fitas são empacotados em um meio ou substrato, levando a uma configuração relativamente densa, as partículas irão interagir magnetostaticamente ou eletrostaticamente. Essas interações de longo alcance são naturalmente frustradas e, portanto, podem influenciar na auto-organização de todo o conjunto.

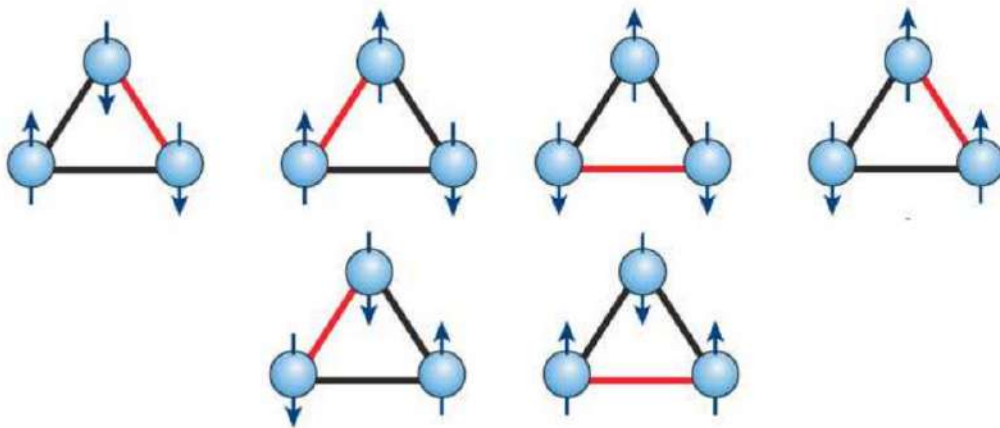


Figura 2.5: Estados possíveis de mínimos de energia em uma célula triangular usando o modelo de Ising com spins acoplados antiferromagneticamente [123]. Em vermelho mostra o par de interação frustrado.

Muito tem se falado acerca da frustração de forma qualitativa, assim, naturalmente surge uma pergunta: É possível medir frustração? A primeira caracterização quantitativa da frustração geométrica foi introduzida por Toulouse [100]. Toulouse definiu a função $\Phi = \prod_c J_{ij}$, a qual mede o efeito da frustração em uma região da rede em que c indica qualquer caminho fechado ao longo das arestas da rede com interações $J_{ij} = 1$ ou $J_{ij} = -1$. Se $\Phi = 1$, é possível orientar os spins sem frustração, se $\Phi = -1$, o sistema terá frustração (caso do modelo de Ising). Infelizmente, essa função não pode ser simplesmente generalizada para outros modelos.

Outros autores [124, 125] definiram quantitativamente a frustração ao analisar o acréscimo de energia local devido à frustração. Com o intuito de clarificar a ideia de medir frustração pelo acréscimo de energia, vamos analisar o sistema de três spins de Ising em uma célula triangular com interação de primeiros vizinhos antiferromagnética. Se pretendemos obter um mínimo de energia para essa configuração, pressupomos que cada spin tenha uma energia mínima $E_{id} = \sum_{ij} J_{ij} S_i S_j = (+1)(+1)(-1) + (+1)(+1)(-1) = -2$. Contudo, devido à frustração, apenas um dos três pode possuir uma energia $E_{id} = -2$. Os outros dois spins terão energia $E_i = (+1)(+1)(-1) + (+1)(+1)(+1) = 0$. Consequentemente, os dois spins com energia maior são frustrados, enquanto que o spin com a menor energia não o é. Tendo isso em mente, uma medida local de frustração pode ser introduzida:

$$f_i = \frac{|E_{id}| - |E_i|}{E_{id}} \quad (2.1)$$

a qual caracteriza o aumento de energia com respeito ao sistema não frustrado. No caso triangular do modelo de Ising, com spins nos estados $S_1 = +1$, $S_2 = +1$ e $S_3 = -1$, a frustração local de cada spin será $f_1 = 1$, $f_2 = 1$ e $f_3 = 0$. Dessa maneira, a frustração do sistema terá o valor médio $\langle f_i \rangle = 2/3$. A vantagem de usar o parâmetro $\langle f_i \rangle$ é que ele pode ser aplicado para diferentes modelos e para qualquer tipo de rede [126].

2.3.2 Frustração em Sistemas de Discos e Esferas

Até agora falamos de frustração no contexto de sistemas com spin. Todavia, no contexto das transições de vidro em líquidos e polímeros, a frustração é definida de outra forma. A definição de uma transição de vidro é usualmente especificada como uma passagem de uma fase líquida para uma sólida amorfa. Um modelo bastante popular para descrever essas transições é o modelo de empacotamento de discos ou esferas duras [127, 128].

O modelo de esfera dura é popular por captar bem as principais características dinâmicas e estáticas em sistemas como vidros metálicos, materiais granulares e suspensões coloidais [129]. Materiais granulares sob vibração exibem uma dinâmica lenta que se assemelha à dos sistemas térmicos de vidro [130].

O problema de empacotamento de discos ou de esferas pode ser mapeado no problema de preencher o espaço *Euclidiano* com polígonos, para o caso 2D, como mostra a Fig. 2.6 ou com poliedros, para o caso 3D. Em 2D, o empacotamento mais eficiente para discos de mesmo raio é o padrão triangular, exibido na Fig. 2.6.(a). Se para cada par de contato no padrão triangular atribuirmos uma energia E_0 , essa configuração terá o único estado de menor energia.

Um exemplo de interação que poderia levar a um determinado sistema de discos ou esferas rígidas é a interação isotrópica de *Lennard-Jones*. A Fig. 2.6.(a). mostra 10 esferas em uma rede triangular. Nessa situação, se quiséssemos encontrar a configuração de menor

energia, pela adição de mais um disco, bastaria colocá-lo em contato com qualquer par de discos que se encontram no entorno da estrutura, formando mais um triângulo. Assim, a configuração de mínima energia é a triangular e ela pode se propagar pelo espaço sem apresentar nenhum defeito ou buraco. De outra forma, é possível cobrir perfeitamente o plano *Euclidiano* com triângulos isósceles.

Nessa linha de raciocínio, é impossível cobrir o plano com pentágonos sem nenhum defeito, como mostra a Fig. 2.6.(b). Se por alguma anisotropia da interação entre os discos ou por alguma razão geométrica uma estrutura local de mínima energia com ordem pentagonal for favorecida, teremos um sistema frustrado. Nessa situação, o sistema não consegue propagar a sua ordem local globalmente sem deixar falhas.

Na Fig. 2.6.(b), não é possível ocupar todos os vértices dos pentágonos com discos. Na região onde ocorre a frustração, temos dois discos d_1 e d_2 que se sobrepõem devido à frustração, assim, devemos escolher apenas um, o que leva a uma falha na nossa regra de empacotamento pentagonal. Em comparação com o padrão triangular, se para cada par de contato no padrão pentagonal atribuirmos uma energia E_0 , essa configuração terá dois estados de menor energia, o que gera um estado duplamente degenerado.

Um pentágono regular possui um ângulo interno igual a 108° , o qual não é divisor de 360° . Isso conduz à impossibilidade de cobrir o plano *Euclidiano* com pentágonos regulares. Contrainstintivamente, é possível relaxar a frustração em espaços curvos, ou seja, a frustração deixa de existir em superfícies *não Euclidianas*. A exemplo disso, é possível cobrir perfeitamente a superfície de uma esfera S^2 com pentágonos regulares. Straley [131] nos deu um exemplo do bom uso de superfícies curvas em sistemas frustrados. Ele mostrou que é mais rápido usar o processo de *annealing*, em sistemas frustrados, na superfície de uma esfera S^3 do que no espaço *Euclidiano* 3D.

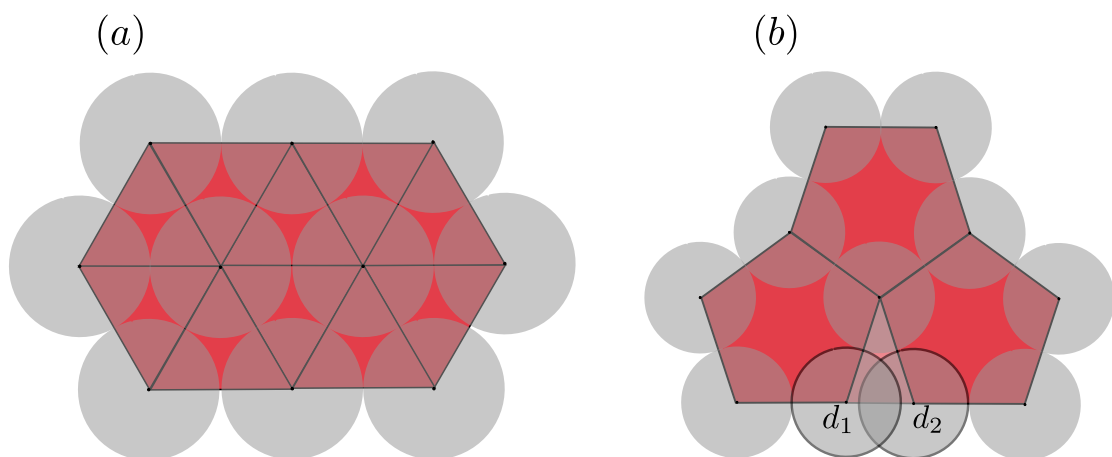


Figura 2.6: Frustração geométrica em empacotamento. Em (a), sistema não frustrado com um único estado fundamental. Em (b) sistema frustrado duplamente degenerado. É impossível cobrir perfeitamente uma rede pentagonal de lado l com discos de raio $l/2$ colocando os centros dos círculos nos vértices dessa rede.

No contexto de sistemas que são modelados por discos ou esferas duras, a frustração

se aplica às situações em que uma ordem local não consegue se propagar indefinidamente - sem defeitos - pelo espaço. A frustração pode ser causada pelas razões geométricas ou pela competição de forças.

A frustração ocorre também em outros contextos, como na colisão entre materiais granulares. A *frustração friccional* se aplica, por exemplo, à situação na qual os discos rolam em uma superfície com atrito, exibido na Fig. 2.7(c) e (d). Nesse cenário, a frustração se refere à incapacidade de manter contato não deslizante entre as partículas e a superfície no momento da colisão [132, 133].

A consequência imediata dessa frustração é acentuar a dissipação de energia do sistema. Além desse efeito dissipativo, a *frustração friccional* leva a outros efeitos não intuitivos, como auto-organização em cadeias unidimensionais de discos [134], formação de aglomerados [132] e transição de fase [135].

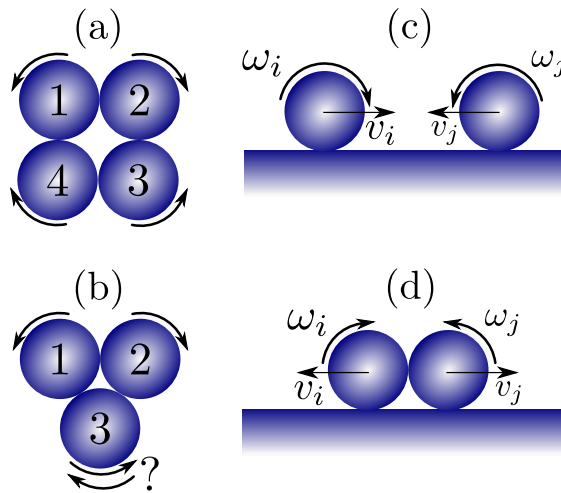


Figura 2.7: Frustração friccional durante o contato de discos [132]. Em (a) e (b), mostra discos idênticos em contato, livres somente para girar em torno de seus respectivos centros e interagindo apenas por atrito. Tanto em (a) como em (b), se mantermos a velocidade angular da esfera 1 constante, $\omega_1 = \omega$, observaremos dois resultados bastante diferente. Em (a), o sistema consegue girar sem deslizar, pois com $\omega_1 = \omega$ teremos $\omega_2 = -\omega$, $\omega_3 = \omega$ e $\omega_4 = -\omega$. Em (b), a esfera 1 induz uma rotação no sentido horário em 2, a esfera 2 induz uma rotação no sentido anti-horário na esfera 3 e por fim, a esfera 1 induz uma rotação no sentido horário na esfera 3. Tal arranjo triangular não deixa a esfera 3 girar sem deslizar simultaneamente com as demais esferas em contato, deixando o sistema frustrado. A situação em (c) e (d) é similar a (b), pois durante a colisão temos o contato mutuo entre três corpos com atrito. Nesse contexto, a *frustração colisional* ocorre devido a impossibilidade de manter contatos não deslizantes entre os discos em colisão e superfície.

A frustração também ocorre, nos processos de empacotamento, em sistemas que são modelados por discos ou esferas rígidas. Sára Lévy [85] e colaboradores realizaram um experimento empacotando esferas em cavidades quase 2D, mostrando que elas se orga-

nizam em uma rede triangular, com uma fração das esferas tocando na parte frontal e o restante na traseira da cavidade. Andreea Panaitescu e colaboradores [136] realizaram um experimento submetendo um feixe de filamentos ordenados hexagonalmente a um processo de empacotamento por torção. Tal processo, o qual é mapeado no problema de empacotamento de discos em uma superfície de curvatura Gaussiana, gera defeitos devido à frustração geométrica.

Sabe-se que o confinamento espacial na física da matéria condensada origina uma coleção de estruturas cristalinas exóticas [137, 138]. O confinamento causa uma frustração no sistema físico. Assim, o termo frustração de empacotamento [139] se aplica quando há uma incompatibilidade entre uma ordem local - seja em átomos, em moléculas ou em partículas coloidais - e o vínculo geométrico imposto pelas superfícies confinantes. Tendo em vista que existe uma relação entre processo de empacotamento, frustração e transições estruturais, iremos abordar o tópico Transições de Fase nas próximas seções.

2.4 Transição de Fase

O estudo das transições de fase está no cerne da física da matéria condensada. As transições entre estados também são encontrados em outros contextos, a exemplo, na biologia e em sistemas sociais. De uma forma geral, sistemas que são compostos por muitos corpos e que interagem entre si, propiciam efeitos como auto-organização, fenômenos emergentes e transição de fase.

Sistemas com essas características, são definidos como sistemas complexos. Dos possíveis fenômenos encontrados nesses sistemas, as transições de fase são marcantes por modificarem radicalmente a estrutura ou o comportamento de uma coletividade interagente. A exemplo, há transições nos padrões de atividade genética dentro das células, nos padrões comportamentais em formigas, na evolução de doenças como o câncer, na propagação de incêndios ou epidemias.

Para ganharmos um aprofundamento teórico e ampliarmos a nossa noção qualitativa e quantitativa dessas transições na física, apresentaremos alguns exemplos experimentais e numéricos.

2.4.1 Transições no Equilíbrio Termodinâmico

É comum em nosso cotidiano nos depararmos com algumas fases da matéria, a exemplo da água, que frequentemente podemos encontrar nos estados sólido, líquido e gasoso. A água H_2O pode estar no estado sólido (gelo), ao derretê-la temos H_2O na fase líquida (água) e se continuarmos a aquecer transformamos todo o líquido em vapor, como mostra a Fig. 2.8. Sólido-líquido, líquido-vapor são exemplos de transições de fase. Sólido, líquido e gás são estados da matéria que, sem dúvida, temos mais contato no nosso dia a dia.

Nem toda transição de fase está relacionada a uma mudança drástica na estrutura do material, tal como na transição sólido-líquido, em contrapartida essa mudança pode se dar apenas com alguma alteração no comportamento. Há transições em que uma dada amostra permanece sólida e, por meio de determinado parâmetro de controle, o material muda drasticamente alguma propriedade intrínseca. Quando aquecemos um ímã permanente a uma temperatura suficientemente alta, mas sem derretê-lo, tal ímã passa de um estado magnetizado para um estado desmagnetizado. Há materiais em que, na temperatura ambiente, são isolantes, mas, a baixas temperaturas, se tornam supercondutores. Essas mudanças de regime ocorrem também em sistemas na fase líquida. O Hélio-4, quando esfriado abaixo de uma temperatura crítica $T_c = 2.7K$, passa a apresentar um escoamento sem atrito, em outras palavras, uma superfluidade.

Essas transições, magnetizado-desmagnetizado, isolante-supercondutor e fluida-superfluida são transformações de regime que ocorrem sempre em uma *temperatura crítica* T_c . Em sistemas magnéticos, para materiais ferromagnéticos, essa temperatura crítica é chamada de ponto *Curie*, enquanto que para antiferromagnéticos é o ponto *Néel*. Para o hélio, o ponto de transição é chamado de *Ponto Lambda*.

Em termos formais, uma transição de fase de um sistema termodinâmico é uma transformação em que há mudança entre fases ou entre regimes. Para visualizar melhor as diferentes fases dos sistemas e as suas respectivas transições, é comum fazer uso de um diagrama de fase, como mostram as Fig. 2.8 e Fig. 2.9. Explicando-se de forma simples, um diagrama de fase é um gráfico em que cada eixo representa um parâmetro de controle e todos os pontos desse gráfico correspondem a uma fase ou um regime no qual o sistema se encontra.

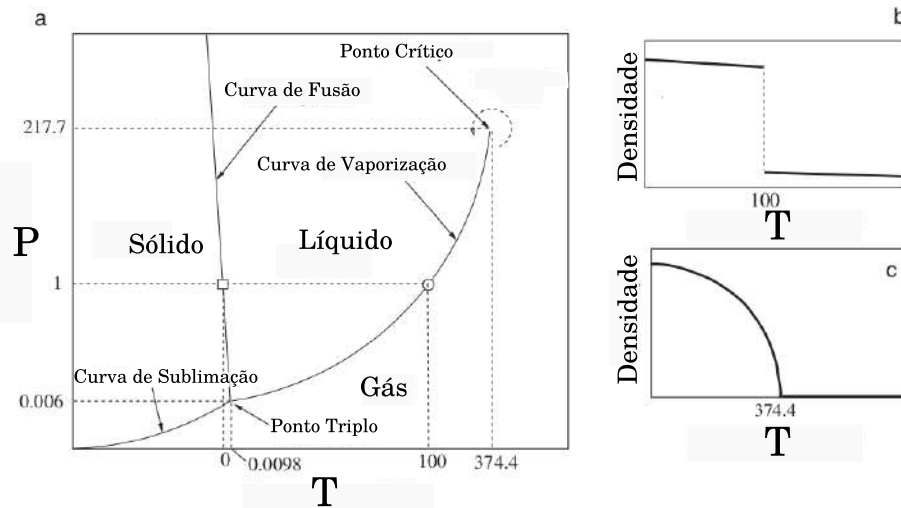


Figura 2.8: Diagrama de fases para a água. Em (a), três fases são determinadas e separadas por curvas bem definidas. As figuras (b) e (c) ilustram como a densidade pode servir de parâmetro de ordem, deixando evidente a distinção entre as fases. Reproduzido de [140].

A transição de fase ocorre quando uma pequena mudança em um algum parâmetro de controle induz uma modificação qualitativa dramática nas propriedades físicas do sistema. Essa mudança qualitativa sempre está acompanhada de uma mudança drástica de alguma quantidade mensurável. Nesse contexto, tal quantidade física é chamada de parâmetro de ordem. Para ganhar uma intuição da nomenclatura e dos termos usados aqui, vamos analisar microscopicamente a transição da água líquido-sólido.

Na transição líquido-sólido, as moléculas da água estão desordenadas no estado líquido, pois não possuem posições fixas e conseqüentemente não possuem um padrão espacial. Por outro lado, as moléculas da água no estado sólido organizam-se em uma rede perfeitamente cristalina com uma ordenação hexagonal. As transições de fase são frequentemente analisadas em termos por um parâmetro de ordem, o qual descreve aproximadamente o estado microscópico de um sistema. Usualmente, o parâmetro de controle é uma variável intensiva, como a temperatura, enquanto que o parâmetro de ordem é uma variável extensiva, como a magnetização no modelo de Ising.

Diferentes situações exigem variados parâmetros de ordem, por exemplo, um bom parâmetro de ordem para um ímã é a magnetização, como exibido na Fig. 2.9. Para

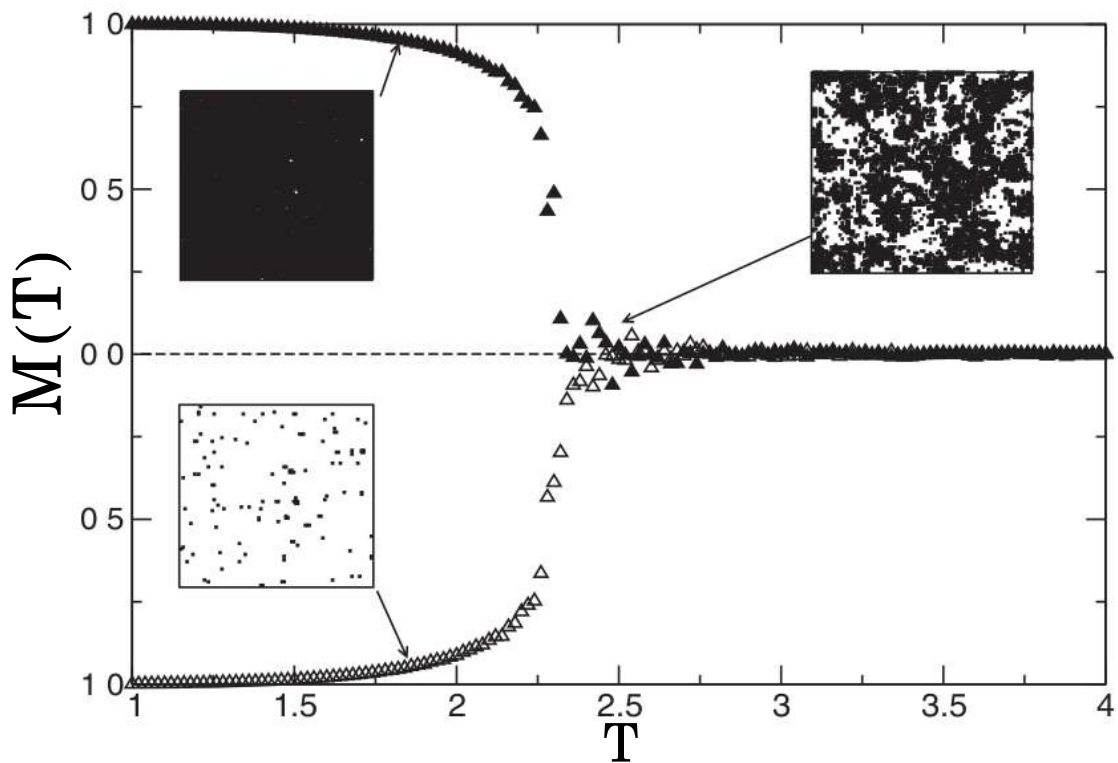


Figura 2.9: Transição em um sistema de *spin*. Foi usado um Modelo 2D de Ising, em uma rede quadrada 100×100 . Foram utilizadas duas condições iniciais, uma em que a maioria dos spins aponta para cima (triângulo preenchido) e outra em que a maioria dos *spins* aponta para baixo (triângulo aberto). Uma transição ocorre em $T_c = 2.27$, ponto em que, independente da temperatura, a magnetização se torna nula. Reproduzido de [140].

substâncias que passam entre as fases sólidas, líquidas e gasosas é comum usar a diferença entre a densidade atual (densidade medida) e a densidade crítica (densidade prevista teoricamente ou extrapolada experimentalmente) de transição, como exibido na Fig. 2.8(b) e (c). Para uma mistura binária de fluidos, o parâmetro de ordem é mais complicado, nessa situação o parâmetro é uma combinação da densidade total do fluido com as densidades relativas de cada fluido.

A magnetização e a densidade são dois exemplos de parâmetros escalares que nos auxiliam na determinação do ponto exato de quando ocorre uma transição de fase. Outras quantidades importantes na caracterização de transições são o *comprimento de correlação*, o *calor específico* e a *susceptibilidade*. Embora não exista um procedimento padrão para definir um parâmetro de ordem, ψ , dado um estado termodinâmico \mathbb{E} do sistema, é necessário que tal parâmetro obedeça a algumas propriedades:

1. Ser uma função bem definida da configuração \mathbb{E} .
2. Poder ser normalizada, ou seja, $0 \leq \psi \leq 1$.
3. Para dois estados \mathbb{E}_A e \mathbb{E}_B se $\psi(\mathbb{E}_A) > \psi(\mathbb{E}_B)$, deve significar que o estado \mathbb{E}_A é

mais ordenado do que o estado \mathbb{E}_B .

No exemplo do diagrama de fase da água, na Fig. 2.8, na qual a temperatura e a pressão são o parâmetro de controle, todas as suas propriedades termodinâmicas são determinadas pela energia livre de Gibbs

$$G = E - TS + pV. \quad (2.2)$$

A densidade pode ser obtida por

$$\rho = m \left(\frac{\partial G}{\partial p} \right)_T^{-1} \quad (2.3)$$

e apresenta uma descontinuidade no ponto de transição sólido-líquido e líquido-vapor na Fig. 2.8(a) e (b). Essa mudança repentina acontece porque o estado de equilíbrio do sistema (determinado pelo mínimo de energia livre) muda de uma parte do espaço de fase para outra [141]. Transição de fase, parâmetro de ordem e descontinuidade nas derivadas da energia livre são termos fortemente relacionados.

As transições de fase são geralmente classificadas em duas categorias: de primeira e de segunda ordem. As transições de fase de primeira ordem são aquelas nas quais um sistema absorve ou libera uma quantidade fixa de energia (calor latente), por exemplo, a evaporação da água ou a solidificação da água. As transições de fase de primeira ordem exibem uma descontinuidade na derivada primeira da energia livre. As transições de fase de segunda ordem não têm calor latente associado e possuem uma descontinuidade na derivada segunda da energia livre.

Nem toda transição se encaixa nessas duas categorias. As transições Kosterlitz-Thouless do modelo XY, relacionado a transições em supercondutividade, pode ser considerada de ordem infinita [142], pois a energia livre é infinitamente diferenciável [143, 144].

Observa-se que várias quantidades termodinâmicas divergem no ponto crítico. Mais importante do que isso é saber como elas divergem. Dessa maneira, a análise das transições de fase é feita pelo cálculo de um conjunto de índices chamados expoentes críticos, que caracterizam o comportamento do sistema próximo ao ponto crítico. A capacidade térmica $c = |T - T_c|^\alpha$, o parâmetro de ordem $\psi = |T - T_c|^\beta$ e a suscetibilidade $\chi = |T - T_c|^\gamma$ são apenas três exemplos de variáveis termodinâmicas, que escalam com expoentes críticos α, β, γ , e que, por sua vez, caracterizam o sistema em estudo. Uma lista de expoentes críticos pode ser encontrada em [144, 145, 146]

Sabe-se que as transições de fase, e seus respectivos expoentes críticos, dependem apenas de algumas propriedades, como a dimensionalidade do sistema, o número de componentes do parâmetro de ordem e a natureza das interações - se são de curto ou longo alcance. A consequência disso é que sistemas distintos apresentam o mesmo comportamento perto dos seus pontos críticos. Isso leva ao fenômeno da universalidade, explicado através da teoria de renormalização de grupo [147].

Até aqui, falamos de transições de fase no equilíbrio termodinâmico. O fato surpreendente de que um sólido derrete a uma temperatura definida com precisão, embora a energia térmica seja amplamente distribuída entre os vários graus de liberdade, pode ser completamente explicado a partir do princípio de minimização da energia livre.

Por outro lado, as transições de fase fora do equilíbrio ainda estão longe de serem entendidas de maneira concisa e unificada, apesar de sua onipresença e de apresentar algumas semelhanças às transições no equilíbrio. A formação coletiva de padrões em sistemas moleculares [148], as transições em comportamento sociais [149, 150] e as mudanças de padrões em materiais granulares [151, 152, 153] são exemplos de transições fora do equilíbrio e que, atualmente, tem despertado um crescente interesse.

2.4.2 *Transições de Fase em Materiais Granulares*

A termodinâmica e a mecânica estatística de equilíbrio demonstraram sucesso na descrição de transições de fase. Através dessas teorias, é possível classificá-las, prever suas propriedades e entender os fenômenos críticos. Além disso, elas fornecem uma estrutura que pode ser usada para criar eficientes ferramentas numéricas, como as simulações usando o método de Monte Carlo. Do ponto de vista teórico, as transições de fase foram organizadas em classes de universalidades em termos de simetria, expoentes críticos e leis de conservação [154, 155].

Em condições fora do equilíbrio, não existe tal estratégia que possa ser usada para analisar ou classificar as transições de fase. Existem, no entanto, alguns exemplos de modelos que se mostraram aplicáveis em casos bastantes gerais. Alguns desses modelos são o processo de percolação direcionada, o modelo de Kardar-Parisi-Zhang para crescimento de superfície e o modelo Swift-Hohenberg [156, 157, 158]. A metodologia usada em sistemas em equilíbrio foi estendida a sistemas fora do equilíbrio, onde novamente, encontram expoentes críticos e classes de universalidade. Contudo, uma teoria completa ainda está em processo de construção.

Materiais granulares têm se mostrado ótimos candidatos para estudos de processos fora do equilíbrio. A matéria granular é uma coleção de partículas macroscópicas atômicas que interagem, principalmente, através de colisões dissipativas e, dependendo das condições externas, como pressão ou *fração de empacotamento*, podem se comportar como um sólido, um líquido ou um gás. Devido à forte dissipação presente nas colisões entre as partículas e à correspondente necessidade de injeção de energia (por vibração ou injeção de partículas em cavidades), tal sistema é um excelente candidato para estudar transições de fase fora de equilíbrio.

Quando submetido a vibrações ou a forças externas, um sistema granular pode exibir transições, como sólido-líquido, líquido-gás e vários outros padrões ordenados (redes cristalinas) ou desordenados (transição de vidro). Compreender fundamentalmente tais materiais em seu próprio domínio nos proporciona entender efeitos em outros campos da física como: plasticidade de sólidos, fratura em materiais, atrito entre superfícies, *self-assembly* em sistemas dentro e fora do equilíbrio - como colóides, espumas, emulsões - e padrões em sistemas biológicos [159, 160].

A formação de padrões ou a mudança da dinâmica em materiais granulares, além de depender das condições iniciais e das condições de contorno, dependem, também, da forma com que injetamos energia no sistema, seja por vibração, gravidade ou cisalhamento. Muito tem sido feito confinando esses materiais em cavidades e submetendo-os à vibração vertical.

As primeiras observações de padrões em materiais granulares sob vibração foram feitas há mais de dois séculos por Chladni (1787) e Faraday (1831). Além de padrões macroscópicos é possível, ainda, encontrar estados localizados em materiais granulares, tais estados são conhecidos como *oscillons* [161].

Multicamadas de materiais granulares sujeitos à vibração vertical exibem uma coleção de padrões. Experimentos dessa natureza, usualmente utilizam uma camada vertical de algum material granular com uma altura entre 10 e 30 diâmetros de partículas e são agitados por uma vibração vertical produzida por um agitador magnético. Dependendo das condições experimentais, como frequência e amplitude de agitação, pode-se observar uma infinidade de padrões, a exemplo de listras, quadrados e hexágonos, como mostra a Fig. 2.10.

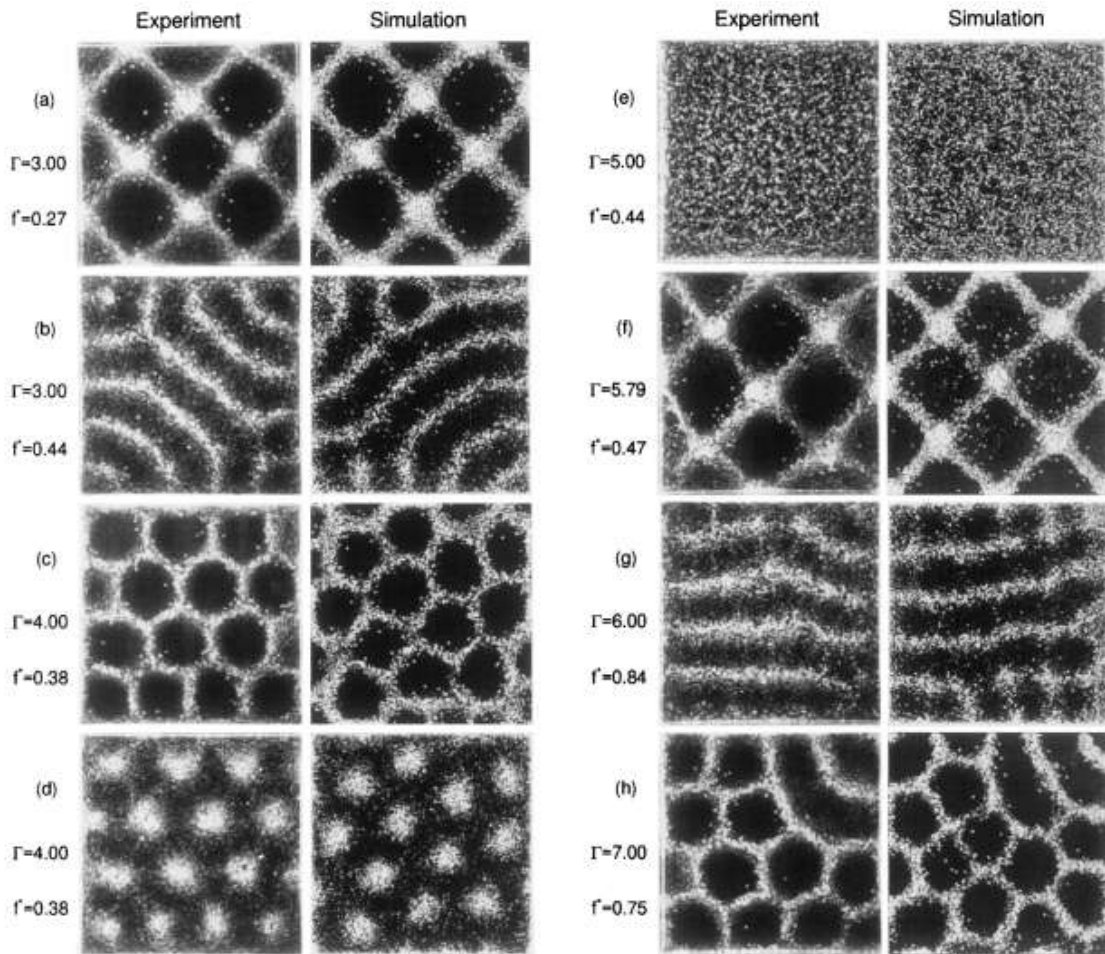


Figura 2.10: Padrões em materiais granulares sujeitos à vibração vertical [162]. Os padrões foram obtidos variando dois parâmetros de controle, quais sejam, a frequência de oscilação f e a amplitude de oscilação Γ . Padrões de ondas estacionárias: (a) quadrados, (b) listras, (c) e (d) fases alternadas de hexágonos, (e) camada plana, (f) quadrados, (g) listras e (h) hexágonos.

Quando há uma distribuição de tamanhos de partículas na matéria granular, a agitação vertical ou horizontal geralmente leva à segregação, ou seja, o material sai de um estado em que as partículas de tamanhos diferentes estão misturadas para o estado não misturado. A manifestação mais conhecida dessa segregação é o “efeito castanha-do-brasil” que é a tendência das partículas de maior tamanho em um meio granulado de ascender à superfície

quando a mistura é agitada verticalmente.

Transições sólido-líquido [163], em processo de avalanche, líquido-sólido, devido ao congestionamento repentino do fluxo de silos (*jamming*) [164, 165], e líquido-gás [166, 167] são alguns exemplos em que o material granular muda sua fase devido à vibração ou uma força externa.

Para entender melhor o comportamento de materiais granulares reais é comum o uso do modelo de esferas ou discos duros em geometrias confinantes. Através de simulações, temos a liberdade de mudar livremente parâmetros intrínsecos e extrínsecos ao sistema, deixando-nos entender como tais parâmetros controlam essas transições. Transições de fase de primeira [168, 169, 167] e de segunda ordem [170, 167, 171] podem ser encontradas em materiais granulares.

Na subseção 2.4.1, dizemos que a ordem de uma transição de fase se relaciona com a ordem na qual a derivada da energia livre apresenta uma descontinuidade. Infelizmente, em materiais granulares, não existe uma abordagem termodinâmica generalizada [172, 173]. Contudo, sempre é possível definir um parâmetro de ordem para esses sistemas e, com isso, verificar seu comportamento com respeito ao parâmetro de controle estabelecido no experimento/simulação em estudo.

Comprimento de correlação [169], número de coordenação [174], comprimento característico de escala [169] e parâmetro de ligação orientacional [175, 171] são alguns exemplos de parâmetros usados para discriminar fases e regimes em materiais granulares.

Dentro de um conjunto contendo uma enorme riqueza de transições entre fases e entre regimes, a transição de *jamming* chama a atenção por ser bastante interdisciplinar. *Jamming* está relacionado à mudança de comportamento de um regime fluido para um regime sólido. O exemplo mais ordinário em materiais granulares é o *jamming* em silos, como exibido na Fig. 2.11.

Para termos uma noção da sua interdisciplinaridade, citamos três exemplos fora do contexto da física da matéria granular. A primeira é a transição de vidro [176, 37], a segunda é a conformação de proteínas [177] e a terceira é a transição de *jamming* em células cancerosas [178, 179].

A natureza das transições vítreas é um assunto ainda em debate e muito similar à transição *jamming* em materiais granulares. Estruturas formadas pelo processo de empacotamento, em experimentos com materiais granulares, são utilizadas como modelos no estudo das transições de vidros [180, 109].

Essa analogia foi bem explorada por Edwards. Edwards conseguiu relacionar estados vítreos com estabilidade mecânica em empacotamento de materiais granulares [181]. Usando a mecânica estatística, baseada no *ensemble* de Edwards, conceitos, como temperatura efetiva, avançaram bastante nossa compreensão tanto da física granular como das transições em sistemas de vidro [173, 182].

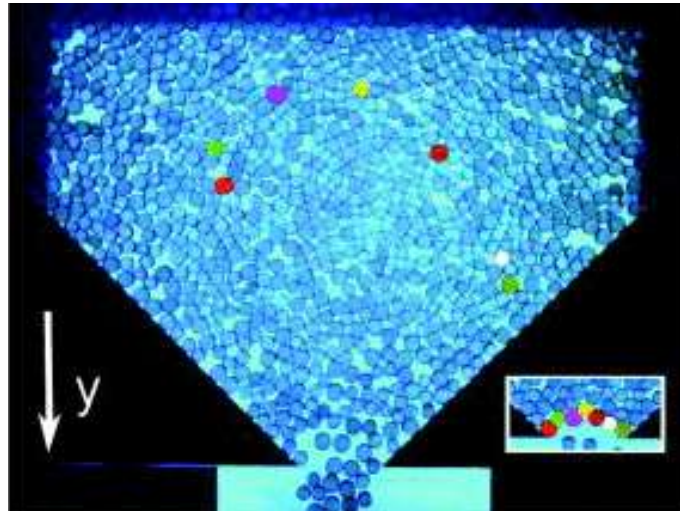


Figura 2.11: *Jamming* em silo [183]. A imagem mostra o escoamento de discos em um silo. Os discos fluem como um líquido em um funil, mas em um determinado momento, alguns deles formam um arco (discos coloridos), que sustentam todo o peso do sistema, e que, eventualmente, congestionam o fluxo, o que é mostrado no *inset*. O estado *jamming* ocorre inclusive no caso sem atrito entre disco-disco e disco-cavidade.

Para um empacotamento de esferas rígidas em um espaço com d dimensões, existe uma classificação hierárquica que divide o estado *jamming* em três categorias: *Jamming* local, *Jamming* coletivo e *Jamming* estrito [184, 185]. Tais categorias para o estado *jamming*, estão intimamente relacionadas aos conceitos de rigidez e estabilidade em processos de empacotamento de esferas encontrados na literatura [186, 187].

No *Jamming* local, cada esfera no sistema é equilibrada localmente por seus vizinhos, ou seja, não pode ser transladada enquanto as posições de todas as outras esferas permanecerem fixas. Cada esfera precisa ter pelo menos $N_c = n_d + 1$ contatos com esferas vizinhas, com n_d o número de dimensões do sistema.

O *Jamming* coletivo ocorre quando qualquer sistema está em um estado de *jamming* local e não existir nesse sistema qualquer subconjunto de esferas que possam se mover simultaneamente sem deslocar qualquer outra esfera a sua volta.

O *Jamming* estrito ocorre quando qualquer configuração em um estado de *jamming* coletivo proíbe todas as deformações na fronteira que possam vir aumentar volume do sistema. Um sistema no estado de *jamming* estrito é similar a um sistema que está no estado de *jamming* coletivo com o adicional

Essas definições não esgotam o universo de possíveis distinções de *jamming*, mas elas parecem abranger um conjunto razoável de situações que podem ser modeladas usando discos ou esferas rígidas [184].

A motivação em categorizar o tipo de *jamming* é que elas possuem grande relevância nas propriedades mecânicas macroscópicas em sistemas que podem ser modelados usando esferas rígidas. Em outras palavras, a natureza do *jamming* dita o tipo de relação constitutiva entre os tensores de tensão e de deformação [188]. É claro que a segunda definição é

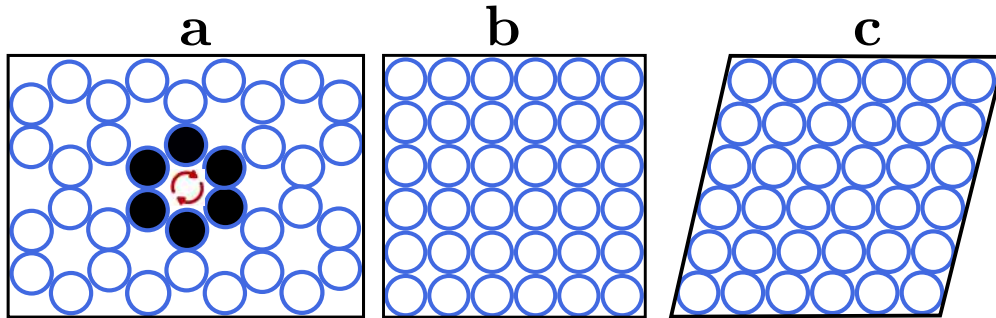


Figura 2.12: Ilustração mostrando as três categorias do *jamming*. Em **a**, discos confinados em uma caixa retangular rígida, organizada em um padrão de empacotamento hexagonal, está em um estado de *jamming* local. Contudo, não está em um estado de *jamming* coletivo, pois a rotação de uma subestrutura hexagonal em torno de seu centro de massa tira o sistema do estado *jamming* (com exceção de ângulos múltiplos de 60°). Em **b**, um empacotamento de discos em uma rede quadrada dentro de uma caixa quadrada rígida se qualifica em um estado de *jamming* coletivo. Em **c**, para a rede quadrada, as únicas deformações simétricas não expansivas permitidas vem através de cisalhamentos orientadas ao longo de linhas horizontais, todas as deformações de cisalhamento com outras orientações são resistidas.

mais restritiva do que a primeira, e a terceira definição, por sua vez, é a mais restritiva. É crucial observar que o esquema de classificação depende do tipo de condições de contorno imposto - como condições de contorno periódicas ou rígidas -, bem como da forma da fronteira. A Tab. 2.1, exibe exemplos de sistemas empacotados de esferas, cujos centros localizam-se nos vértices de redes bidimensionais e tridimensionais regulares.

Do ponto de vista quantitativo, o estado de *jamming* pode ser analisado usando a segunda lei de Newton. Assim, para uma *estabilidade mecânica*, as forças e torques devem obedecer às relações dadas pelas Eq.2.4 e Eq.2.5. Nas equações, \mathbf{F}_{ij} é a força de contato entre as partículas localizadas nas posições \mathbf{r}_i e \mathbf{r}_j , separadas pelo vetor diferença $\mathbf{d}_{ij} = \mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i$.

$$\sum_{i<j} \mathbf{F}_{ij} = 0 \quad (2.4)$$

$$\sum_{i<j} [\mathbf{F}_{ij} \times \mathbf{d}_{ij} - \mathbf{d}_{ij} \times \mathbf{F}_{ij}] = 0 \quad (2.5)$$

O estado *jamming* ocorre também em configurações não ordenadas. O estado desordenado e de maior densidade para uma coleção de esferas congruentes, sem atrito e dentro de uma geometria confinante, é conhecido como *random close packing* (RCP). Tal termo foi usado primeiramente por Bernal [189] como modelo para estudar estruturas em líquidos. Resultados teóricos e numéricos convergem para um mesmo valor de fração de empacotamento $\phi_{rcp} = 6/(6 + \sqrt{3}) \approx 0.634$ [169, 190].

Tabela 2.1: Classificação de algumas redes ordenadas formadas pelo processo de empacotamento de esferas de mesmo raio em duas e três dimensões, onde Z denota o número de coordenação e ϕ é a fração de empacotamento para estruturas infinitas. Com condições de contorno apropriadas, a rede Kagomé está local, coletiva e estritamente no estado *jamming* [184].

Rede	<i>Jamming</i> Local	<i>Jamming</i> Coletivo	<i>Jamming</i> Estrito
Hexagonal ($Z = 3, \phi = 0.605$)	Sim	Não	Não
Kagomé ($Z = 4, \phi = 0.680$)	Não	Não	Não
Quadrado ($Z = 4, \phi = 0.785$)	Sim	Sim	Não
Triangular ($Z = 6, \phi = 0.605$)	Sim	Sim	Sim
Diamante ($Z = 4, \phi = 0.340$)	Sim	Não	Não
Cubo Simples ($Z = 6, \phi = 0.524$)	Sim	Sim	Não
BCC ($Z = 8, \phi = 0.680$)	Sim	Sim	Não
FCC ($Z = 12, \phi = 0.741$)	Sim	Sim	Sim
HCP ($Z = 12, \phi = 0.741$)	Sim	Sim	Sim

Hernán [191] e colaboradores, através de experimentos e simulações, estudaram empacotamento de esferas rígidas - com e sem atrito - em geometria confinante submetida a uma pressão externa. Para o protocolo usado, foi mostrada uma transição contínua, na qual a tensão ³ vai a zero com $\sigma \propto (\phi - \phi_c)^\beta$. A fração de empacotamento crítica ϕ_c depende do tipo de interação entre as esferas. Caso as esferas interajam apenas por forças normais (sem atrito), elas podem girar e rotacionar livremente como nos experimentos em que grãos foram submetidos à vibração, assim $\phi_c = \phi_{rcp} \approx 0.634$. Para o caso com atrito $\phi_c = 0.6284$. O expoente crítico $\beta \approx 1.6 \approx 3/2$ está relacionado com a lei de contato de Hertz. O número médio de coordenação ⁴ $\bar{Z} \propto (\phi - \phi_c)^\alpha$ também foi analisado, em que $\alpha = 1/2$ parece ser universal em relação a diferentes leis de força de contato.

Yuliang e Hernán [169], usando o algoritmo Lubachevsky-Stillinger, modificado [192, 193] para gerar estados desordenados no estado *jamming*, mostraram que a transição para o estado *jamming* pode ser interpretada como uma manifestação de uma singularidade termodinâmica, definindo tal estado como uma transição de fase de primeira ordem, o que mostra que existe uma mudança descontínua no *comprimento de correlação* ξ , similar à transição na Fig. 2.8.(b).

Nesta tese iremos mostrar três transições de fase pelo processo de injeção de uma cadeia de esferas magnetizadas dentro de uma geometria confinante. Dependendo da forma com que injetamos as esferas, da natureza do confinamento e da presença ou não de uma força externa (gravidade) o sistema apresenta duas mudanças de fase estrutural e uma de *spin*.

³A tensão refere-se à pressão mecânica relacionada ao traço do tensor de tensão de Cauchy.

⁴O número médio de coordenação é $\bar{Z} = 2N_c/N_p$, no qual N_c é o número de contatos e N_p é o número de partículas

ANÁLISE DE IMAGENS

3.1 Calibração da Imagem e Câmera

A primeira impressão que temos ao tirar uma foto com um celular ou uma câmera é que a imagem digital produzida pelo dispositivo cria uma cópia perfeita do real. Tirando o exemplo óbvio dos dispositivos que usam lentes *olho-de-peixe*, ao tirar fotografias, as imagens geradas serão distorcidas pelos efeitos da lente e pela perspectiva. Dessa maneira, para usar imagens com fins científicos, é necessário corrigir essas distorções. Nessa seção será mostrado como tratar tais defeitos.

A incapacidade de uma lente em formar uma imagem perfeita é causada por imperfeições, as quais fazem com que a luz se espalhe em uma região ao invés de convergir para um ponto [194]. As aberrações são divididas em três classes: aberrações cromáticas, aberrações monocromáticas e aberrações de perspectiva.

Nessa tese foram colhidas imagens de objetos com tons de cinza (fundo preto e objetos com cor cinza), o que evita a ocorrência do fenômeno da aberração cromática. Ademais, com uma câmera apontada frontalmente para o plano que contém os objetos é possível eliminar a aberração de perspectiva. No que concerne às aberrações monocromáticas, ainda observamos aberrações que causam distorções nas imagens obtidas. A origem dessas distorções são causadas pelas imperfeições e pelo desalinhamento das lentes que compõem o dispositivo.

Dentro desse conjunto de aberrações causadas por lentes, a *distorção* é a única aberração que não afeta a qualidade da imagem em termos de nitidez e foco. Esse tipo de aberração é o mais comum entre as câmeras de celulares e as câmeras vendidas comercialmente. A aberração de *distorção* afeta o formato da imagem, fazendo que a imagem se afaste da verdadeira escala do objeto, como mostra a Fig. 3.1.

Usando o centro da imagem como origem, classificamos as distorções em duas categorias. A primeira, é a *distorção em barril*, na qual os *pixels* se aproximam do centro da imagem com relação à posição original Fig. 3.1b. A segunda, é a *distorção de almofada*, na qual os *pixels* se afastam do centro da imagem com relação à posição original. Ambas são distorções radialmente simétricas. A *distorção de barril* geralmente está presente na maioria das lentes com grande visão angular (pequena distância focal). A *distorção do tipo almofada* ocorre em dispositivos que usam lentes telefoto.

Ainda que haja uma inevitável *distorção* em imagens, causadas por lentes, podemos

atenuar essa distorção usando dispositivos com uma distância focal grande (ângulo de visão pequeno) e removê-la, por completo, aplicando algoritmos de transformação de imagem.

Podemos fazer uma análise quantitativa da distorção usando uma imagem de referência, como uma malha sem distorção, e compará-la, de alguma maneira, com uma imagem tirada em um dispositivo qualquer. Uma maneira de calcular a distorção em percentual está ilustrada na Fig 3.1, assim, a medida em percentual de uma distorção D_I pode ser calculada simplesmente relacionando a distância real d_{real} e a distância alterada d_{alt} da imagem, usando a Eq. 3.1. Isso pode ser feito por meio de um padrão, como uma malha de pontos, conforme mostrado na Fig.3.2.

$$D_I = \frac{d_{real} - d_{alt}}{d_{real}} \quad (3.1)$$

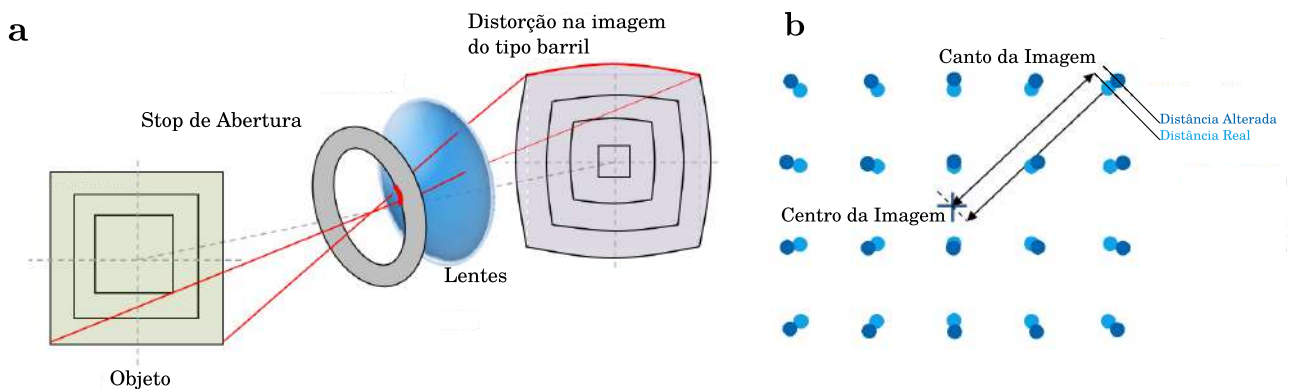


Figura 3.1: Distorção em uma imagem. Um design não simétrico das lentes e uma abertura antes ou atrás do centro óptico da lente levam a distorções na imagem. Em **a**, se o stop de abertura estiver na frente da lente e o conjunto abertura-lente não estiver perfeitamente alinhado, teremos uma distorção de barril na imagem. Em **b**, uma sobreposição de duas malhas de pontos, uma real e a outra alterada, deixa evidente a distorção causada pela lente.

O modelo da câmera *pinhole* descreve a relação matemática entre as coordenadas de um ponto no espaço tridimensional e a sua projeção no plano da imagem. Na Eq. 3.2, (X, Y, Z) representam as coordenadas no espaço 3D e (U, V) representam as coordenadas no plano da imagem.

$$(X, Y, Z) \mapsto (U, V) \quad (3.2)$$

A distorção radial curva as linhas de uma imagem não distorcida em arcos circulares, violando a invariância principal preservada no modelo de câmera *pinhole*, no qual linhas retas mapeiam pontos no espaço 3D em pontos no plano da imagem 2D [195, 196].

Os métodos para remover a distorção radial podem ser organizados em três categorias principais: correspondência de pontos [197], autocalibração de múltiplas imagens [198] e

linha de prumo [199].

Os métodos de linha de prumo são os mais promissores para distorção quando se deseja fazer um ajuste a partir de uma única imagem ou de um pequeno número de imagens. O primeiro passo para o uso do método é utilizar um objeto como referência. O objeto pode ser uma folha *A4* com uma malha quadrada impressa, como mostra a Fig. 3.2.b. O segundo passo é usar uma linha como referência (linha de prumo) e aplicar uma transformação na imagem, através de algum parâmetros de controle λ_d , até que a linha deformada na imagem coincida com a linha de prumo. O ajuste desse parâmetro λ_d pode ser feito através de um algoritmo ou por meio de uma supervisão humana [200].

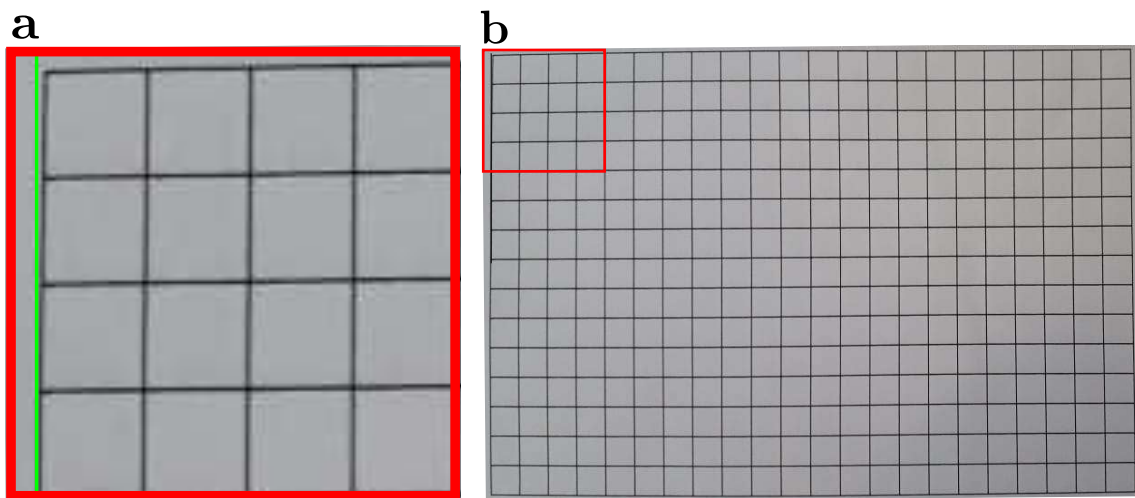


Figura 3.2: Malha quadrada usada para medir a distorção da lente. A câmera usada nesse trabalho possui uma resolução de $4160 \times 3120 \text{ pixel}$, distância focal de $f = 28 \text{ mm}$, com uma abertura igual a $f/1.9$, posicionada a uma distância de 27 cm do objeto, gerando uma distorção do tipo barril nas imagens. Em **a** usamos uma linha verde como guia para mostrar a distorção, que, como pode ser vista, é bem pequena. Usando a Eq. 3.1 podemos quantificar a distorção, a qual na imagem em questão tem o valor de $D_I = 0.025$.

Há vários modelos que realizam essas transformações em imagens. O modelo de distorção radial mais usado é o *modelo polinomial de ordem par*, aplicado em imagens que contém pequenas distorções [201]. Um modelo mais preciso do que o *modelo polinomial de ordem par* é o *modelo de divisão*, proposto por Fitzgibbon [202]. O *modelo de divisão* é melhor do que o *modelo polinomial de ordem par* porque requer menos parâmetros de deformação λ_d .

Se o centro da distorção está em (x_0, y_0) e $r_d^2 = (x_d - x_0)^2 + (y_d - y_0)^2$, usando o modelo de Fitzgibbon podemos remover a distorção de uma imagem cujos pontos (pixels) estão localizados em (x_d, y_d) , o que requer as transformações de coordenadas dadas pela Eq. 3.3 e pela Eq. 3.4, gerando uma nova imagem, sem distorção, cujos os pontos estão localizados em (x_u, y_u) .

$$x_u = x_0 + \frac{x_d}{1 + \lambda_1 r_d^2 + \lambda_2 r_d^4 + \dots} \quad (3.3)$$

$$y_u = y_0 + \frac{y_d}{1 + \lambda_1 r_d^2 + \lambda_2 r_d^4 + \dots} \quad (3.4)$$

Para a maioria dos problemas, basta usar apenas um parâmetros de deformação, assim usamos a Eq. 3.5 e a Eq. 3.6.

$$x_u = x_0 + \frac{x_d}{1 + \lambda_1 r_d^2} \quad (3.5)$$

$$y_u = y_0 + \frac{y_d}{1 + \lambda_1 r_d^2} \quad (3.6)$$

Para transformações do tipo barril, o valor de λ_1 será negativo. Apesar da distorção do tipo barril nas imagens geradas pelo dispositivo usado nesse trabalho ter uma pequena intensidade, o valor do parâmetro de distorção que melhor deforma a imagem para a Fig. 3.2 é $\lambda_1 = -0.023$.

Nesse trabalho iremos mostrar padrões gerados por dipolos magnéticos esféricos com diâmetro de $d = 5 \text{ mm}$ usando o mesmo protocolo utilizado para gerar a imagem em Fig. 3.2.b. Ainda que a distorção não apresente uma relevância significativa nas posições do objeto em estudo, foram aplicadas as transformações dadas pelas Eq. 3.5 e Eq. 3.6 com $\lambda_1 = -0.023$. Feita a calibração da câmera e da imagem, o próximo passo será mostrar como detectar as posições das esferas na imagem.

3.2 Método para Detectar Centro de Massa de Discos

Um problema comum na visão computacional é determinar a localização, a quantidade ou a orientação de um objeto específico em uma imagem. A identificação de objetos circulares em imagens digitais é importante devido a várias aplicações em visão computacional, como detecção de células, inspeção de produtos manufaturados - a exemplo de comprimidos-, detecção de alvos e *tracking* de pessoas em vista aérea. Detectar círculos é um ramo de pesquisa que tem ganho vários métodos nos últimos anos [203].

A técnica mais comum para detecção de círculo é a Transformação Hough Circular (THC) e suas variantes. A transformação Hough pode ser descrita como a transformação no espaço de parâmetro (p_1, p_2, \dots, p_n) em R^n para o espaço do plano da imagem (U, V) em R^2 [203].

O círculo é o mais simples de representar no espaço de parâmetros, comparado à linha, pois os parâmetros do círculo podem ser transferidos diretamente para o espaço de parâmetro. A equação do círculo é:

$$r^2 = (x - a)^2 + (x - b)^2. \quad (3.7)$$

Como pode ser visto na Eq. 3.7, o círculo possui três parâmetros, r , a e b . Onde a e b são as coordenadas do centro do círculo e r é o raio. A representação paramétrica do círculo é:

$$x = a + r \cos(\theta) \quad (3.8)$$

$$y = a + r \sin(\theta). \quad (3.9)$$

Assim, o espaço do parâmetro na transformação Hough para um círculo pertence a R^3 . Quanto maior o número de parâmetros para descrever uma determinada forma, maior é a dimensão do espaço do parâmetro e maior é a complexidade do algoritmo. Na representação paramétrica do círculo é usual manter o raio constante ou limitá-lo em um intervalo.

O processo para detectar círculos em uma imagem usando THC começa com a binarização da imagem. Em seguida, devemos encontrar as bordas dos objetos dentro da imagem, como mostrado em Fig. 3.3.(b), sendo usualmente utilizado o algoritmo Canny [204]. Depois, dado um raio inicial (parâmetro de entrada), desenhamos círculos cujos centros coincidam com os pontos pertencentes à borda. Com isso, localizamos e contabilizamos a frequência com que as intersecções dos círculos ocorrem, para construir um histograma $2D$, no qual os máximos locais representam os centros dos círculos.

A transformação Hough só é eficiente se um grande número de intersecções caírem próximas a uma caixa binada, para que a posição possa ser facilmente detectada em meio ao ruído de fundo. Isso significa que a largura da binagem não deve ser muito

pequena, caso contrário, muitas intersecções cairão nas binagens vizinhas, reduzindo, assim, a visibilidade do máximo local [205].

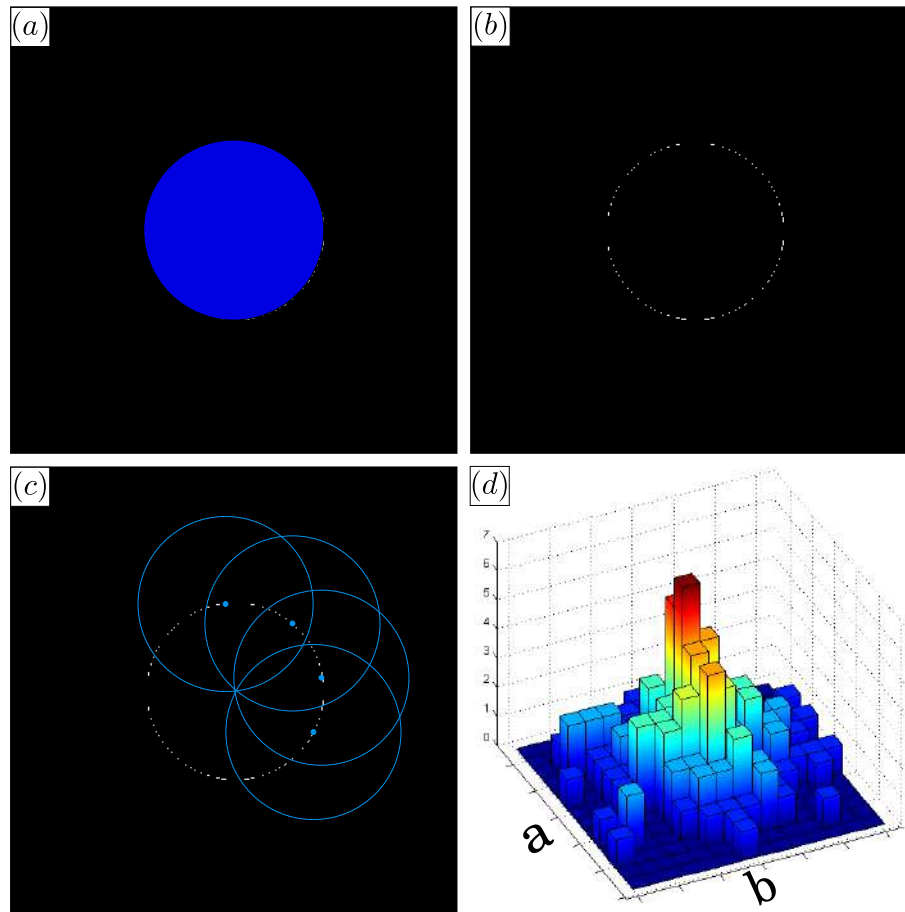


Figura 3.3: Transformação Hough Circular (THC). Em (a), um objeto circular com um raio $r = 48 \text{ pixel}$. Somente com essa informação podemos iniciar o algoritmo. Em (b), foi usado o algoritmo Canny [204] para detectar a borda, mostrada em branco. Em (c) o algoritmo THC desenha círculos, mostrados na cor azul, os quais têm raio $r = 48$. Em seguida, o algoritmo localiza e contabiliza os centros dos círculos no espaço dos parâmetros (a, b, r) . O pico localiza as coordenadas do centro.

Grande parte da eficiência da THC depende da qualidade dos dados de entrada, logo as bordas devem ser nítidas e evidentes para que a THC seja eficiente. O uso da THC em imagens ruidosas é uma questão muito delicada e, geralmente, um algoritmo de *denoising* deve ser usado antes. Uma das causas do ruído é quando as câmeras são configuradas com longa exposição ou com uma configuração ISO (sensibilidade de luz da câmera) alta. O ideal é trabalhar com uma ISO baixa, em torno de 200. Outro cuidado é não usar a câmera por muito tempo ou em um ambiente quente. A causa da maioria dos ruídos é a radiação térmica. Quanto mais quente o ambiente e quanto mais prolongado o tempo de uso da câmera, maior a probabilidade do sensor aquecer ou superaquecer, fazendo com que as flutuações térmicas influenciem na tradução dos pulsos luminosos em pulsos elétricos. O outro fator importante é o ambiente onde se encontra o objeto que será fotografado.

Um estúdio de luz evita reflexos e mantém uma distribuição uniforme de luz. Tal aparato pode ser feito com madeira, tecido preto e luz de led.

Nesse trabalho, todos esses cuidados foram tomados. O sistema de aquisição de imagens foi construído em um ambiente de luz homogênea, assim tiramos as sombras das esferas e o reflexo da câmera nas esferas. A câmera usada nessa tese possui uma resolução de $4160 \times 3120 \text{ pixel}$, uma distância focal de $f = 28 \text{ mm}$ e foi posicionada a uma distância de 27 cm das esferas. Não foi detectada nenhuma aberração cromática nas imagens.

As coordenadas das esferas foram estimadas usando o algoritmo THC. Todas as imagens analisadas foram colhidas nas mesmas condições, propostas como ideais, gerando resultados como mostra a Fig. 3.4.(b), com todas as esferas detectadas.

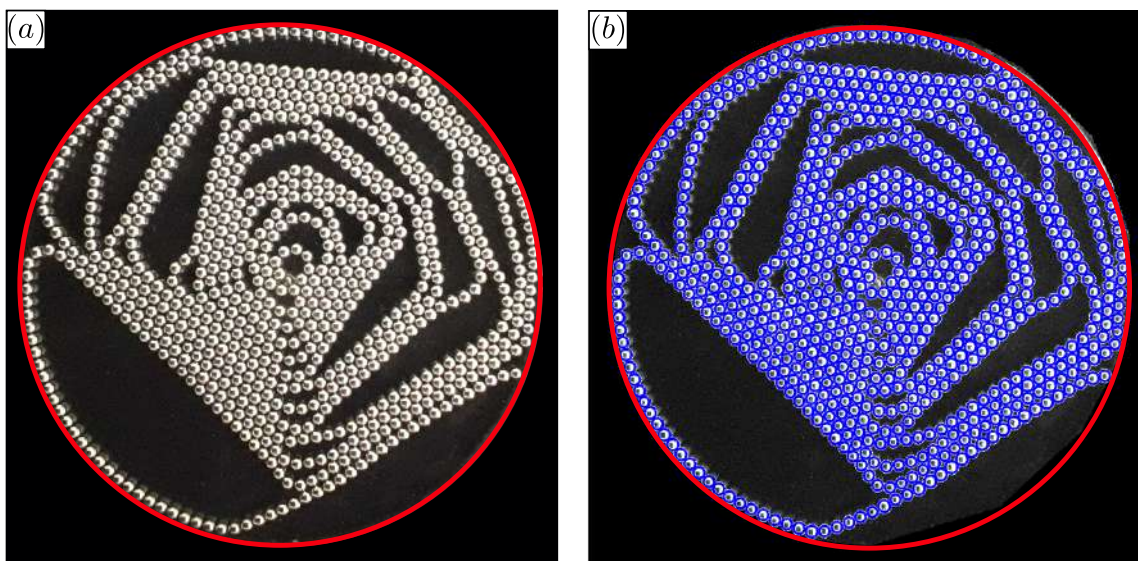


Figura 3.4: Em (a) vista superior das esferas com $r = 5 \text{ mm} = 15 \text{ pixels}$. Foi usado o mesmo protocolo experimental da Fig. 3.2. O algoritmo THC não é usado em toda a imagem, apenas na região de interesse (RDI). Na imagem a RDI compreende a região dentro do círculo laranja. Em (b) é mostrado, em círculos azuis, como 762 esferas foram detectadas. Foi usada a função `imfindcircles()` do *MATLAB* [206]. Dados os ajustes nos parâmetros e atribuindo os devidos cuidados na preparação das imagens, é possível obter um resultado satisfatório.

MÉTODOS NUMÉRICOS

4.1 Dinâmica Molecular

Existem casos em que é possível encontrar a solução analítica da trajetória para uma partícula sujeita a forças externas, como por exemplo, o lançamento de uma partícula submetida a um campo gravitacional uniforme. O problema se torna desafiador quando lidamos com duas partículas. Para o caso de duas partículas sujeitas à força gravitacional só é possível encontrar a trajetória quando supomos que uma delas está parada. Com três ou mais partículas não é possível encontrar uma solução analítica [207], então, para essa situação, se faz necessário o uso de métodos numéricos.

A Dinâmica Molecular (DM) é um método computacional capaz de encontrar as trajetórias de um sistema de partículas através da solução numérica da segunda lei de Newton. Assim como a abordagem Newtoniana, a DM considera os corpos que estão em movimento como partículas puntiformes sujeitas a forças internas e externas. Ao contrário da abordagem semi-analítica, a DM não resolve numericamente as equações diferenciais que descrevem o sistema físico, ao invés disso, o método discretiza o tempo em unidades Δt para construir uma relação entre o estado atual da i -ésima partícula $(\mathbf{r}_i(t), \mathbf{v}_i(t))$ e o seu estado posterior $(\mathbf{r}_i(t + \Delta t), \mathbf{v}_i(t + \Delta t))$. Ao passo que o sistema evolui temporalmente seu estado, caracterizado pelas posições e pelos momentos, é possível medir propriedades dinâmicas e estáticas do sistema de partículas.

A DM foi criada para simular sistemas microscópicos, nos quais a agitação térmica é relevante e as colisões podem ser consideradas perfeitamente elásticas. Polímeros, cristais, sólidos amorfos, líquidos e gases são alguns exemplos em que a técnica é utilizada para modelar. Contrastando com os sistemas microscópicos, os materiais granulares são macroscópicos, *atermais* e suas colisões são, na sua grande maioria, consideradas inelásticas. Mesmo assim, ainda se pode aproveitar muito da DM para descrever tais materiais. Além das forças impulsivas que descrevem as colisões, também precisam ser incorporadas forças de fricção para uma descrição mais próxima da experimental.

4.1.1 *Um Algoritmo de Dinâmica Molecular*

Em meados do século XX, no ano de 1957, foi utilizado pela primeira vez um programa de DM por B. J. Alder e T. E. Wainwright [208], simulando algumas centenas de átomos com o modelo de esfera dura. A segunda vez aconteceu em 1960, com J. B. Gibson [209],

usando cerca de 900 partículas em seu programa. Com o progresso da computação e com a criação de supercomputadores contendo vários processadores, atualmente é possível simular bilhões de partículas [210]. Novos paradigmas, como a orientação a objeto, permitem criar códigos mais genéricos para situações mais complexas, a exemplo da simulação de longas cadeias de proteínas [211]. Independente do paradigma de programação ou das técnicas que melhoram o desempenho do código, um algoritmo de dinâmica molecular deve seguir a seguinte receita :

inicialização
para $t = 0 : \Delta t : t_{max}$
 cálculo das forças
 cálculo das novas posições e velocidades
 cálculo das propriedades dinâmicas e estáticas
fim para

Na inicialização do programa, definem-se os parâmetros do sistema, como o número de partículas, as constantes das interações envolvidas, os vínculos, além das posições e das velocidades iniciais. O parâmetro principal na inicialização é o passo de tempo Δt . Um passo de tempo muito pequeno pode nos dar uma solução bastante precisa, porém, pode prolongar, desnecessariamente, o tempo para finalizar a simulação. Um passo de tempo muito grande pode provocar uma instabilidade numérica, além de levar a um erro grosseiro, como a não visualização da conservação da energia ou da conservação do momento, quando esperadas. Um bom passo de tempo fica em torno de $\Delta t = 0.005$ em unidades adimensionais [212]. Uma vez definida as quantidades de interesse, o algoritmo entra em um loop com t_{max} interações. Primeiramente, realiza-se o cálculo das forças, logo em seguida, o método de integração atualiza o estado do sistema e, por fim, medimos as quantidades físicas de interesse, compondo assim um passo de DM.

O cálculo das forças é, sem dúvida, a parte que exige mais tempo de CPU, pois, geralmente, o cálculo das forças de longo alcance exigem a determinação das distâncias entre as partículas com um tempo de processamento, que escala com $O(N^2)$. Quando há forças de longo alcance cuja intensidade decai rapidamente com a distância ou quando há forças de contato, é possível fazer o uso de técnicas como *lista de células* ou *lista de Verlet*, fazendo que o tempo de processamento escale quase linearmente com o número de partículas. A intensidade da força entre dipolos escala com o inverso da quarta potência da distância $F_{dip} \propto 1/r^4$, assim, para esferas magnetizadas com diâmetro d , a força é desprezível para distâncias maiores do que $10d$. Para esferas magnetizadas, precisamos assumir duas interações de curto alcance: uma força repulsiva para representar a rigidez das esferas e uma força de fricção para representar a sua rugosidade, além da interação dipolo-dipolo.

Para o estudo de materiais granulares usando DM, é necessário considerar que as partículas estejam confinadas dentro de alguma caixa de simulação. Essas condições de contorno podem ser artificiais ou físicas Fig. 4.1. Uma forma artificial de confinar um conjunto de partículas é usar a condição de contorno periódico. Essa condição é usada comumente para cavidades retangulares. Caso a partícula tente sair pela direita, ela emergirá pelo lado esquerdo. Caso a partícula tente sair por cima, ela emergirá por baixo. Essa situação é análoga à das partículas confinadas em uma superfície toroidal [212]. A consequência física desse confinamento é o sistema ser considerado infinito e, com isso, serem eliminados os efeitos de borda.

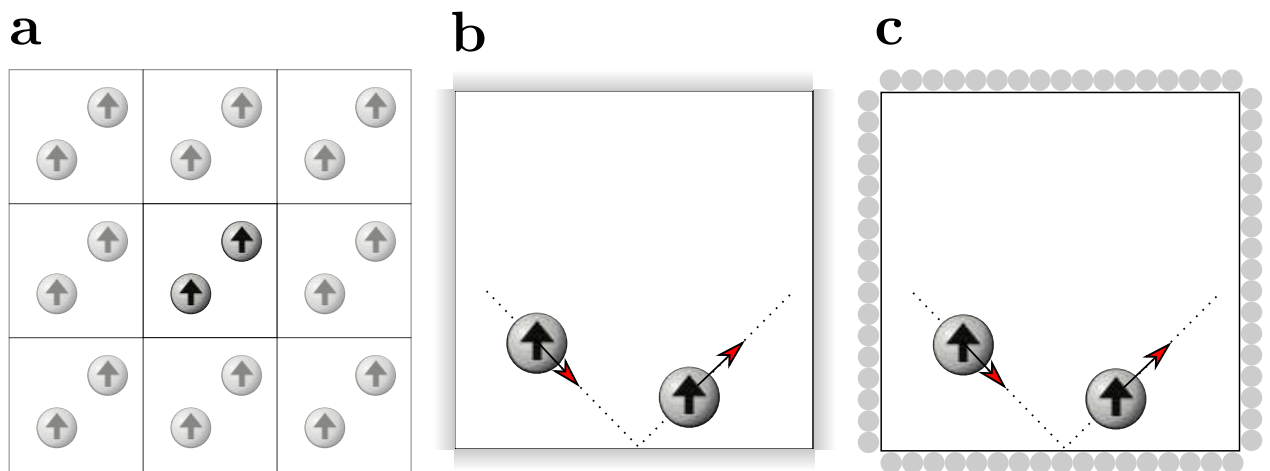


Figura 4.1: Três condições de contorno usados em DM. As setas nos centros dos discos representam a sua orientação. Em **a**, condição de contorno periódica. Partículas que experimentam sair pelo lado direito da caixa de simulação emergem pelo lado esquerdo, e vice-versa, valendo o mesmo para a base e o topo da caixa. Essa estratégia de confinamento é análoga a uma coleção infinita de sistemas idênticos. Esses sistemas infinitos estão representados por uma cor mais transparente em volta do sistema em estudo. Em **b**, uma partícula ao tentar atravessar a base da caixa de simulação, sente uma força normal ao plano e que aponta para dentro da cavidade. A linha pontilhada mostra a trajetória paralela ao vetor velocidade (seta vermelha), antes e depois da colisão. Para colisões inelásticas, utiliza-se uma força de amortecimento, usualmente proporcional à velocidade [213]. Em **c**, é mostrado que o confinamento passa a ser feito por linhas de discos com posições fixas. Nessa situação, dizemos que o confinamento é feito de forma explícita [214].

Uma outra maneira de confinar, é considerar, na região fora da caixa de simulação, um potencial repulsivo e normal ao plano da parede, deixando a parede de forma implícita na simulação. Por fim, podemos cobrir a fronteira do sistema com partículas em posições fixas e atribuí-las uma interação de contato repulsiva, como *Lennard-Jones* ou harmônica [214].

Os cálculos das novas posições e velocidades são realizados pela integração das equa-

ções de movimento. Existem muitos métodos de integração, a exemplo temos *Leap-Frog*, *Velocity-Verlet*, *Predictor-Corrector* e *Beamer* [215]. Cada método apresenta suas vantagens ou desvantagens. Para simulações contendo vínculos geométricos, é comum o uso do *Leap-Frog* ou *Velocity-Verlet*. Para simulações com longos períodos de tempo, faz-se o uso de integradores, como *Predictor-Corrector* e *Beamer*. Contudo, independente do método de integração escolhido, é imperativo que eles sejam reversíveis no tempo e devam calcular apenas uma vez por passo de DM as forças entre as partículas.

Por fim, temos o cálculo das propriedades dinâmicas e estáticas, como a função de distribuição radial, a energia total do sistema e a distribuição de forças de contato em um meio granular.

4.1.2 A Mecânica de Contato em Materiais Granulares

Um dos ingredientes principais da DM é o uso de expressões explícitas das forças que atuam nos constituintes do sistema. O estudo dessas expressões está no contexto da mecânica do contato [216, 217]. Aqui iremos nos ater à interação de contato entre esferas de mesmo raio com atrito.

Hertz, em 1882, foi o primeiro cientista a construir uma teoria sobre forças de contato, no clássico artigo “On the contact of elastic solids”. Contudo, a teoria de Hertz só é válida entre superfícies perfeitamente elásticas com contato não-conforme e sem atrito. Um contato entre superfícies é dito conforme quando elas se encaixam perfeitamente. Quando elas se tocam em um ponto ou ao longo de uma linha, dizemos que se trata de um contato não conforme. Para superfícies com contato não conforme, mesmo sob pressão, as pequenas áreas formadas pelo contato são, geralmente, bem pequenas se comparadas ao tamanho do corpo.

Pela definição de pressão, força sobre área, poderíamos pensar que, qualquer força aplicada em um ponto de contato, implicaria em uma pressão infinita. A solução de Hertz para esse impasse foi considerar que, quando um ponto ou linha de contato é posto sob pressão, há um aumento na "área de contato" devida à deformação elástica do material. Os centros de duas esferas idênticas, de raio r , em contato, na ausência de forças e quando localizadas nas posições \mathbf{r}_1 e \mathbf{r}_2 , possuem uma distância igual a $2r$. Quando uma força é submetida ao longo da linha que as une, seus centros se aproximam a uma distância $\delta = 2r - d_{12}$, com $d_{12} = |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|$, como mostra a Fig. 4.2.b. A relação entre a força aplicada F e a área circular, devido à deformação elástica, é dada pela Eq. 4.1 e pela Eq. 4.2, respectivamente.

$$F = \frac{E\sqrt{2r}}{3(1-\nu^2)}\delta^{1/3} \quad (4.1)$$

$$A = \left[\frac{3(1-\nu^2)}{4E} r F \right]^{1/3} \quad (4.2)$$

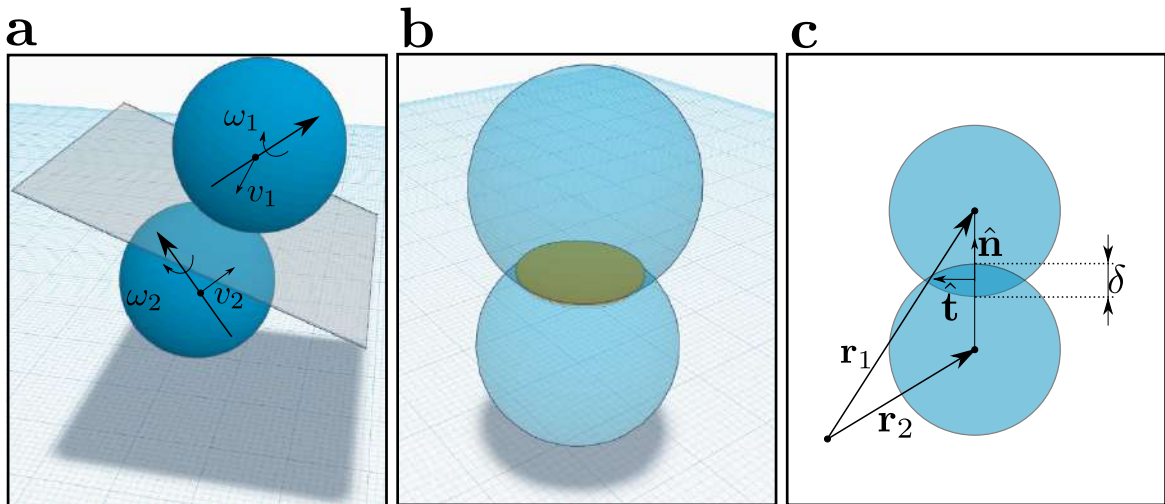


Figura 4.2: Esquema mostrando três perspectivas da interação de contato entre duas esferas de raio r . Em **a**, duas esferas com velocidades angulares ω_1 e ω_2 com seus centros de massa se movendo a velocidades \mathbf{v}_1 e \mathbf{v}_2 . No meio e em transparência, temos o plano de colisão que é usado como referência para a decomposição das forças e dos momentos. A normal do plano é paralela ao eixo que liga os centros das esferas. Em **b**, é mostrada a área circular entre duas esferas formada pela deformação elástica devido à aplicação de uma força. A relação entre força e área deformada é dada pela Eq. (4.1) e pela Eq. (4.2), respectivamente. Em **c**, é mostrada a projeção das esferas no plano. Em DM a deformação das esferas é parametrizada por um comprimento de penetração δ . Quando a distância entre os centros é menor do que a soma dos raios, aplica-se uma força de repulsão do tipo $F \propto k\delta^\alpha$. Nessa força, $\delta = 2r - (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2) \cdot \hat{\mathbf{n}}$, k é uma constante que representa a dureza do material e α é um expoente que controla a resposta entre comprimento e força. Para $\alpha = 1$, temos o modelo linear e, para $\alpha = 3/2$, temos o modelo de Hertz. Nessa tese, iremos usar o modelo linear, pois ele tem a vantagem de ter solução analítica e de ter um tempo de escala intrínseco.

Na Eq. 4.1 e na Eq. 4.2, E é o módulo de Young e ν é a razão de Poisson. Para o Neodímio, as propriedades mecânicas são $E = 37.5 \times 10^6 \text{ N/m}^2$ e $\nu = 0.28$ [218]. Modelar uma colisão inelástica em DM requer dois ingredientes: uma força repulsiva e uma força dissipativa. A maneira mais simples de conseguir tal efeito físico é usar o oscilador harmônico amortecido. Assim, na direção normal ao plano de colisão, temos as seguintes forças :

$$\mathbf{F}_n = -k_n \delta^\alpha \hat{\mathbf{n}}_{12} - \gamma_n (\hat{\mathbf{n}}_{12} \cdot \mathbf{v}_{12}) \hat{\mathbf{n}}_{12} \quad (4.3)$$

Na Eq. 4.3, a constante k_n representa a dureza da esfera, γ_n é uma constante que representa o termo de amortecimento normal, $\mathbf{r}_{12} = \mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1 = |\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1| \hat{\mathbf{n}}_{12}$ é o vetor que liga os centros das esferas e $\mathbf{v}_{12} = \dot{\mathbf{r}}_1 - \dot{\mathbf{r}}_2$ é o vetor que representa a velocidade relativa.

Quando $\alpha = 1$, temos o modelo linear, também conhecido como *linear spring-dashpot*,

o qual tem a vantagem de posuir solução analítica. Com as condições iniciais $\delta(t=0) = 0$ e $\dot{\delta}(t=0) = v_c$ são permitidos os cálculos analíticos do coeficiente de restituição normal e do tempo de colisão normal, dados pela Eq. 4.4 e pela Eq. 4.5 respectivamente.

$$e_n = \exp\left(-\frac{\gamma_n}{2m_{ef}}t_n\right) \quad (4.4)$$

$$t_n = \pi \left[\frac{k_n}{m_{ef}} - \left(\frac{\gamma_n}{2m_{ef}} \right)^2 \right]^{-1/2} \quad (4.5)$$

Em que $m_{ef} = (m_1 m_2)/(m_1 + m_2)$ é o quociente do produto pela soma das massas. Um programa usando DM reproduz um coeficiente de restituição e_n com um erro na ordem de 10^{-4} quando o passo de tempo na simulação está ajustado para que haja 100 passos de tempo durante a colisão, ou seja, $\Delta t = t_n/100$ [219].

Quando $\alpha = 3/2$, temos o modelo de Hertz. A substituição de α na Eq. 4.3 possui solução analítica quando a colisão é elástica, ou seja, $\gamma_n = 0$. O tempo de colisão para esse caso é :

$$t_n = 3.21 \left(\frac{m_{ef}}{k_n} \right)^{2/5} (v_c^i)^{-1/5} \quad (4.6)$$

Diferente do caso linear, o tempo de colisão, no modelo de Hertz, depende da velocidade de pré-colisão, isso significa dizer que não existe tempo de escala intrínseco na colisão para esse modelo, assim, é necessário ajustar o tempo de passo na integração Δt pela velocidade relativa máxima esperada na simulação. Vários modelos tem sido testados, como mostra Fig. 4.3, contudo, o modelo linear é o que melhor representa um coeficiente de restituição independente da velocidade de pré-colisão.

Para uma simulação mais real em materiais granulares é preciso considerar colisões com rotação e atrito. Nessa situação, é necessário que o modelo de força de contato tenha uma componente tangente ao plano de colisão. Além disso, precisamos de um modelo de força de atrito cinético e estático que seja simples e validado experimentalmente [212]. O modelo de força tangencial que incorpora essas qualidades utiliza a Eq. 4.8, com $\mathbf{v}_{12}^t = |\mathbf{v}_{12}^t| \hat{\mathbf{v}}_{12}^t$ representando a velocidade relativa tangencial.

$$\mathbf{v}_{12}^t = \mathbf{v}_{12} - (\hat{\mathbf{r}}_{12} \cdot \mathbf{v}_{12}) \hat{\mathbf{r}}_{12} - \left(\frac{r_1 \omega_1 + r_2 \omega_2}{r_1 + r_2} \right) \times \mathbf{r}_{12} \quad (4.7)$$

$$\mathbf{F}_t = -\min(\gamma_s |\mathbf{v}_{12}^t|, \mu_e |\mathbf{F}_n|) \hat{\mathbf{v}}_{12}^t \quad (4.8)$$

Na Eq. 4.8, γ_s é o coeficiente de amortecimento, enquanto μ_e é o coeficiente de atrito estático. A força F_t é uma função contínua, mas não suave, atuando entre dois regimes: um de baixa velocidade e outro de grande velocidade relativa. O uso de funções descontínuas em DM pode levar a instabilidades numéricas [219]. Nessa tese, a interação de contato é representada pela soma da Eq. 4.3, para $\alpha = 1$, com a Eq. 4.8, levando a uma boa

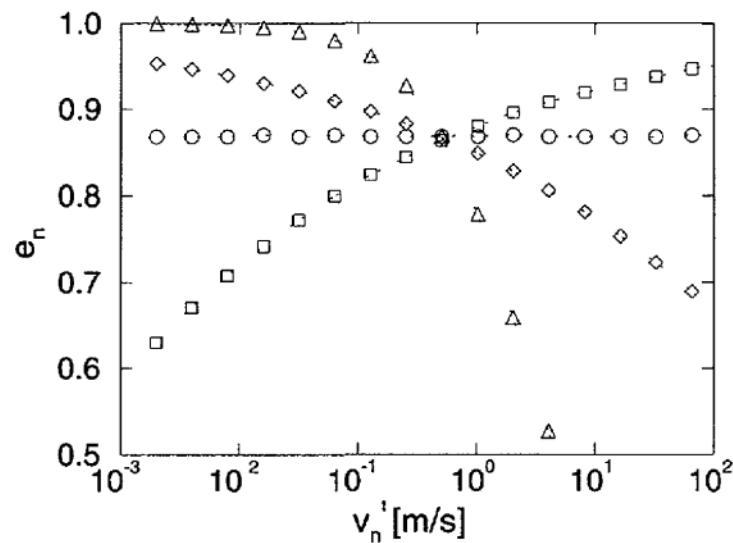


Figura 4.3: Coeficiente de restituição normal pela velocidade de pré-colisão [219]. (○) Modelo linear com amortecimento linear. (□) Modelo de Hertz com amortecimento linear. (◇) Modelo de Hertz-Kuwabara-Kono. (△) Modelo de Walton-Braun.

descrição quantitativa e qualitativa entre experimento e simulação, mostrada no Capítulo 5.

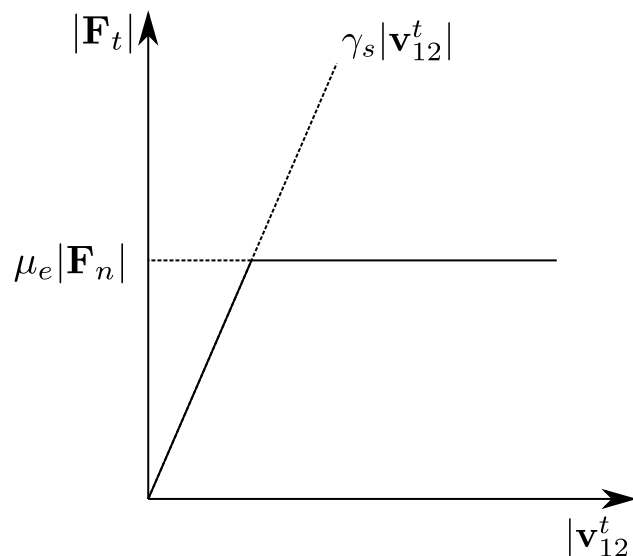


Figura 4.4: Modelo de atrito descrito pela Eq. 4.8. A força de atrito \mathbf{F}_t tem a mesma direção da velocidade tangencial relativa \mathbf{v}_{12}^t , mas sentido contrário. Para baixas velocidades \mathbf{v}_{12}^t , passa a atuar na Eq. 4.8, a força viscosa $\gamma_s |\mathbf{v}_{12}^t|$. Com esse modelo é possível fazer uma esfera rolar sem deslizar em um plano com atrito.

4.1.3 Runge Kutta 4^a Ordem (RK4)

São recorrentes na física, problemas que podem ser modelados por equações diferenciais. Uma equação diferencial é uma equação escrita em função de suas derivadas. A

solução dessas equações diferenciais geralmente leva a uma família de curvas. Para particularizar uma dessas curvas, é preciso usar condições iniciais. A exemplo, podemos citar a segunda lei de Newton, usada na mecânica clássica para descrever a evolução temporal de um sistema de partículas. Dadas as forças, as posições e as velocidades iniciais, a princípio, é possível calcular a trajetória das partículas. Poucos casos podem ser resolvidos analiticamente, sendo assim, é necessário o uso de outras abordagens, como métodos numéricos. A Eq. 4.9 e a Eq. 4.10 são equações diferenciais ordinárias de primeira e segunda ordem respectivamente.

$$\frac{dx(t)}{dt} = f(x) \quad (4.9)$$

$$\frac{d^2x(t)}{dt^2} = f(x) \quad (4.10)$$

Os métodos numéricos que são usados para resolver um sistema de equações do tipo Eq. 4.9 e Eq. 4.10 tem uma raiz comum, pois são construídos partindo da expansão em série de Taylor da função $x(t)$. Basicamente, o que difere um método do outro é o número de termos que se utiliza na expansão e a forma com a qual discretizamos as derivadas. O método de Euler resolve a Eq. 4.9, para as condições iniciais $x(t = 0) = x_0$ e $\dot{x}(t = 0) = v_0$, com:

$$x(t + \Delta t) = x(t) + \Delta t f(x(t)) \quad (4.11)$$

O método de Euler tem a vantagem de ser simples, mas apresenta alguns problemas. Em primeira análise, o erro de truncamento por passo Δt é muito maior do que em outros métodos, como *Leap-Frog* ou *Verlet*. Em segunda análise, o método é propenso a instabilidades numéricas para longos período de tempo de integração. A principal razão pela qual o método apresenta um erro de truncamento por passo maior do que outros métodos é que o cálculo da derivada, para evoluir a solução de $x(t)$ para $x(t + \Delta t)$, usa apenas um ponto, $x(t)$, dado no começo do intervalo $[t, t + \Delta t]$, enquanto outros métodos usam um número par de pontos. Dessa maneira, a fórmula dada pela Eq. 4.11 é assimétrica no que diz respeito ao começo e ao fim do intervalo. A consequência dessa assimetria é que cada passo dado no método tem um erro local (erro por passo) na ordem de $O(\Delta t^2)$ e um erro global (erro em um dado tempo de integração) na ordem de $O(\Delta t)$ [220]. O método de Euler é dito de primeira ordem pelo erro global ser diretamente proporcional ao passo de integração Δt . O método de Euler não é recomendado pra uso prático, apenas para fins didáticos. Nessa tese, iremos usar o método Runge-Kutta.

O método Runge-Kutta pertence a uma classe de métodos, os quais usam mais de um ponto para estimar as derivadas, dando uma precisão melhor para a extrapolação da solução nos passos seguintes.

A principal lição aprendida pelo uso do método de Euler é a necessidade de desenvolver métodos simétricos. O sucesso do Runge-Kutta é devido à sua simetria com respeito ao começo e ao fim do intervalo integrado.

Por simetria, a Eq. 4.11 é numericamente igual a Eq. 4.12 quando usamos o extremo direito do intervalo $[t, t + \Delta t]$.

$$x(t + \Delta t) = x(t) + \Delta t f(x(t + \Delta t)) \quad (4.12)$$

A estratégia é combinar a Eq. 4.11 e a Eq. 4.12 em uma forma híbrida, como a Eq. 4.13

$$x(t + \Delta t) = x(t) + \Delta t f\left(\frac{x(t) + x(t + \Delta t)}{2}\right) \quad (4.13)$$

O problema na Eq. 4.12 é que não sabemos o valor de $x(t + \Delta t)$ para por no argumento da função f . Podemos fazer uma estimativa de f , exibida na Eq. 4.13, usando a Eq. 4.11, assim, temos:

$$x_{med} = x(t) + 0.5\Delta t f(x(t)) \quad (4.14)$$

$$x(t + \Delta t) = x(t) + \Delta t f(x_{med}) \quad (4.15)$$

A Eq. 4.15 é o método Runge-Kutta de segunda ordem. O método Runge-Kutta em ordens superiores usa médias ponderadas da função f , calculada no intervalo $[t, t + \Delta t]$. É comum o uso do método de quarta ordem. Pode-se usar métodos de ordem superior, contudo, quanto mais alta a ordem, mais termos precisam ser calculados para cada interação. Dessa maneira, na maioria dos problemas, não compensa, em tempo, ir além da quarta ordem. A solução da Eq.4.9, pelo método Runge-Kutta de quarta ordem, é calculada da seguinte maneira:

$$k1 = \Delta t f(x(t)) \quad (4.16)$$

$$k2 = \Delta t f\left(x(t) + \frac{k1}{2}\right) \quad (4.17)$$

$$k3 = \Delta t f\left(x(t) + \frac{k2}{2}\right) \quad (4.18)$$

$$k4 = \Delta t f\left(x(t) + \frac{k3}{2}\right) \quad (4.19)$$

$$x(t + \Delta t) = x(t) + \frac{k1}{6} + \frac{k2}{3} + \frac{k3}{3} + \frac{k4}{6} \quad (4.20)$$

A Eq.4.20 tem um erro local (erro por passo), na ordem de $O(\Delta t^5)$, e um erro global (erro em um dado tempo de integração), na ordem de $O(\Delta t^4)$.

A fórmula calcula os valores da solução no passo posterior $x(t + \Delta t)$ usando a solução do passo atual $x(t)$ adicionando a média ponderada de quatro incrementos $k1$, $k2$, $k3$ e $k4$.

Além da boa relação entre o erro e custo computacional, RK4 apresenta outras vantagens, como a facilidade de implementar funções que dependam da velocidade $f(\dot{x})$ [221] e a possibilidade de implementar um algoritmo com um passo de tempo Δt adaptativo [222, 223]. Equações diferenciais de segunda ordem, como a Eq. 4.10, podem ser resolvidas usando RK4, transformando-as em um sistema de duas equações diferenciais de primeira ordem, assim a Eq. 4.10, que é uma EDO de segunda ordem, torna-se um sistema de duas EDO de primeira ordem, formado pela a Eq. 4.21 e pela Eq. 4.22.

$$\frac{dx(t)}{dt} = y_1 \quad (4.21)$$

$$\frac{dy_1}{dt} = f(x) \quad (4.22)$$

4.2 Monte Carlo

O método de **Monte Carlo**, assim como o **Método de Elementos Discretos**, é uma ferramenta computacional utilizada para a solução de problemas físicos com um grande número de partículas. O diferencial do método **Monte Carlo** está no uso de conceitos da Mecânica Estatística de Equilíbrio [224], deixando-o na categoria de métodos numéricos **não-determinísticos**. Quando o problema em questão se resume a responder a seguinte pergunta: Qual a configuração de menor energia para um conjunto de N partículas? Para essa pergunta, o Monte Carlo vem como uma boa alternativa para a solução desse problema.

Uma versão particular do Método de Monte Carlo é conhecida como **Algoritmo Metropolis** [225]. O problema que esse algoritmo consegue resolver é de encontrar os microestados de mínima energia de um sistema físico em equilíbrio a uma dada temperatura T . Pela Mecânica Estatística de Equilíbrio, a distribuição de probabilidade para os microestados é a distribuição de *Boltzmann*. Os valores das variáveis macroscópicas do sistema em questão, podem ser calculadas como médias de seus valores em todos os seus microestados acessíveis. Para sistemas com um número muito grande de partículas, encontrar todos os microestados é uma tarefa quase impossível. A idéia básica do **Algoritmo Metropolis** consiste em uma escolha inicial de um microestado aleatório e efetuar uma sequência, absurdamente grande, de transições aleatórias, por um procedimento que será explicado, até encontrar um macroestado de equilíbrio. Ou seja, o critério de parada do algoritmo é que as médias sobre os microestados passam a ser constantes.

No Algoritmo Metropolis, é efetuado médias temporais ao invés de médias de ensemble. Para que o algoritmo seja válido o nosso sistema tem que ser considerado ergótico. Um sistema é dito ergótico, quando é possível atingir qualquer microestado, a partir de qualquer outro microestado, por uma sequência de transições. A consequência disso é que as médias temporais são iguais as médias de ensemble. Para completar as condições de validade do algoritmo, temos que ter um sistema que seja possível, através de uma sequência aleatória de transições entre os microestados, alcançar um macroestado de equilíbrio.

Supondo que o nosso sistema é composto por uma coleção de esferas magnetizadas, um microestado \mathcal{M} fica definido pelas posições e orientações dos dipolos, assim, para um conjunto de N esferas, cujo os dipolos estão paralelos a um plano $\mathcal{M} = (\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_N, \theta_1, \dots, \theta_N)$. O procedimento de sorteio das transições no algoritmo Metropolis, em um passo de tempo t , para um sistema em um microestado \mathcal{M} é:

1. Sorteia um microestado \mathcal{M}' . Isso pode ser feito alterando aleatoriamente o estado de uma i -ésima partícula. $\mathcal{M}' = (\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_i + \Delta\mathbf{r}, \dots, \mathbf{r}_N, \theta_1, \theta_i + \Delta\theta_i, \dots, \theta_N)$
2. Se a energia do estado \mathcal{M}' for menor ou igual a de \mathcal{M} , i.e., $E_{\mathcal{M}'} \leq E_{\mathcal{M}}$, aceita-se \mathcal{M}' como novo estado e passamos para o passo 4. Se acontecer o contrário, ou seja, $E_{\mathcal{M}'} > E_{\mathcal{M}}$, passamos para o passo 3.

3. Seja $\Delta E = E_{\mathcal{M}'} - E_{\mathcal{M}}$. Sorteamos um número r dentro de uma distribuição uniforme entre $0 < r < 1$. Se $r \leq \exp(-\Delta E/k_B T)$, aceita-se o microestado $E_{\mathcal{M}'}$, caso contrário rejeita-se a transição e retorne ao passo 1.
4. Calcular as variáveis de interesse, i.e., energia total, magnetização, ...

4.2.1 Estruturas versus Energia

A relação entre a configuração de menor energia de *spins* e o padrão espacial, formado por esferas magnetizadas, foi muito bem estudada em [226, 227] pelo uso da técnica Monte Carlo. A configuração de menor energia para $N \leq 3$ é a cadeia linear [227]. Para $4 \leq N \leq 17$, há uma mudança significativa na estrutura de menor energia, passando de uma cadeia linear para uma estrutura na forma de uma cadeia circular [226].

Para $N > 17$, há novamente uma mudança na estrutura de menor energia, surgindo, assim, padrões triangulares e hexagonais, como mostra a Fig. 4.5. O arranjo poligonal, organizado como camadas de uma cebola, é um padrão que favorece a minimização da energia no *self-assembly* de esferas magnéticas confinadas em $2D$. Com isso, tais estruturas podem ser vistas como uma referência de estados fundamentais, livres de defeitos geométricos. De fato, todas as estruturas no estado fundamental, para $1 \leq N \leq 18$, estão livres de defeitos.

O primeiro defeito ocorre para $N = 19$ e como exibido na Fig. 4.5, tal padrão corresponde a um máximo local de energia por partícula. Assim, uma *flambagem* local ocorre na camada mais externa, devido à impossibilidade de que duas cadeias circulares de esferas concêntricas, uma com $N = 13$ e a outra com $N = 6$, se tocarem simultaneamente. Tal impossibilidade é devido à frustração geométrica descrita na Sec. 2.3.

Na Fig. 4.5, as estruturas com $N = 19, 21, 23, 25, 27$ apresentam máximos locais e, conseqüentemente, defeitos na forma de *flambagem* devido à frustração geométrica.

Do ponto de vista puramente geométrico é possível construir uma estrutura com $N = 19$ sem defeitos. Poderíamos pensar que para remover tal defeito bastaria acrescentar uma esfera no centro da estrutura com $N = 18$, exibida na Fig. 4.5. Todavia, para sistemas finitos, a introdução de um dipolo, em um sistema que já possui uma magnetização global nula, é energeticamente desfavorável [226].

Em materiais granulares não coesivos, confinados em cavidades cilíndricas e sujeitos à compressão axial, a flambagem local pode contribuir para o surgimento de alguns efeitos. A exemplo, temos a formação de bandas de cisalhamento macroscópicas [230], o surgimento de falhas incipientes¹ [231] e, por fim, a acumulação de energia elástica em *ensembles* granulares [232].

Na condição de equilíbrio, uma cadeia linear de esferas magnetizadas possui os dipolos alinhados paralelamente à cadeia. Entretanto, quando a cadeia é forçada a envergar, os dipolos não conseguem estar alinhados simultaneamente com a curva que interpola os

¹Em pilhas de areia, uma falha incipiente é um estado de equilíbrio crítico

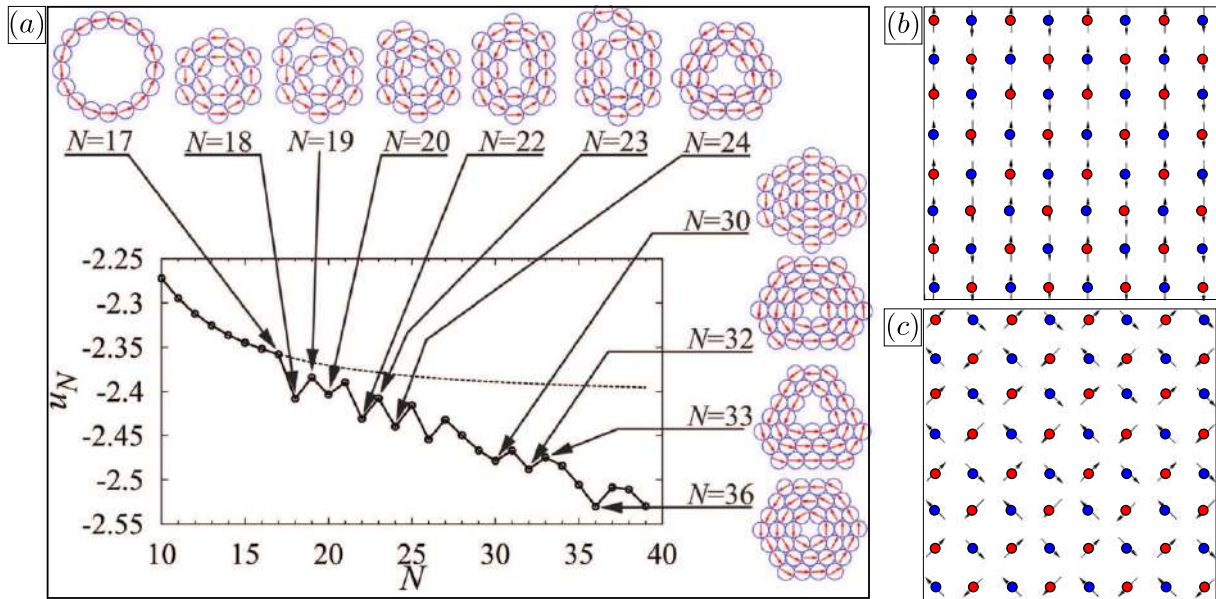


Figura 4.5: Estados fundamentais para esferas rígidas magnetizadas no plano. Em (a), a energia reduzida u_N pelo número de esferas N [226]. A orientação dos dipolos está destacada por setas vermelhas. A linha pontilhada corresponde à energia de uma cadeia circular. As configurações foram encontradas usando o método Monte Carlo. Em (b) e em (c), no limite termodinâmico com $T = 0$, quando os *spins* estão localizadas no plano e organizados em uma rede quadrada há apenas dois estados fundamentais, ambos com a mesma energia, com fase antiferromagnética e com um sistema continuamente degenerado [228, 229]. A configuração em (c) é obtida a partir de (b), pela rotação da subrede A (em vermelho) por $\theta = \pi/6$, e da subrede B (em azul), por $\theta = -\pi/6$.

centros das esferas e com os seus primeiros vizinhos [233], sendo consideradas, assim, frustradas. Nos nossos experimentos, a flambagem ocorre com um padrão de *loops* e eles armazenam energia na forma magneto-elástico.

Nessa configuração frustrada, os campos magnéticos dos dipolos exercem torque uns sobre os outros. A superposição combinada desses torques atua de forma a alinhar localmente a cadeia e conseqüentemente reduzir a sua curvatura. Esse mecanismo é análogo a um fio ou a uma barra elástica quando flexionada.

A formação de uma flambagem local, seja por uma causa geométrica [227] ou por uma competição de forças [234, 233], coloca a formação dos *loops* encontrados na Fig. 5.7 como uma consequência da frustração, levando as estruturas a um empacotamento frustrado.

Chen e Sooryakumar [234] mostraram experimentalmente a formação de padrões usando microesferas dipolares dentro de um potencial magnético confinante. O protocolo experimental leva a uma coleção de estruturas, onde uma delas apresenta subestruturas em forma de cadeia localizadas nas periferias do aglomerado. Tal subestrutura é similar à flambagem local exibida na Fig. 4.5 com $N = 19$, contudo a flambagem devido à frustração em [234], se deve ao fato de que há uma competição de forças de curta e de longa

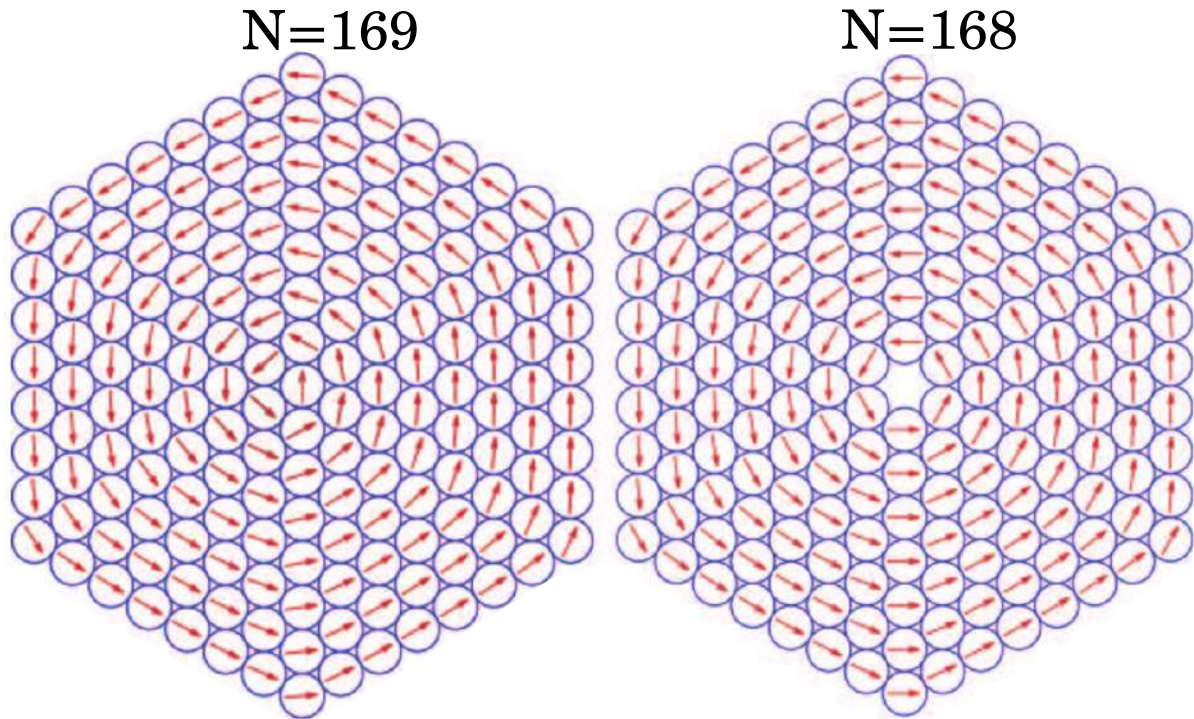


Figura 4.6: A estrutura hexagonal minimiza a energia de um conjunto de esferas magnetizadas para dipolos paralelos ao plano [226]. Essas estruturas hexagonais perfeitas possuem p esferas na camada mais externa. Para o presente caso, $p = 8$. Estruturas hexagonais sem buraco central possuem $N_{hexa} = 3p^2 - 3p + 1$ esferas, mas estruturas hexagonais com buraco possuem $N_{hexa} = 3p^2 - 3p$ esferas. No limite em que $p \rightarrow \infty$ a energia reduzida tende a $u_{plano} = -2.759$ [227].

distância.

RESULTADOS

O empacotamento e conformação de objetos similares a fios, tem promovido um crescente interesse devido a muitas aplicações na mecânica e na biologia. Um amplo espectro de instabilidades e padrões foi encontrado dependendo do atrito, da rigidez, do tamanho e do tipo de confinamento [9, 235, 236]. Ao adicionar forças atrativas, sistemas de automontagem como origamis foram concebidos [237]. Porém, muito menos se sabe quando o fio tem quiralidade, como é o caso de uma cadeia de partículas magnéticas. Na verdade, fios compostos de esferas magnéticas ocorrem na natureza em escalas diferentes. Eles se formam em escala nanométrica em coloides magnéticos [238] e como cadeias de magnetossomos em bactérias magnetostáticas [239, 240, 241]. Esferas magnéticas rígidas geram padrões automontados na escala microscópica [242, 243, 244], na escala mesoscópica [245, 226, 246, 247] e na escala macroscópica [248, 249, 250]. A anisotropia das forças magnéticas induz uma quiralidade na interação entre as seções da cadeia, resultando na automontagem de novos tipos de padrões, encontrados tanto experimentalmente como numericamente. Neste trabalho, consideraremos esferas de metal macroscópicas magnetizadas para estudar padrões de dobramento bidimensionais, injetando-as em uma célula de Hele-Shaw. A quiralidade das cadeias permite dois tipos fundamentalmente diferentes de interações locais que levam a diferentes padrões macroscópicos. Verificaremos que a transição de um padrão para o outro pode ser controlada experimentalmente ajustando-se o ângulo inclinação da célula de Hele-Shaw o que modifica o módulo da força de atrito entre as esferas e a superfície da célula.

Os experimentos foram realizados utilizando esferas de neodímio com $d = 5$ mm de diâmetro. Como mostrado na figura Fig. 5.1, a célula de Hele-Shaw consiste em uma placa preta coberta por um disco de acrílico transparente separado por um anel cilíndrico de acrílico plano de 6 mm altura e raio R . A célula pode ser inclinada por um ângulo θ com respeito a horizontal. Um motor de passo controla a velocidade de injeção com um o módulo igual a 0.43 mm/s, inserindo as esferas quase-estaticamente por um buraco no meio da placa de preta de acrílico. O processo foi filmado com uma câmera digital Canon PowerShot SX510 HS a 30 quadros por segundo, localizada a 27 cm acima da cavidade. A partir dos vídeo as imagens foram obtidas e usadas para determinar as posições das esferas por meio da segmentação de imagens, conforme discutido amplamente em capítulos anteriores.

Com momentos dipolares alinhados, as esferas magnéticas se organizam naturalmente

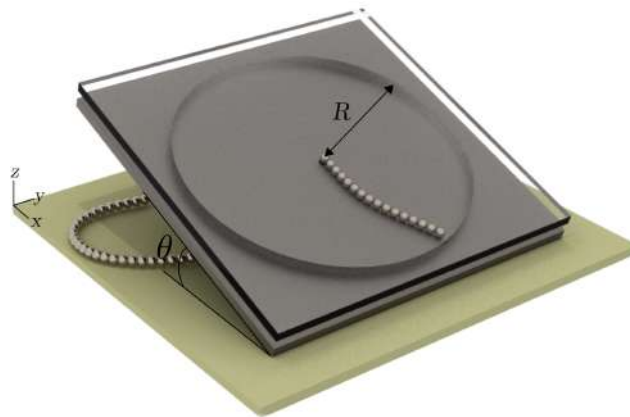


Figura 5.1: Configuração esquemática para o experimento realizado. A cadeia de esferas magnéticas são empurradas de baixo para cima, em uma célula de Hele-Shaw inclinada em θ graus. A célula de Hele-Shaw é formada por meio de um cavidade cilíndrica de raio R coberta por meio de uma placa de acrílico transparente.

em cadeias que exibem rigidez à flexão, apresentando uma *elastoplasticidade* macroscópica [251, 233]. Injetamos essas cadeias de esferas na cavidade pela base da célula. Ao entrar na célula, as esferas da cadeia e seus momentos magnéticos rotacionam, o que enfraquece as forças na direção da cadeia entre as contas próximas à entrada. Eventualmente, seja ao atingir a parede da célula ou devido ao atrito com a placa inferior, a cadeia desacelera e começa a envergar. Em seguida, ele forma laços que se aproximam cada vez mais do centro de injeção, até que a região próxima ao orifício não tenha volume livre para que outra esfera seja inserida. Neste ponto, o motor é parado e o padrão resultante é analisado. Na Figs. 5.2 mostramos quatro padrões obtidos com diferentes ângulos, $\theta = 0^\circ$ e 90° , com raios, $R = 20d$ e $40d$. Para $\theta = 0^\circ$ (ver Figs. 5.2a e 5.2c), nós observamos a formação do padrão poligonal, na qual assemelha a um forte visto de cima. No caso particular da Fig. 5.2a, devido ao grande tamanho da célula ($R = 40d$), a cadeia nunca toca as paredes, mas enverga antes, parando devido ao atrito com a placa inferior. Quando o experimento é realizado na célula menor ($R = 20d$), como mostrado na Fig. 5.2c, a corrente eventualmente atinge as paredes da célula e só então enverga, levando a estrutura poligonal. No caso do ângulo $\theta = 90^\circ$ (ver Figs. 5.2b e 5.2d), a estrutura se assemelha ao empilhamento de uma corda, assim, chamaremos de padrão *empilhado*.

Em padrões poligonais, os segmentos da cadeia com a mesma orientação dipolar se atraem, formando listras que exibem localmente simetria triangular. Essas listras se dobram espontaneamente, formando quinas com ângulos de 120° , como mostrado na Fig. 5.3. Nos padrões *empilhados*, por outro lado, possuem segmentos de cadeias com orientação dipolar oposta, que se atraem formando domínios que exibem simetria quadrada localmente. A formação dos padrões, tanto dos experimentos como das simulações, podem ser vistos no link : <https://www.youtube.com/channel/UCoux8Tub9d51ptKDaR7-lyQ/videos> .

A razão pela qual cadeias igualmente orientadas formam triângulos, enquanto que

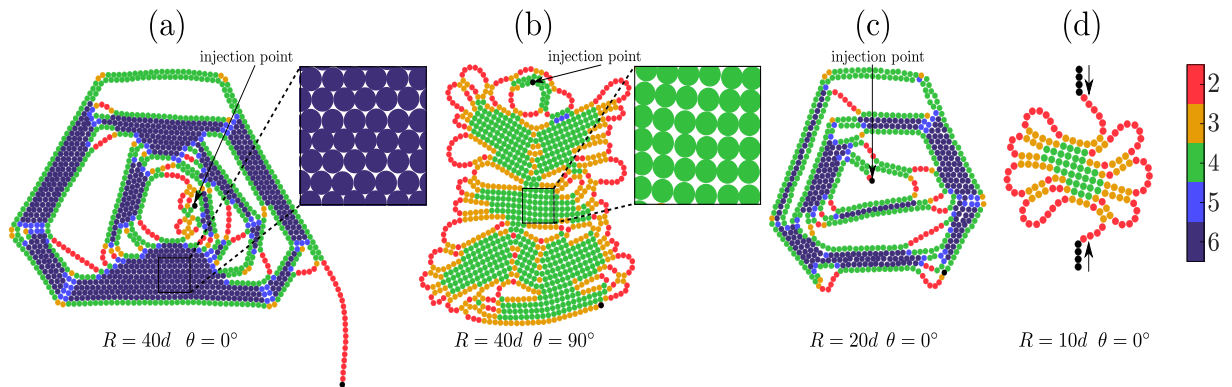


Figura 5.2: Padrões obtidos depois que nenhuma esfera pode ser injetada na células para (a), $R = 40d$ e $\theta = 0^\circ$; (b), $R = 40d$ e $\theta = 90^\circ$; (c), $R = 20d$ e $\theta = 0^\circ$. Em (d) duas cadeias são injetadas na célula diametralmente, conforme indicado pelas setas pretas, com $\theta = 0^\circ$. Para (a) e (c) observamos o padrão *poligonal* e para (b) e (d) o padrão *empilhado*. A área ampliada em (a) e (b) realça os dois padrões, o *poligonal* e o *empilhado*, respectivamente. A legenda de cores indica o número de primeiros vizinhos de cada esfera. Podemos observar, que no padrões poligonal, localmente, a maioria das partículas tem seis vizinhos, produzindo assim uma rede triangular, enquanto no padrões empilhado, quatro vizinhos mais próximos prevalecem, resultando em uma rede quadrada. Apenas em (a) a cadeia nunca atinge a parede da cavidade. Os pontos pretos em (a), (b) e (c) indica o ponto de injeção.

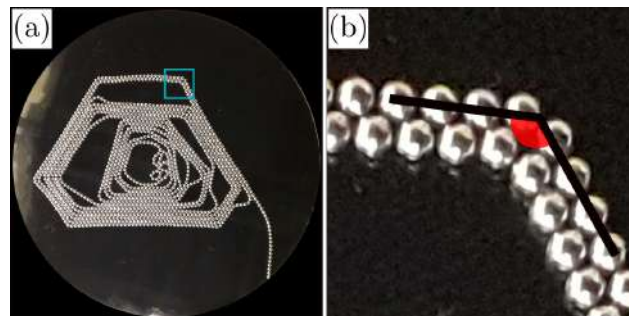


Figura 5.3: O padrão *poligonal* é formado por listras de cadeias paralelas com um arranjo localmente triangular. Essas listras criam espontaneamente quinas, formando ângulos de 120° , como mostrado em (a) e ampliado em (b).

cadeias com orientação oposta se organizam em quadrados, pode ser explicada através da minimização da energia magnética E . Essa energia é calculada pela soma de todos os pares de contas de acordo com,

$$E = - \sum_{i=1}^{N-1} \sum_{j=i+1}^N \mathbf{m}_i \cdot \mathbf{B}_j, \quad (5.1)$$

onde \mathbf{m}_i é o momento de dipolo da esfera i , N é o número total de e \mathbf{B}_j é o campo magnético gerado pela esfera j na posição da esfera i é dado por,

$$\mathbf{B}_j = \frac{\mu_0}{4\pi} \left[\frac{3(\mathbf{m}_j \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij})\hat{\mathbf{r}}_{ij} - \mathbf{m}_j}{r_{ij}^3} \right], \quad (5.2)$$

com \mathbf{r}_{ij} sendo o vetor posição que vai da esfera i ao centro da esfera j , $\hat{\mathbf{r}}_{ij} = \mathbf{r}_{ij}/|\mathbf{r}_{ij}|$, e μ_0 é a permeabilidade do vácuo. Para entender o comportamento do sistema com relação a energia de interação entre as esferas magnéticas, realizamos simulações de Monte Carlo considerando duas cadeias de dipolos paralelas usando a Eq.(5.1) como energia no fator de Boltzmann e descobrimos que, depois de diminuir a temperatura, as configurações energeticamente mais favoráveis para as orientações paralelas (antiparalelas) das cadeias eram de fato as configurações triangulares com todos os dipolos orientados em paralelo ao longo da direção das cadeias.

Todos os padrões se estabelecem em estruturas livres de escala. Por exemplo, isso pode ser visto a partir das áreas delimitadas por laços, como mostrado nas 5.4a e 5.4c. É evidente que existem áreas de todos os tamanhos. Para calcular as áreas, primeiro transformamos as imagens RGB em imagens em preto e branco. A análise é realizada usando a área adimensional $A_b^* = A_b/A_0$, onde A_b é a área do buraco e $A_0 = \pi(d/2)^2$ é a área da projeção da esfera, ambas medidas em pixel. Exemplos típicos desses domínios bidimensionais disjuntos são mostrado em Figs. 5.4a e 5.4c, obtida dos padrões das Figs. 5.2b e 5.2c, respectivamente. As distribuições das áreas mostradas nas Figs. 5.4b e 5.4d foram obtidas pela média de 15 experimentos cada, realizada para inclinações $\theta = 0^\circ$ e 90° , respectivamente.

Para determinar as distribuições, foram contabilizadas apenas as áreas com tamanho acima de 10 *pixels*. Conforme mostrado, ambas seguem uma lei de potência, $P(A_b^*) \propto A_b^{*\gamma}$, com expoente $\gamma = 2.31 \pm 0.03$ para o padrão *empilhado* ($\theta = 90^\circ$) e $\gamma = 0.85 \pm 0.03$ para o padrão *poligonal* ($\theta = 0^\circ$).

Pelo acréscimo da inclinação θ da cavidade, observamos uma transição do padrão *poligonal* para o *empilhado*. O parâmetro de ordem conveniente para caracterizar essa transição é a porcentagem ϕ_6 de esferas com 6 vizinhos. Na Fig. 5.5, mostramos ϕ_6 em função de θ para $R = 40d$ e $20d$ e vemos que abaixo do ângulo crítico $\theta_c = 19.4^\circ \pm 0.4$ o parâmetro de ordem ϕ_6 é finito e diferente de zero. A mudança em θ_c é abrupta, observado nas transições de primeira ordem, o que normalmente é esperado para as transições de fase morfológicas. Esta transição abrupta também é observada na presença de efeitos de tamanho finito, ou seja, quando a cadeia atinge a parede da célula por $R = 20d$. O detalhe da Fig. 5.5 mostra que a fração média de vizinhos ϕ com um número de vizinhos n no intervalo ($2 \leq n \leq 6$) muda drasticamente de $\theta = 0^\circ$ para $\theta = 90^\circ$.

A justificativa da transição de fase ser de primeira ordem, é que a simetria do sistema muda discretamente, de uma triangular para uma quadrada. Quando mudança de simetria em uma transição de fase não pode ser feita continuamente, ela é dita de primeira ordem [252].

Na Fig. 5.6 mostra como o número máximo N de esferas podem ser injetadas dentro da célula em função de θ . Para $R = 40d$, para o padrão *poligonal*, o número máximo N de

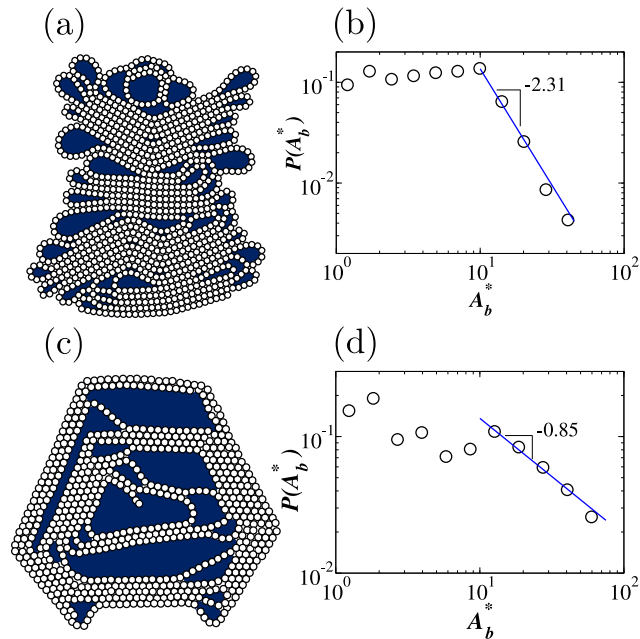


Figura 5.4: As áreas delimitadas pelos laços dentro da cadeia de esferas magnéticas são mostradas em azul para dois experimentos de injeção, resultando em (a) o padrão *empilhado* e (c) o padrão *poligonal*. A área adimensionalizada $A_b^* = A_b/A_0$ é calculada das imagens em preto e branco, onde A_b é a área do buraco medida em pixels e $A_0 = \pi(d/2)^2$. A distribuição das áreas estão mostradas em (b) para o padrão *empilhado* e em (d) para o padrão *poligonal*, calculada sob uma média de 15 realizações experimentais em cada caso. As linhas sólidas azuis foram feitas pelo ajuste dos mínimos quadrados resultando na lei de potência, $P(A_b^*) \propto A_b^{*-\gamma}$, calculada para áreas maiores do que 10 pixels, com expoentes $\gamma = 2.31 \pm 0.03$ e 0.85 ± 0.03 , para (b) e (d), respectivamente.

esferas abaixo do ângulo crítico θ_c , muda com θ , enquanto que para o padrão *empilhado*, acima do ponto crítico θ_c , N se torna independente de θ . Se R é pequeno ($R = 20d$), a cadeia atinge a parede da célula e, em seguida, os padrões não podem atingir seu tamanho total, com N se tornando substancialmente menor, conforme ilustrado em Fig. 5.6.

Para determinar o atrito estático máximo, formamos um triângulo de três esferas e o deixamos deslizar livremente sobre o plano inclinado que forma a base da cavidade. Este arranjo triangular permite inibir qualquer rolamento. Curiosamente, o ângulo máximo em que o triângulo começa a deslizar coincide com o ângulo crítico da transição $\theta_c = 19.4^\circ \pm 0.4$. Isso sugere que a transição de fase é desencadeada pelo deslizamento da cadeia, ou seja, acima (abaixo) do ângulo crítico a cadeia (não) deslizará, produzindo o padrão *empilhado* (poligonais).

Para ampliar o nosso entendimento sobre a formação dos padrões no interior da célula, agora em vez de empurrar as cadeias de esferas magnéticas na célula Hele-Shaw através de um orifício no centro, injetamos na célula por meio de entradas localizadas diametralmente opostas. Exemplo dos padrões formados, para diferentes tamanhos de cavidades, é mostrada na Fig. 5.7. Surpreendentemente, neste caso, é impossível criar

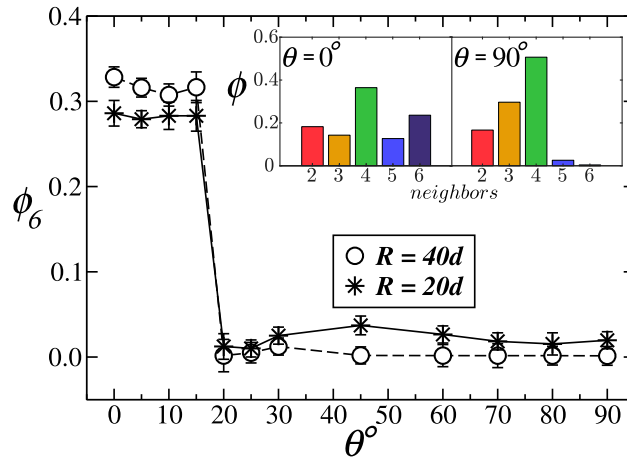


Figura 5.5: Parâmetro de ordem ϕ_6 da transição de fase morfológica em função da inclinação θ para $R = 40d$ (círculos) e $R = 20d$ (estrela). ϕ_6 é definido como a fração média de partículas que possuem seis vizinhos. Observa-se claramente um salto abrupto perto do ponto crítico $\theta_c = 19.4^\circ$, sendo a assinatura de uma transição de fase de primeira ordem. O detalhe da figura mostra como as frações médias ϕ de esferas com n vizinhos muda drasticamente quando o ângulo vai de $\theta = 0^\circ$ para $\theta = 90^\circ$, ambos para $R = 40d$.

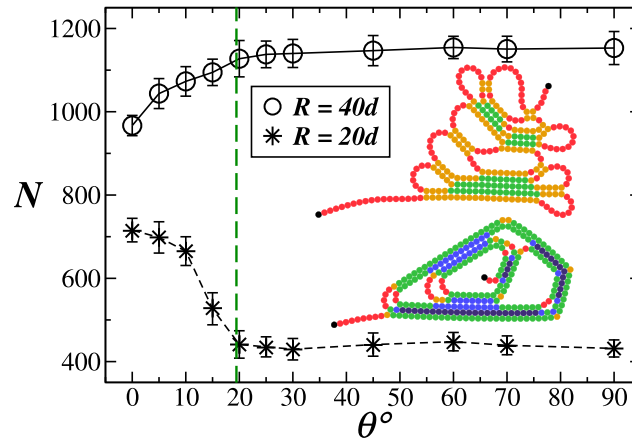


Figura 5.6: Número N de esferas no padrão em função do ângulo de inclinação θ da célula, para $R = 40d$ (círculos preenchidos) e $R = 20d$ (estrelas). A linha tracejada vertical verde em $\theta_c = 19.4^\circ$ corresponde ao coeficiente de atrito estático da base da célula. O coeficiente foi medido deixando três esferas, no formato de um triângulo, deslizar no plano da cavidade a fim de calcular o ângulo crítico que deixa as esferas na iminência de deslizar. A relação entre o ângulo crítico e o coeficiente de atrito estático é $\mu_e = \tan(\theta_c) \approx 0.35$. Acima de θ_c , o número de esferas N se torna independente de θ , mas depende do raio R . No detalhe da figura, mostramos padrões observados ao final das simulações para $\theta = 0^\circ$ sem (superior) e com (inferior) enfraquecimento das forças dipolares na entrada da cadeia.

padrões poligonais, ou seja, sempre aparecem apenas os padrões *empilhados*. Um exemplo para $\theta = 0^\circ$ em que duas cadeias são injetadas simultaneamente de lados opostos é mostrado na Fig. 5.2 d.

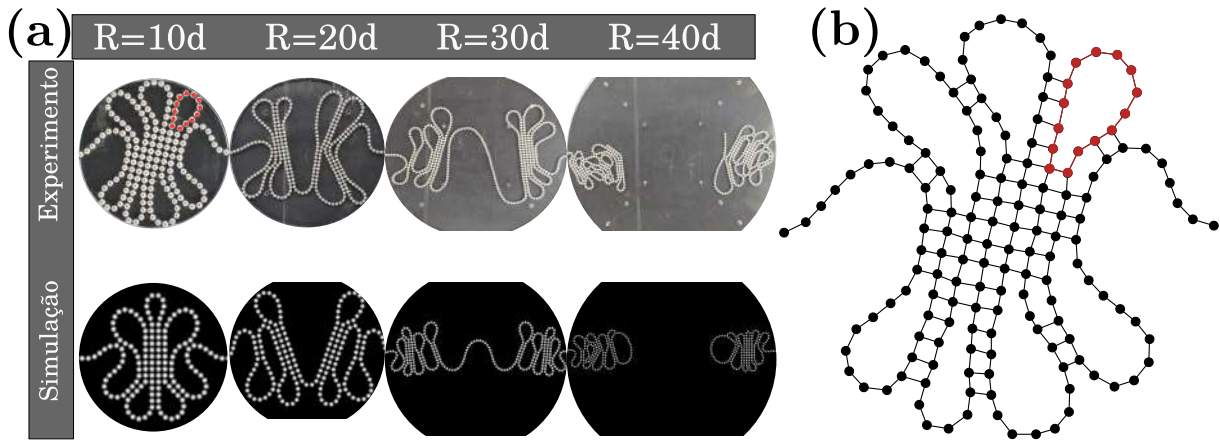


Figura 5.7: (a) Padrões obtidos pela injeção de uma cadeia de esferas magnéticas, injetada diametralmente, com raios $R = 10d$, $R = 20d$, $R = 30d$ e $R = 40d$. Primeira linha: experimentos realizados para quatro diferentes raios de cavidade. Segunda linha: simulações usando o Modelo de Elemento Discreto (MED). Em (b), Rede de contato (grafo) de um padrão de esferas obtidas nos experimentos em uma cavidade de raio $R = 10d$. Os vértices representam os centros das esferas enquanto as arestas são desenhadas quando a distância entre duas esferas é menor ou igual ao diâmetro das esferas. Um laço está destacado em vermelho.

A fim de compreender esta última observação experimental e obter uma visão mais profunda por trás do mecanismo que produz os padrões observados, também realizamos simulações aplicando o Modelo de Elemento Discreto (MED) [253] usando um algoritmo de Runge-Kutta de quarta ordem para integração e rotações [254]. Para este modelo estabelecemos que as forças de contato são escritas como,

$$\vec{F}_{ij}^c = F_n \hat{n}_{ij} + \vec{F}_s, \quad (5.3)$$

onde $F_n \hat{n}_{ij}$ e \vec{F}_s representam as forças normais e de cisalhamento entre as esféricas de contato. A força normal é dado por $F_n = k_n u_n$ onde k_n é a rigidez normal e u_n é a sobreposição de contato. As forças de cisalhamento são calculadas incrementalmente por $\Delta \vec{F}_s = -k_s \Delta \vec{r}_{ij}$, onde k_s é a rigidez ao cisalhamento e $\Delta \vec{r}_{ij}$ o vetor de deslocamento de cisalhamento relativo. O atrito entre as partículas é implementado de forma semelhante. A força magnética \vec{F}_{ij}^M e o torque $\vec{\tau}_{ij}^M$ entre as esferas i e j são assumidos como dipolos magnéticos pontuais localizados no centros das esferas, e podem ser calculados como

$$\vec{F}_{ij}^M = \nabla \left(\vec{m}_i \cdot \vec{B}_j \right), \quad (5.4)$$

e

$$\vec{\tau}_{i,j}^M = \vec{m}_i \times \vec{B}_j, \quad (5.5)$$

onde \vec{m}_i é o momento de dipolo da esfera i e \vec{B}_j é o campo magnético da esfera magnetizada j na posição da esfera i , como definida na Eq. (5.2). A magnitude dos dipolos magnéticos define a rigidez à flexão da cadeia de esferas magnéticas.

Em nossas simulações, nós inserimos a cadeia de esferas magnéticas em um regime quase-estático considerando duas situações distintas: uma pela base da cavidade e outra diametralmente. Como resultado, obtivemos o padrão *empilhado*, independente das escolhas dos parâmetros, como mostrado na Fig. 5.6 (inset superior). Apenas depois de enfraquecer sistematicamente a força entre as esferas mais próximas do ponto de injeção por um fator de dois, é que conseguimos reproduzir o padrão *poligonal*, como mostrado na Fig. 5.6 (inset inferior). De fato, quando as esferas são injetadas pela base, uma rotação de 90° é imposta assim que penetram na célula, conseqüentemente isso enfraquece localmente suas forças magnéticas. Esse enfraquecimento tem uma conseqüência dramática na evolução do padrão, conforme podemos constatar por meio dos vídeos produzidos durante os experimentos. Depois que a cadeia de esferas cessa seu movimento devido ao atrito ou depois de atingir a parede, ocorre uma flexão do fio em uma direção. Se nenhum enfraquecimento for imposto na entrada, depois de algum tempo, a rigidez à flexão da cadeia irá forçá-la a mudar a direção da cadeia, induzindo um comportamento oscilatório, formando o padrão *empilhado*. Somente se, na entrada os dipolos estiverem suficientemente enfraquecidos, a cadeia pode se curvar o suficiente para permitir que continue girando na mesma direção, formando, para os parâmetros escolhidos adequadamente, os padrões *poligonais*. Conforme descrito neste capítulo os efeitos da gravidade e do atrito das esferas na cavidade são determinantes para a diferença na formação dos padrões observados.

Para concluir a descrição quantitativa dos padrões encontrados, iremos analisar em detalhes a formação dos padrões em rede triangular. Esta configuração é muito mais complicada, pois corresponde ao modelo de Heisenberg em uma rede triangular conhecida por ser frustrada, exibindo muitos estados fundamentais em baixas temperaturas [255, 256, 257, 258].

Para uma cavidade com $R_{cav} = 10d$ obtivemos um padrão como mostrado na Fig.5.8. Vimos que, eventualmente, o espaço foi quase completamente preenchido com as esferas. Além de sua textura hexagonal, esse padrão se assemelha ao padrão "espiral" encontrado em empacotamento de fios, em Ref. [9]. Tal padrão também é bastante similar ao padrão encontrado à Fig. 4.6, na qual foi usada **MC**. Esse novo padrão denso tem um incrível diferencial, qual seja, a cristalização triangular, a qual é, indubitavelmente, mais energeticamente favorável do que a rede quadrada.

Para cavidades maiores do que $R_{cav} = 10d$ e $\theta = 0$, o padrão triangular persiste. Contudo, surpreendentemente, para $R_{cav} \geq 40d$, o número máximo de partículas empacotadas se torna independente do tamanho da cavidade e passa a depender apenas dos parâmetros intrínsecos ao sistema, como o atrito e a intensidade do momento de dipolo. Assim, a morfologia da estrutura empacotada *auto-organizada* é *self-limiting* (*auto-limitante*).

É essencial, em nanomateriais, ter o controle do tamanho das estruturas ordenadas formadas pelo processo de *self-assembly*. Entretanto, quando os constituintes possuem interações preferencialmente atrativas, como a interação dipolar, elas tendem a formar estruturas cristalinas infinitas. Uma maneira de controlar o tamanho da estrutura formada

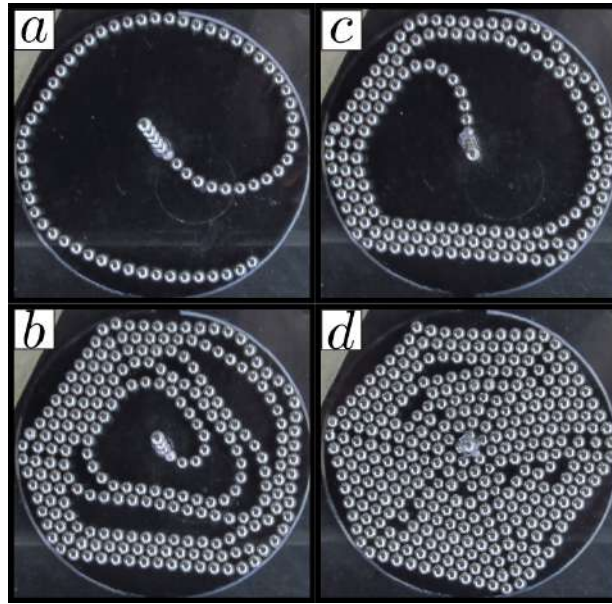


Figura 5.8: Quatro diferentes imagens durante o processo de empacotamento. A cadeia de dipolos é injetada por baixo e na posição central da cavidade. Durante o processo de injeção nenhuma aresta (contato) é quebrada enquanto novos contatos são formados. Para esse caso de injeção, em particular, o padrão apresenta uma simetria local triangular. A formação de defeitos na estrutura cristalina é um efeito da frustração, pois a configuração inicial dos dipolos *head-to-tail* compete com a estrutura triangular. No presente caso, a frustração é responsável por quebrar a simetria global hexagonal do sistema. Sendo assim, estamos diante de uma estrutura geometricamente frustrada (**EGF**).

é frustrar a ordem cristalina. Yasheng Yang et.al [259], simulando um sistema composto por partículas *patchy* esféricas com interações de pares quirais, mostrou a formação espontânea de estruturas com um tamanho preferido (*self-limiting*), as quais possuem uma simetria local hexagonal.

A formação de estruturas auto-organizadas (*self-assembly*) e *auto-limitantes*, em processos biológicos, também têm a sua importância. Fibras de proteínas extracelulares (e.g., celulose, colágeno, fibrina) constituem os elementos estruturais básicos na formação dos tecidos de plantas e de animais. Tais fibras possuem larguras laterais com tamanhos bem definidos, ou pelo menos caracterizados por distribuições não exponenciais, cujo tamanho mais provável é finito e diferente de zero [260]. Assim como o *self-assembly* de partículas *patchy* com tamanho característico, a formação de fibras com tamanho preferido também é controlada pela frustração.

A Fig. 5.9 mostra que as configurações de menor energia na rede triangular envolvem momentos dipolares magnéticos fortemente alinhados com o plano.

Para entender como o sistema evolui para a configuração de energia mínima, realizamos uma simulação de Monte Carlo com dipolos fixos em uma rede triangular com condição de contorno periódico em ambas as direções (superior-inferior e direita-esquerda). Na pre-

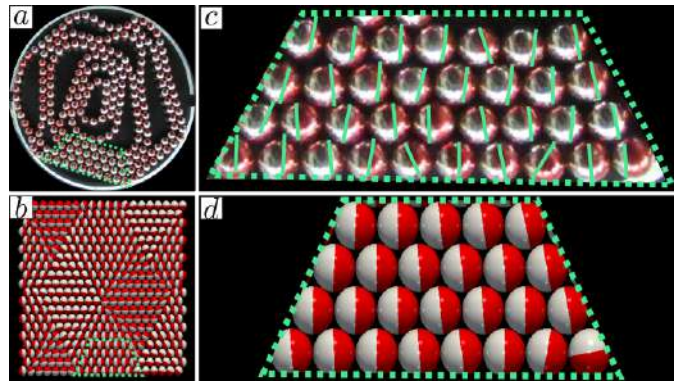


Figura 5.9: Configuração de menor energia magnética para uma rede triangular. Em (a), experimento injetando a cadeia por baixo da cavidade. Em (b), simulação usando MC para dipolos com posições fixas mas orientações livres com condição de contorno periódico na vertical e horizontal. Em ambos os casos, o norte magnético dos dipolos são identificados pelo hemisfério pintado em vermelho. Para uma melhor visualização no experimento, nós separamos o norte e o sul magnético por linhas verdes tracejadas em (c). Em (d), para uma melhor visualização, destacamos e ampliamos uma parte da Fig. 5.9 (b). Nós cercamos com uma linha verde tracejada parte do padrão obtido numericamente em (b), onde as orientações dos dipolos magnéticos apresentam considerável similaridade com o experimento, como mostrado em (c). Nessas regiões selecionadas, o padrão dos dipolos magnéticos corresponde a uma configuração de menor energia.

sente situação, os dipolos só podem girar (não se mover) para alcançar a configuração de mínima energia. Como no experimento, os resultados mostrados na Fig. 5.9b também revelam domínios de dipolos paralelos, todos fortemente alinhados com o plano da cavidade. Uma vez alcançada a configuração magnética metaestável, a leve pressão que empurra a corrente contra a parede da cavidade é suficiente para alcançar a configuração de empacotamento mais densa e estabilizar o padrão na Fig. 5.8. Desta feita, o empacotamento de esferas no arranjo triangular, claramente, leva a uma configuração de microestado de *spins* com domínios que possuem uma fase ferromagnética, contudo, a magnetização do sistema tende a zero, a qual é energeticamente favorável.

CONCLUSÕES

No presente trabalho, investigamos a formação de padrões obtido por meio da injeção de uma cadeia de esferas magnéticas em uma célula Hele-Shaw. Com base em experimentos realizados, foi constatado a existência de novos padrões que aparecem quando injetamos uma cadeia de fio magnéticos no interior de uma célula de Hele-Shaw considerando diferentes condições para esta injeção. Foi explorado experimentalmente e numericamente duas formas de injeção dessa cadeia de esfera, uma diametral e a outra basal. A anisotropia das forças magnéticas induz uma quiralidade nas interação entre as seções da cadeia de esferas, resultando no *self-assembly* de estruturas auto-similares.

Para a injeção basal, foi observado duas estruturas, uma é chamada de padrão *empilhado* e a outra é chamada de padrão *poligonal*. A primeira forma um núcleo com um arranjo de rede quadrada, adornada com subestruturas na forma de *loops*, já a segunda, forma um padrão localmente triangular. Para estas estruturas formadas foi observado um comportamento do tipo lei de potência para as áreas dos defeitos da rede cristalina. A distribuição das áreas dos defeitos formados nos dois padrões possuem uma forma $P(A_b^*) \sim (A_b^*)^{-\gamma}$ com expoentes $\gamma = 2.31 \pm 0.03$ e $\gamma = 0.85 \pm 0.03$ para os padrões empilhado e poligonal, respectivamente.

Foi observado para essas duas estruturas distintas (*empilhado* e *poligonal*), uma transição morfológica de primeira ordem. Essa transição de fase morfológica ocorre na condição de um ângulo crítico bem determinado, com o valor de $\theta_c = 19.4 \pm 0.4$. Abaixo do ângulo crítico, observamos um padrão com uma simetria local triangular, mas com uma simetria global quiral. Definimos esse padrão triangular como *polygonal pattern*. Acima de um ângulo crítico, surge um padrão semelhante ao que foi obtido pela injeção diametral, ou seja, com simetria local quadrada adornada por subestruturas na forma de *loops*. Definimos esse estrutura obtida acima do ponto crítico de *stacked pattern*.

Caracterizamos a transição morfológica entre os dois padrões experimentalmente e numericamente e explicamos a mudança na quiralidade como uma competição entre a flambagem induzida pela fricção e a gravidade. A fim de compreender a transição de fase morfológica observada experimentalmente realizamos simulações usando Dinâmica Molecular. Em nossas simulação, injetamos a cadeia de esferas magnéticas em um regime quase-estático. Injetamos tanto pelo centro como em um ponto próximo a fronteira da célula Hele-Shaw e obtivemos sempre o padrão do tipo *stacked*, independente das escolhas dos parâmetros. Contudo, quando enfraquecemos sistematicamente a força entre as duas

últimas esferas mais próximas do centro da célula, por pelo menos um fator de dois, reproduzimos o *polygonal pattern*.

Além da mudança na simetria local, o número máximo de esferas dentro da cavidade nessas estruturas apresentam uma dependência diferente quanto ao ângulo de inclinação e o raio da cavidade. Fixando o ângulo da cavidade em $\theta = 0^\circ$ e variando o raio da cavidade, o número máximo de esferas empacotadas se torna independente do raio da cavidade quando $R \geq 40d$, dependendo apenas de dois parâmetros intensivos, são eles: o coeficiente de atrito e o momento de dipolo da esfera. Fixando o raio e variando inclinação da cavidade, para $\theta < \theta_c$ o número máximo de esferas empacotadas tem uma dependência crescente e monotônica com θ , contudo, para $\theta > \theta_c$ o número máximo de esferas empacotadas se torna independente do raio da cavidade.

Aqui, relatamos novos padrões que surgem ao injetar uma cadeia de esferas magnéticas em uma célula Hele-Shaw. Descobrimos que, dependendo da inclinação da célula, ou seja, do efeito da gravidade, dois tipos completamente diferentes de padrões se auto-organizam. A transição de fase de primeira ordem entre os dois padrões ocorre no ângulo de atrito estático. O ingrediente crucial para a obtenção do padrão poligonal é o enfraquecimento das forças dipolares na entrada da célula. Esse enfraquecimento é sistematicamente construído ao realizar uma reorientação de 90° na cadeia. O empacotamento de cadeias interagentes em uma cavidade se aplica, por exemplo, a conformação de longas cadeias polímeros em glóbulos ou em capsídeos virais [2, 3], que na verdade não apenas exibem efeitos magnéticos, mas também possuem outros tipos de interações. Portanto, seria interessante incluir no futuro forças elétricas, entrópicas, de van der Waals e outras. Também seria importante estudar padrões formados por cadeias de interação que preenchem cavidades tridimensionais e investigar o efeito dos dipolos magnéticos e do atrito sobre esses padrões. Por fim, em experimentos preliminares, observamos que para velocidades de injeção na ordem de 10 cm/s , surge um padrão caótico.

REFERÊNCIAS

- [1] N. Francois, M. Saadatfar, M. Hanifpour, R. Cruikshank, and A. Sheppard, “Crystallisation in a granular material,” in *AIP Conference Proceedings*, vol. 1542, pp. 369–372, American Institute of Physics, 2013.
- [2] K. Richards, R. Williams, and R. Calendar, “Mode of DNA packing within bacteriophage heads,” *J. Mol. Biol.*, vol. 78, no. 2, pp. 255–259, 1973.
- [3] J. Kindt, S. Tzlil, A. Ben-Shaul, and W. M. Gelbart, “Dna packaging and ejection forces in bacteriophage,” *Proc. Natl. Acad. Sci.*, vol. 98, no. 24, pp. 13671–13674, 2001.
- [4] S. C. Johnston, R. T. Higashida, D. L. Barrow, L. R. Caplan, J. E. Dion, G. Hadenos, L. N. Hopkins, A. Molyneux, R. H. Rosenwasser, F. Vinuela, *et al.*, “Recommendations for the endovascular treatment of intracranial aneurysms: a statement for healthcare professionals from the committee on cerebrovascular imaging of the american heart association council on cardiovascular radiology,” *Stroke*, vol. 33, no. 10, pp. 2536–2544, 2002.
- [5] C. C. Donato, M. A. Gomes, and R. E. de Souza, “Crumpled wires in two dimensions,” *Phys. Rev. E*, vol. 66, no. 1, p. 015102, 2002.
- [6] C. Donato, M. Gomes, and R. de Souza, “Scaling properties in the packing of crumpled wires,” *Phys. Rev. E*, vol. 67, no. 2, p. 026110, 2003.
- [7] M. Gomes, V. Brito, M. Araújo, and C. Donato, “Crumpled states of a wire in a two-dimensional cavity with pins,” *Phys. Rev. E*, vol. 81, no. 3, p. 031127, 2010.
- [8] Y. C. Lin, Y. W. Lin, and T. M. Hong, “Crumpling wires in two dimensions,” *Phys. Rev. E*, vol. 78, no. 6, p. 067101, 2008.
- [9] N. Stoop, F. K. Wittel, and H. J. Herrmann, “Morphological phases of crumpled wire,” *Phys. Rev. Lett*, vol. 101, no. 9, p. 094101, 2008.
- [10] R. Vetter, F. Wittel, N. Stoop, and H. J. Herrmann, “Finite element simulation of dense wire packings,” *Eur. J. Mech.*, vol. 37, pp. 160–171, 2013.
- [11] R. Vetter, F. K. Wittel, and H. J. Herrmann, “Morphogenesis of filaments growing in flexible confinements,” *Nat. Comm.*, vol. 5, p. 4437, 2014.

-
- [12] H. Elettro, F. Vollrath, A. Antkowiak, and S. Neukirch, “Drop-on-coilable-fibre systems exhibit negative stiffness events and transitions in coiling morphology,” *Soft Matter*, vol. 13, no. 33, pp. 5509–5517, 2017.
- [13] T. M. Knowlton, G. Klinzing, W. Yang, and J. Carson, “The importance of storage, transfer, and collection,” *Chemical Engineering Progress;(United States)*, vol. 90, no. 4, 1994.
- [14] A. Rosato, K. J. Strandburg, F. Prinz, and R. H. Swendsen, “Why the brazil nuts are on top: Size segregation of particulate matter by shaking,” *Physical Review Letters*, vol. 58, no. 10, p. 1038, 1987.
- [15] N. Burtally, P. King, and M. R. Swift, “Spontaneous air-driven separation in vertically vibrated fine granular mixtures,” *Science*, vol. 295, no. 5561, pp. 1877–1879, 2002.
- [16] E. P. Maynard, “Practical solutions for solving bulk solids flow problems,” in *IEEE-IAS/PCA 2004 Cement Industry Technical Conference (IEEE Cat. No04CH37518)*, pp. 139–147, IEEE, 2004.
- [17] J. Tejchman, *Confined granular flow in silos: experimental and numerical investigations*. Springer Science & Business Media, 2013.
- [18] H. M. Jaeger and A. J. Liu, “Far-from-equilibrium physics: An overview,” *arXiv preprint arXiv:1009.4874*, 2010.
- [19] N. Iikawa, M. Bandi, and H. Katsuragi, “Sensitivity of granular force chain orientation to disorder-induced metastable relaxation,” *Physical review letters*, vol. 116, no. 12, p. 128001, 2016.
- [20] J. Yao, J. Wu, Y. Zhao, E. W. C. Lim, P. Cao, F. Zhou, C.-H. Wang, and N. Li, “Experimental investigations of granular shape effects on the generation of electrostatic charge,” *Particuology*, vol. 15, pp. 82–89, 2014.
- [21] H. Mishina, A. Hase, T. Nakase, and M. Dohi, “Mechanism of surface magnetization by friction of ferromagnetic materials,” *Journal of Applied Physics*, vol. 105, no. 9, p. 093911, 2009.
- [22] H. M. Jaeger, S. R. Nagel, and R. P. Behringer, “Granular solids, liquids, and gases,” *Reviews of modern physics*, vol. 68, no. 4, p. 1259, 1996.
- [23] S. M. R. García-Rojo, H.J. Herrmann, *Powders and Grains 2005, Two Volume Set: Proceedings of the International Conference on Powders and Grains 2005, Stuttgart, Germany, 18-22 July 2005*. CRC Press, 2005.

-
- [24] T. Shinbrot and F. Muzzio, “Nonequilibrium patterns in granular mixing and segregation,” *Physics Today*, vol. 53, no. 3, pp. 25–30, 2000.
- [25] A. Ikeda, L. Berthier, and P. Sollich, “Unified study of glass and jamming rheology in soft particle systems,” *Physical review letters*, vol. 109, no. 1, p. 018301, 2012.
- [26] S. Edwards *et al.*, “The full canonical ensemble of a granular system,” *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications*, vol. 353, no. 0, pp. 114–118, 2005.
- [27] A. M. Thomas Halsey, *Challenges in granular physics*. World Scientific, 2002.
- [28] D. Assimaki, E. Kausel, and A. Whittle, “Model for dynamic shear modulus and damping for granular soils,” *Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering*, vol. 126, no. 10, pp. 859–869, 2000.
- [29] A. Manacorda, *Lattice Models for Fluctuating Hydrodynamics in Granular and Active Matter*. Springer, 2018.
- [30] D. Bi, S. Henkes, K. E. Daniels, and B. Chakraborty, “The statistical physics of athermal materials,” *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.*, vol. 6, no. 1, pp. 63–83, 2015.
- [31] P. A. Gago, D. Maza, and L. A. Pugnaloni, “Ergodic-nonergodic transition in tapped granular systems: The role of persistent contacts,” *arXiv preprint arXiv:1703.03384*, 2017.
- [32] Q. Sun, G. Wang, and K. Hu, “Some open problems in granular matter mechanics,” *Progress in Natural Science*, vol. 19, no. 5, pp. 523–529, 2009.
- [33] J.-P. Bouchaud, P. Claudin, D. Levine, and M. Otto, “Force chain splitting in granular materials: A mechanism for large-scale pseudo-elastic behaviour,” *The European Physical Journal E*, vol. 4, no. 4, pp. 451–457, 2001.
- [34] B. Glasser and I. Goldhirsch, “Scale dependence, correlations, and fluctuations of stresses in rapid granular flows,” *Physics of Fluids*, vol. 13, no. 2, pp. 407–420, 2001.
- [35] S. Yuu and T. Umekage, “Constitutive relations and computer simulation of granular material,” *Advanced Powder Technology*, vol. 19, no. 3, pp. 203–230, 2008.
- [36] A. J. Liu and S. R. Nagel, *Jamming and rheology: constrained dynamics on microscopic and macroscopic scales*. CRC Press, 2001.
- [37] P. Charbonneau, J. Kurchan, G. Parisi, P. Urbani, and F. Zamponi, “Glass and jamming transitions: From exact results to finite-dimensional descriptions,” *Annual Review of Condensed Matter Physics*, vol. 8, pp. 265–288, 2017.

-
- [38] D. Helbing, “Traffic and related self-driven many-particle systems,” *Reviews of modern physics*, vol. 73, no. 4, p. 1067, 2001.
- [39] J. M. Carlson, J. S. Langer, and B. E. Shaw, “Dynamics of earthquake faults,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 66, no. 2, p. 657, 1994.
- [40] H. M. Jaeger and S. R. Nagel, “Physics of the granular state,” *Science*, vol. 255, no. 5051, pp. 1523–1531, 1992.
- [41] S. Field, J. Witt, F. Nori, and X. Ling, “Superconducting vortex avalanches,” *Physical review letters*, vol. 74, no. 7, p. 1206, 1995.
- [42] E. Nowak, O. Taylor, L. Liu, H. Jaeger, and T. Selinder, “Magnetic flux instabilities in superconducting niobium rings: Tuning the avalanche behavior,” *Physical Review B*, vol. 55, no. 17, p. 11702, 1997.
- [43] C. Olson, C. Reichhardt, and F. Nori, “Superconducting vortex avalanches, voltage bursts, and vortex plastic flow: Effect of the microscopic pinning landscape on the macroscopic properties,” *Physical Review B*, vol. 56, no. 10, p. 6175, 1997.
- [44] K. Safford, Y. Kantor, M. Kardar, and A. Kudrolli, “Structure and dynamics of vibrated granular chains: Comparison to equilibrium polymers,” *Physical Review E*, vol. 79, no. 6, p. 061304, 2009.
- [45] P.-R. Jeng, K. Chen, G.-j. Hwang, C.-M. Tien, C. Lien, K. To, and Y. Chou, “Packaging of granular bead chain,” *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 96, no. 4, p. 44005, 2011.
- [46] E. Ben-Naim, Z. Daya, P. Vorobieff, and R. E. Ecke, “Knots and random walks in vibrated granular chains,” *Physical review letters*, vol. 86, no. 8, p. 1414, 2001.
- [47] Y. Chou, E. Cho, T.-h. Chou, and T. Hong, “Elasticity transition and loop formation in vibrated bead chains: A simulation of polymer chains,” *The European Physical Journal E*, vol. 29, no. 2, pp. 157–161, 2009.
- [48] B. D.I., *An Introduction to Polymer Physics*. CUP, 2002.
- [49] P. Jing, F. Haque, D. Shu, C. Montemagno, and P. Guo, “One-way traffic of a viral motor channel for double-stranded dna translocation,” *Nano letters*, vol. 10, no. 9, pp. 3620–3627, 2010.
- [50] W. Earnshaw and S. Harrison, “Dna arrangement in isometric phage heads,” *Nature*, vol. 268, no. 5621, pp. 598–602, 1977.
- [51] M. C. Williams, “Stuffing a virus with dna: Dissecting viral genome packaging,” *Proceedings of the National Academy of Sciences*, vol. 104, no. 27, pp. 11125–11126, 2007.

-
- [52] D. N. Fuller, J. P. Rickgauer, P. J. Jardine, S. Grimes, D. L. Anderson, and D. E. Smith, “Tonic effects on viral dna packaging and portal motor function in bacteriophage $\varphi 29$,” *Proceedings of the National Academy of Sciences*, vol. 104, no. 27, pp. 11245–11250, 2007.
- [53] P. Huber, “Soft matter in hard confinement: phase transition thermodynamics, structure, texture, diffusion and flow in nanoporous media,” *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 27, no. 10, p. 103102, 2015.
- [54] T. C. Hales, “Sphere packings, i,” in *The Kepler Conjecture*, pp. 379–431, Springer, 2011.
- [55] T. C. Hales, “Sphere packings, ii,” *Discrete & Computational Geometry*, vol. 18, no. 2, pp. 135–149, 1997.
- [56] M. Hifi and R. M’hallah, “A literature review on circle and sphere packing problems: models and methodologies,” *Advances in Operations Research*, vol. 2009, 2009.
- [57] Y. Cui, “Generating optimal t-shape cutting patterns for circular blanks,” *Computers & Operations Research*, vol. 32, no. 1, pp. 143–152, 2005.
- [58] M. Hifi and R. M’Hallah, “Approximate algorithms for constrained circular cutting problems,” *Computers & Operations Research*, vol. 31, no. 5, pp. 675–694, 2004.
- [59] M. Hifi, V. T. Paschos, and V. Zissimopoulos, “A simulated annealing approach for the circular cutting problem,” *European Journal of Operational Research*, vol. 159, no. 2, pp. 430–448, 2004.
- [60] E. G. Teich, G. van Anders, D. Klotsa, J. Dshemuchadse, and S. C. Glotzer, “Clusters of polyhedra in spherical confinement,” *Proceedings of the National Academy of Sciences*, vol. 113, no. 6, pp. E669–E678, 2016.
- [61] A. Dinsmore, M. F. Hsu, M. Nikolaidis, M. Marquez, A. Bausch, and D. Weitz, “Colloidosomes: selectively permeable capsules composed of colloidal particles,” *Science*, vol. 298, no. 5595, pp. 1006–1009, 2002.
- [62] V. N. Manoharan, M. T. Elsesser, and D. J. Pine, “Dense packing and symmetry in small clusters of microspheres,” *Science*, vol. 301, no. 5632, pp. 483–487, 2003.
- [63] A. van Blaaderen, “Chemistry: Colloidal molecules and beyond,” *Science*, vol. 301, no. 5632, pp. 470–471, 2003.
- [64] Y. Wang, Y. Wang, D. R. Breed, V. N. Manoharan, L. Feng, A. D. Hollingsworth, M. Weck, and D. J. Pine, “Colloids with valence and specific directional bonding,” *Nature*, vol. 491, no. 7422, p. 51, 2012.

-
- [65] C. L. Phillips, E. Jankowski, B. J. Krishnatreya, K. V. Edmond, S. Sacanna, D. G. Grier, D. J. Pine, and S. C. Glotzer, “Digital colloids: reconfigurable clusters as high information density elements,” *Soft Matter*, vol. 10, no. 38, pp. 7468–7479, 2014.
- [66] G. Wäscher, H. Haußner, and H. Schumann, “An improved typology of cutting and packing problems,” *European journal of operational research*, vol. 183, no. 3, pp. 1109–1130, 2007.
- [67] M. Ganji, M. Docter, S. F. Le Grice, and E. A. Abbondanzieri, “Dna binding proteins explore multiple local configurations during docking via rapid rebinding,” *Nucleic acids research*, vol. 44, no. 17, pp. 8376–8384, 2016.
- [68] J. Balbo, P. Mereghetti, D.-P. Herten, and R. C. Wade, “The shape of protein crowders is a major determinant of protein diffusion,” *Biophysical journal*, vol. 104, no. 7, pp. 1576–1584, 2013.
- [69] R. J. Ellis, “Macromolecular crowding: obvious but underappreciated,” *Trends in biochemical sciences*, vol. 26, no. 10, pp. 597–604, 2001.
- [70] B. Hu, W. Margolin, I. J. Molineux, and J. Liu, “Structural remodeling of bacteriophage t4 and host membranes during infection initiation,” *Proceedings of the National Academy of Sciences*, vol. 112, no. 35, pp. E4919–E4928, 2015.
- [71] Q. Cao and M. Bachmann, “Dna packaging in viral capsids with peptide arms,” *Soft matter*, vol. 13, no. 3, pp. 600–607, 2017.
- [72] A. J. Spakowitz and Z.-G. Wang, “Dna packaging in bacteriophage: is twist important?,” *Biophysical journal*, vol. 88, no. 6, pp. 3912–3923, 2005.
- [73] M. Tark-Dame, R. van Driel, and D. W. Heermann, “Chromatin folding—from biology to polymer models and back,” *J Cell Sci*, vol. 124, no. 6, pp. 839–845, 2011.
- [74] W. J. Xie, L. Meng, S. Liu, L. Zhang, X. Cai, and Y. Q. Gao, “Structural modeling of chromatin integrates genome features and reveals chromosome folding principle,” *Scientific reports*, vol. 7, no. 1, p. 2818, 2017.
- [75] T. Hayashi and R. W. Carthew, “Surface mechanics mediate pattern formation in the developing retina,” *Nature*, vol. 431, no. 7009, p. 647, 2004.
- [76] D. B. Cines, T. Lebedeva, C. Nagaswami, V. Hayes, W. Masefski, R. I. Litvinov, L. Rauova, T. J. Lowery, and J. W. Weisel, “Clot contraction: compression of erythrocytes into tightly packed polyhedra and redistribution of platelets and fibrin,” *Blood*, vol. 123, no. 10, pp. 1596–1603, 2014.
- [77] P. Kalpaxis and G. Rickayzen, “Structure of a confined fluid of hard ellipsoids,” *Molecular Physics*, vol. 80, no. 2, pp. 391–406, 1993.

-
- [78] J. Henzie, M. Grünwald, A. Widmer-Cooper, P. L. Geissler, and P. Yang, “Self-assembly of uniform polyhedral silver nanocrystals into densest packings and exotic superlattices,” *Nature materials*, vol. 11, no. 2, p. 131, 2012.
- [79] J. Bennell, G. Scheithauer, Y. Stoyan, and T. Romanova, “Tools of mathematical modeling of arbitrary object packing problems,” *Annals of Operations Research*, vol. 179, no. 1, pp. 343–368, 2010.
- [80] J. Kallrath, “Packing ellipsoids into volume-minimizing rectangular boxes,” *Journal of Global Optimization*, vol. 67, no. 1-2, pp. 151–185, 2017.
- [81] U. Betke and M. Henk, “Densest lattice packings of 3-polytopes,” *Computational Geometry*, vol. 16, no. 3, pp. 157–186, 2000.
- [82] T. Higuchi, “Microphase-separated structures under spherical 3d confinement,” *Polymer Journal*, vol. 49, no. 6, p. 467, 2017.
- [83] M. Kleman, “Frustration in polymers,” *Journal de Physique Lettres*, vol. 46, no. 16, pp. 723–732, 1985.
- [84] P. Lambooy, T. Russell, G. Kellogg, A. Mayes, P. Gallagher, and S. Satija, “Observed frustration in confined block copolymers,” *Physical review letters*, vol. 72, no. 18, p. 2899, 1994.
- [85] S. Lévy, D. Fischer, R. Stannarius, B. Szabó, T. Börzsönyi, and J. Török, “Frustrated packing in a granular system under geometrical confinement,” *Soft matter*, vol. 14, no. 3, pp. 396–404, 2018.
- [86] R. M. Jean-François Sadoc, *Geometrical Frustration*. Collection Alea-Saclay: Monographs and Texts in Statistical Physics, Cambridge University Press, 1999.
- [87] R. M. Michell, I. Blaszczyk-Lezak, C. Mijangos, and A. J. Mueller, “Confinement effects on polymer crystallization: From droplets to alumina nanopores,” *Polymer*, vol. 54, no. 16, pp. 4059–4077, 2013.
- [88] A. Grosberg, “Two types of topological constraints in polymer networks,” *Macromolecules*, vol. 26, no. 12, pp. 3200–3204, 1993.
- [89] P. Agarwal, S. A. Kim, and L. A. Archer, “Crowded, confined, and frustrated: Dynamics of molecules tethered to nanoparticles,” *Physical review letters*, vol. 109, no. 25, p. 258301, 2012.
- [90] H. Shi, Y. Zhao, X. Dong, Y. Zhou, and D. Wang, “Frustrated crystallisation and hierarchical self-assembly behaviour of comb-like polymers,” *Chemical Society Reviews*, vol. 42, no. 5, pp. 2075–2099, 2013.

-
- [91] S. Torquato, "Perspective: Basic understanding of condensed phases of matter via packing models," *The Journal of chemical physics*, vol. 149, no. 2, p. 020901, 2018.
- [92] C. J. Grayce, "The conformation of hard-sphere polymers in hard-sphere solution calculated by single-chain simulation in a many-body solvent influence functional," *The Journal of chemical physics*, vol. 106, no. 12, pp. 5171–5180, 1997.
- [93] D. Saintillan, M. J. Shelley, and A. Zidovska, "Extensile motor activity drives coherent motions in a model of interphase chromatin," *Proceedings of the National Academy of Sciences*, vol. 115, no. 45, pp. 11442–11447, 2018.
- [94] R. Ladj, A. Bitar, M. M. Eissa, H. Fessi, Y. Mugnier, R. Le Dantec, and A. Elaissari, "Polymer encapsulation of inorganic nanoparticles for biomedical applications," *International journal of pharmaceutics*, vol. 458, no. 1, pp. 230–241, 2013.
- [95] E. L. Chaikof, "Engineering and material considerations in islet cell transplantation," *Annual review of biomedical engineering*, vol. 1, no. 1, pp. 103–127, 1999.
- [96] I. A. C. N. M. B. F. Gibbs, Selim Kermasha, "Encapsulation in the food industry: a review," *International journal of food sciences and nutrition*, vol. 50, no. 3, pp. 213–224, 1999.
- [97] T.-A. Read, D. R. Sorensen, R. Mahesparan, P. Ø. Enger, R. Timpl, B. R. Olsen, M. H. Hjelstuen, O. Haraldseth, and R. Bjerkvig, "Local endostatin treatment of gliomas administered by microencapsulated producer cells," *Nature biotechnology*, vol. 19, no. 1, p. 29, 2001.
- [98] J. Benito, N. Karayiannis, and M. Laso, "Confined polymers as self-avoiding random walks on restricted lattices," *Polymers*, vol. 10, no. 12, p. 1394, 2018.
- [99] P. Dobriyal, H. Xiang, M. Kazuyuki, J.-T. Chen, H. Jinnai, and T. P. Russell, "Cylindrically confined diblock copolymers," *Macromolecules*, vol. 42, no. 22, pp. 9082–9088, 2009.
- [100] G. Toulouse, "Theory of the frustration effect in spin glasses: I. communications de physique, 1977, 2," *Reprinted in Spin Glass Theory and Beyond*, pp. 99–103, 1987.
- [101] P. Schiffer and A. Ramirez, "Recent experimental progress in the study of geometrical magnetic frustration," *Comments on Condensed Matter Physics*, vol. 18, no. 1, pp. 21–50, 1996.
- [102] P. Schiffer, A. Ramirez, D. A. Huse, and A. Valentino, "Investigation of the field induced antiferromagnetic phase transition in the frustrated magnet: gadolinium gallium garnet," *Physical review letters*, vol. 73, no. 18, p. 2500, 1994.

-
- [103] J. Vannimenus and G. Toulouse, “Theory of the frustration effect. ii. ising spins on a square lattice,” *Journal of Physics C: Solid State Physics*, vol. 10, no. 18, p. L537, 1977.
- [104] J.-F. Sadoc and R. Mosseri, *Geometrical frustration*. Cambridge University Press, 2006.
- [105] J. Mooij, G. Schön, A. Shnirman, T. Fuse, C. Harmans, H. Rotzinger, and A. Verbruggen, “Superconductor–insulator transition in nanowires and nanowire arrays,” *New Journal of Physics*, vol. 17, no. 3, p. 033006, 2015.
- [106] D. U. Ferreira, E. A. Komives, and P. G. Wolynes, “Frustration in biomolecules,” *Quarterly reviews of biophysics*, vol. 47, no. 4, pp. 285–363, 2014.
- [107] J. Schönke, T. M. Schneider, and I. Rehberg, “Infinite geometric frustration in a cubic dipole cluster,” *Physical Review B*, vol. 91, no. 2, p. 020410, 2015.
- [108] L. Pustil’nik, “Solar flare phenomena as phase transition caused by frustration of current percolation,” *Astrophysics and Space Science*, vol. 264, no. 1-4, pp. 171–182, 1998.
- [109] Y. Wang, “Granular packing as model glass formers,” *Chinese Physics B*, vol. 26, no. 1, p. 014503, 2017.
- [110] B. C. den Hertog and M. J. Gingras, “Dipolar interactions and origin of spin ice in ising pyrochlore magnets,” *Physical review letters*, vol. 84, no. 15, p. 3430, 2000.
- [111] L. Savary and L. Balents, “Quantum spin liquids: a review,” *Reports on Progress in Physics*, vol. 80, no. 1, p. 016502, 2016.
- [112] R. Laughlin, “The relationship between high-temperature superconductivity and the fractional quantum hall effect,” *Science*, vol. 242, no. 4878, pp. 525–533, 1988.
- [113] C. Castelnovo, R. Moessner, and S. L. Sondhi, “Magnetic monopoles in spin ice,” *Nature*, vol. 451, no. 7174, pp. 42–45, 2008.
- [114] I. Hagemann, P. Khalifah, A. Ramirez, and R. J. Cava, “Geometric magnetic frustration in olivines,” *Physical Review B*, vol. 62, no. 2, p. R771, 2000.
- [115] D. Lee, J. Joannopoulos, J. Negele, and D. P. Landau, “Discrete-symmetry breaking and novel critical phenomena in an antiferromagnetic planar (xy) model in two dimensions,” *Physical review letters*, vol. 52, no. 6, p. 433, 1984.
- [116] S. H. Kang, S. Shan, A. Košmrlj, W. L. Noorduin, S. Shian, J. C. Weaver, D. R. Clarke, and K. Bertoldi, “Complex ordered patterns in mechanical instability induced geometrically frustrated triangular cellular structures,” *Physical review letters*, vol. 112, no. 9, p. 098701, 2014.

-
- [117] J. Cao, Y. Fan, and Z. Di, “Frustration of signed networks: How does it affect the thermodynamic properties of a system?,” *arXiv preprint arXiv:1810.10481*, 2018.
- [118] M. Azhar and M. Mostovoy, “Incommensurate spiral order from double-exchange interactions,” *Physical review letters*, vol. 118, no. 2, p. 027203, 2017.
- [119] S. Villain-Guillot, R. Dandoloff, A. Saxena, and A. Bishop, “Topological solitons and geometrical frustration,” *Physical Review B*, vol. 52, no. 9, p. 6712, 1995.
- [120] J. P. Sethna, “Frustration and curvature: Glasses and the cholesteric blue phase,” *Physical review letters*, vol. 51, no. 24, p. 2198, 1983.
- [121] M. Seul and D. Andelman, “Domain shapes and patterns: the phenomenology of modulated phases,” *Science*, vol. 267, no. 5197, pp. 476–483, 1995.
- [122] A. Kubetzka, P. Ferriani, M. Bode, S. Heinze, G. Bihlmayer, K. Von Bergmann, O. Pietzsch, S. Blügel, and R. Wiesendanger, “Revealing antiferromagnetic order of the fe monolayer on w (001): Spin-polarized scanning tunneling microscopy and first-principles calculations,” *Physical review letters*, vol. 94, no. 8, p. 087204, 2005.
- [123] L. Balents, “Spin liquids in frustrated magnets,” *Nature*, vol. 464, no. 7286, pp. 199–208, 2010.
- [124] S. Kobe and T. Klotz, “Frustration: How it can be measured,” *Physical Review E*, vol. 52, no. 5, p. 5660, 1995.
- [125] E. Vedmedenko, U. Grimm, and R. Wiesendanger, “Noncollinear magnetic order in quasicrystals,” *Physical review letters*, vol. 93, no. 7, p. 076407, 2004.
- [126] E. Y. Vedmedenko, *Competing interactions and patterns in nanoworld*. Wiley Online Library, 2007.
- [127] P. Charbonneau, A. Ikeda, J. Van Meel, and K. Miyazaki, “Numerical and theoretical study of a monodisperse hard-sphere glass former,” *Physical review E*, vol. 81, no. 4, p. 040501, 2010.
- [128] C. Xia, J. Li, Y. Cao, B. Kou, X. Xiao, K. Fezzaa, T. Xiao, and Y. Wang, “The structural origin of the hard-sphere glass transition in granular packing,” *Nature communications*, vol. 6, no. 1, pp. 1–9, 2015.
- [129] G. Parisi and F. Zamponi, “Mean-field theory of hard sphere glasses and jamming,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 82, no. 1, p. 789, 2010.
- [130] R. Candelier, O. Dauchot, and G. Biroli, “Building blocks of dynamical heterogeneities in dense granular media,” *Physical review letters*, vol. 102, no. 8, p. 088001, 2009.

-
- [131] J. P. Straley, “Effect of topological frustration on the freezing temperature,” *Physical Review B*, vol. 34, no. 1, p. 405, 1986.
- [132] M. Dutt and R. P. Behringer, “Effects of surface friction on a two-dimensional granular system: Cooling bound system,” *Physical Review E*, vol. 70, no. 6, p. 061304, 2004.
- [133] R. Behringer and M. Dutt, “A granular collider: Particle-substrate model and a numerical experiment,” in *5th International Conference on the Micromechanics of Granular Media: Powders and Grains 2005*, pp. 1253–1256, 2005.
- [134] F. Radjai and S. Roux, “Friction-induced self-organization of a one-dimensional array of particles,” *Physical Review E*, vol. 51, no. 6, p. 6177, 1995.
- [135] L. M. Lee, J. P. Ryan, Y. Lahini, M. Holmes-Cerfon, and S. M. Rubinstein, “Geometric frustration induces the transition between rotation and counterrotation in swirled granular media,” *Physical Review E*, vol. 100, no. 1, p. 012903, 2019.
- [136] A. Panaitescu, G. M. Grason, and A. Kudrolli, “Measuring geometric frustration in twisted inextensible filament bundles,” *Physical Review E*, vol. 95, no. 5, p. 052503, 2017.
- [137] P. Pieranski, L. Strzelecki, and B. Pansu, “Thin colloidal crystals,” *Physical Review Letters*, vol. 50, no. 12, p. 900, 1983.
- [138] M. Schmidt and H. Löwen, “Freezing between two and three dimensions,” *Physical review letters*, vol. 76, no. 24, p. 4552, 1996.
- [139] K. Nygård, S. Sarman, and R. Kjellander, “Packing frustration in dense confined fluids,” *The Journal of chemical physics*, vol. 141, no. 9, p. 094501, 2014.
- [140] R. V. Sole, *Phase Transitions (Primers in Complex Systems)*. Princeton University Press, 2011.
- [141] H. B. Callen, *Thermodynamics And An Introduction To Thermostatistics*. Wiley, 2 ed., 1985.
- [142] J. M. Kosterlitz and D. J. Thouless, “Ordering, metastability and phase transitions in two-dimensional systems,” *Journal of Physics C: Solid State Physics*, vol. 6, no. 7, p. 1181, 1973.
- [143] L. Landau, E. Lifshitz, and L. E. Reichl, “Statistical physics, part 1,” *Physics Today*, vol. 34, p. 74, 1981.
- [144] J. Le Guillou and J. Zinn-Justin, “Critical exponents for the n-vector model in three dimensions from field theory,” *Physical Review Letters*, vol. 39, no. 2, p. 95, 1977.

-
- [145] S. El-Showk, M. F. Paulos, D. Poland, S. Rychkov, D. Simmons-Duffin, and A. Vichi, “Solving the 3d ising model with the conformal bootstrap ii. -minimization and precise critical exponents,” *Journal of Statistical Physics*, vol. 157, no. 4-5, pp. 869–914, 2014.
- [146] S. Smirnov and W. Werner, “Critical exponents for two-dimensional percolation,” *arXiv preprint math/0109120*, 2001.
- [147] K. G. Wilson and J. Kogut, “The renormalization group and the ϵ expansion,” *Physics reports*, vol. 12, no. 2, pp. 75–199, 1974.
- [148] R. Imbihl and G. Ertl, “Oscillatory kinetics in heterogeneous catalysis,” *Chemical Reviews*, vol. 95, no. 3, pp. 697–733, 1995.
- [149] I. Farkas, D. Helbing, and T. Vicsek, “Mexican waves in an excitable medium,” *Nature*, vol. 419, no. 6903, pp. 131–132, 2002.
- [150] D. J. Sumpter, “The principles of collective animal behaviour,” *Philosophical transactions of the royal society B: Biological Sciences*, vol. 361, no. 1465, pp. 5–22, 2006.
- [151] A. Fingerle, K. Roeller, K. Huang, and S. Herminghaus, “Phase transitions far from equilibrium in wet granular matter,” *New Journal of Physics*, vol. 10, no. 5, p. 053020, 2008.
- [152] P. Eshuis, K. Van Der Weele, D. Van Der Meer, R. Bos, and D. Lohse, “Phase diagram of vertically shaken granular matter,” *Physics of Fluids*, vol. 19, no. 12, p. 123301, 2007.
- [153] A. Ikeda, L. Berthier, and G. Biroli, “Dynamic criticality at the jamming transition,” *The Journal of chemical physics*, vol. 138, no. 12, p. 12A507, 2013.
- [154] P. C. Hohenberg and B. I. Halperin, “Theory of dynamic critical phenomena,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 49, no. 3, p. 435, 1977.
- [155] J. J. Binney, N. J. Dowrick, A. J. Fisher, and M. E. Newman, *The theory of critical phenomena: an introduction to the renormalization group*. Oxford University Press, 1992.
- [156] J. Marro and R. Dickman, *Nonequilibrium phase transitions in lattice models*. Cambridge University Press, 2005.
- [157] M. C. Cross and P. C. Hohenberg, “Pattern formation outside of equilibrium,” *Reviews of modern physics*, vol. 65, no. 3, p. 851, 1993.

-
- [158] K. A. Takeuchi, “Experimental approaches to universal out-of-equilibrium scaling laws: turbulent liquid crystal and other developments,” *Journal of Statistical Mechanics: Theory and Experiment*, vol. 2014, no. 1, p. P01006, 2014.
- [159] H. M. Jaeger, T. Shinbrot, and P. B. Umbanhowar, “Does the granular matter?,” *Proceedings of the National Academy of Sciences*, vol. 97, no. 24, pp. 12959–12960, 2000.
- [160] I. S. Aranson and L. S. Tsimring, “Patterns and collective behavior in granular media: Theoretical concepts,” *Reviews of modern physics*, vol. 78, no. 2, p. 641, 2006.
- [161] P. B. Umbanhowar, F. Melo, and H. L. Swinney, “Localized excitations in a vertically vibrated granular layer,” *Nature*, vol. 382, no. 6594, pp. 793–796, 1996.
- [162] C. Bizon, M. Shattuck, J. Swift, W. McCormick, and H. L. Swinney, “Patterns in 3d vertically oscillated granular layers: simulation and experiment,” *Physical review letters*, vol. 80, no. 1, p. 57, 1998.
- [163] R. Fischer, P. Gondret, B. Perrin, and M. Rabaud, “Dynamics of dry granular avalanches,” *Physical review E*, vol. 78, no. 2, p. 021302, 2008.
- [164] I. Zuriguel, A. Garcimartín, D. Maza, L. A. Pugnaloni, and J. Pastor, “Jamming during the discharge of granular matter from a silo,” *Physical Review E*, vol. 71, no. 5, p. 051303, 2005.
- [165] A. Garcimartín, C. Mankoc, A. Janda, R. Arévalo, J. M. Pastor, I. Zuriguel, and D. Maza, “Flow and jamming of granular matter through an orifice,” in *Traffic and Granular Flow’07*, pp. 471–486, Springer, 2009.
- [166] K. Roeller, J. P. Clewett, R. Bowley, S. Herminghaus, and M. R. Swift, “Liquid-gas phase separation in confined vibrated dry granular matter,” *Physical review letters*, vol. 107, no. 4, p. 048002, 2011.
- [167] G. Castillo, N. Mujica, and R. Soto, “Fluctuations and criticality of a granular solid-liquid-like phase transition,” *Physical review letters*, vol. 109, no. 9, p. 095701, 2012.
- [168] G. H. Ristow, “Critical exponents for granular phase transitions,” *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 40, no. 6, p. 625, 1997.
- [169] Y. Jin and H. A. Makse, “A first-order phase transition defines the random close packing of hard spheres,” *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications*, vol. 389, no. 23, pp. 5362–5379, 2010.

-
- [170] E. Aharonov and D. Sparks, “Rigidity phase transition in granular packings,” *Physical Review E*, vol. 60, no. 6, p. 6890, 1999.
- [171] G. Castillo, N. Mujica, and R. Soto, “Universality and criticality of a second-order granular solid-liquid-like phase transition,” *Physical Review E*, vol. 91, no. 1, p. 012141, 2015.
- [172] H. Herrmann, “On the thermodynamics of granular media,” *Journal de Physique II*, vol. 3, no. 4, pp. 427–433, 1993.
- [173] H. A. Makse and J. Kurchan, “Testing the thermodynamic approach to granular matter with a numerical model of a decisive experiment,” *Nature*, vol. 415, no. 6872, pp. 614–617, 2002.
- [174] H. Tong, P. Tan, and N. Xu, “From crystals to disordered crystals: A hidden order-disorder transition,” *Scientific reports*, vol. 5, p. 15378, 2015.
- [175] M. Shattuck, R. Ingale, and P. M. Reis, “Granular thermodynamics,” in *AIP Conference Proceedings*, vol. 1145, pp. 43–50, American Institute of Physics, 2009.
- [176] P. Chaudhuri, L. Berthier, and W. Kob, “Universal nature of particle displacements close to glass and jamming transitions,” *Physical review letters*, vol. 99, no. 6, p. 060604, 2007.
- [177] P. P. Jose and I. Andricioaei, “Similarities between protein folding and granular jamming,” *Nature communications*, vol. 3, no. 1, pp. 1–8, 2012.
- [178] D. Bi, X. Yang, M. C. Marchetti, and M. L. Manning, “Motility-driven glass and jamming transitions in biological tissues,” *Physical Review X*, vol. 6, no. 2, p. 021011, 2016.
- [179] L. Oswald, S. Grosser, D. M. Smith, and J. A. Käs, “Jamming transitions in cancer,” *Journal of physics D: Applied physics*, vol. 50, no. 48, p. 483001, 2017.
- [180] F. Lechenault, O. Dauchot, G. Biroli, and J.-P. Bouchaud, “Critical scaling and heterogeneous superdiffusion across the jamming/rigidity transition of a granular glass,” *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 83, no. 4, p. 46003, 2008.
- [181] S. F. Edwards and R. Oakeshott, “Theory of powders,” *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications*, vol. 157, no. 3, pp. 1080–1090, 1989.
- [182] P. Bak, C. Tang, and K. Wiesenfeld, “Self-organized criticality: An explanation of the $1/f$ noise,” *Physical review letters*, vol. 59, no. 4, p. 381, 1987.
- [183] J. Tang and R. Behringer, “How granular materials jam in a hopper,” *Chaos: An Interdisciplinary Journal of Nonlinear Science*, vol. 21, no. 4, p. 041107, 2011.

-
- [184] S. Torquato and F. H. Stillinger, “Multiplicity of generation, selection, and classification procedures for jammed hard-particle packings,” *The Journal of Physical Chemistry B*, vol. 105, no. 47, pp. 11849–11853, 2001.
- [185] T. Majmudar, M. Sperl, S. Luding, and R. P. Behringer, “Jamming transition in granular systems,” *Physical review letters*, vol. 98, no. 5, p. 058001, 2007.
- [186] A. Bezdek, K. Bezdek, and R. Connelly, “Finite and uniform stability of sphere packings,” *Discrete & Computational Geometry*, vol. 20, no. 1, pp. 111–130, 1998.
- [187] M. F. Thorpe, “Rigidity theory and applications: edited by mf thorpe and pm duxbury,” 1999.
- [188] S. Torquato, A. Donev, and F. Stillinger, “Breakdown of elasticity theory for jammed hard-particle packings: conical nonlinear constitutive theory,” *International journal of solids and structures*, vol. 40, no. 25, pp. 7143–7153, 2003.
- [189] J. Bernal, “Geometry of the structure of monatomic liquids,” *Nature*, vol. 185, no. 4706, pp. 68–70, 1960.
- [190] C. Song, P. Wang, and H. A. Makse, “A phase diagram for jammed matter,” *Nature*, vol. 453, no. 7195, pp. 629–632, 2008.
- [191] H. A. Makse, D. L. Johnson, and L. M. Schwartz, “Packing of compressible granular materials,” *Physical review letters*, vol. 84, no. 18, p. 4160, 2000.
- [192] B. D. Lubachevsky and F. H. Stillinger, “Geometric properties of random disk packings,” *Journal of statistical Physics*, vol. 60, no. 5-6, pp. 561–583, 1990.
- [193] M. Skoge, A. Donev, F. H. Stillinger, and S. Torquato, “Packing hyperspheres in high-dimensional euclidean spaces,” *Physical Review E*, vol. 74, no. 4, p. 041127, 2006.
- [194] B. D. Guenther, *Modern optics*. Wiley, 1990.
- [195] F. Devernay and O. D. Faugeras, “Automatic calibration and removal of distortion from scenes of structured environments,” in *Investigative and Trial Image Processing*, vol. 2567, pp. 62–72, International Society for Optics and Photonics, 1995.
- [196] R. Hartley and A. Zisserman, *Multiple view geometry in computer vision*. Cambridge university press, 2003.
- [197] C. Bräuer-Burchardt, “A simple new method for precise lens distortion correction of low cost camera systems,” in *Joint Pattern Recognition Symposium*, pp. 570–577, Springer, 2004.

-
- [198] J. P. Barreto and K. Daniilidis, “Fundamental matrix for cameras with radial distortion,” in *Tenth IEEE International Conference on Computer Vision (ICCV’05) Volume 1*, vol. 1, pp. 625–632, IEEE, 2005.
- [199] A. Al-Sharadqah, N. Chernov, *et al.*, “Error analysis for circle fitting algorithms,” *Electronic Journal of Statistics*, vol. 3, pp. 886–911, 2009.
- [200] F. Bukhari and M. N. Dailey, “Automatic radial distortion estimation from a single image,” *Journal of mathematical imaging and vision*, vol. 45, no. 1, pp. 31–45, 2013.
- [201] A. Wang, T. Qiu, and L. Shao, “A simple method of radial distortion correction with centre of distortion estimation,” *Journal of Mathematical Imaging and Vision*, vol. 35, no. 3, pp. 165–172, 2009.
- [202] A. W. Fitzgibbon, “Simultaneous linear estimation of multiple view geometry and lens distortion,” in *Proceedings of the 2001 IEEE Computer Society Conference on Computer Vision and Pattern Recognition. CVPR 2001*, vol. 1, pp. I–I, IEEE, 2001.
- [203] V. K. Yadav, S. Batham, A. K. Acharya, and R. Paul, “Approach to accurate circle detection: Circular hough transform and local maxima concept,” in *2014 International Conference on Electronics and Communication Systems (ICECS)*, pp. 1–5, IEEE, 2014.
- [204] L. Ding and A. Goshtasby, “On the canny edge detector,” *Pattern Recognition*, vol. 34, no. 3, pp. 721–725, 2001.
- [205] E. R. Davies, *Computer and Machine Vision. Theory, Algorithms, Practicalities*. Academic Press, 4th ed., 2012.
- [206] Matlab, *Find circles using circular Hough transform*, 2020.
- [207] V. MJ, M. Valtonen, and H. Karttunen, *The three-body problem*. Cambridge University Press, 2006.
- [208] B. J. Alder and T. E. Wainwright, “Phase transition for a hard sphere system,” *The Journal of chemical physics*, vol. 27, no. 5, pp. 1208–1209, 1957.
- [209] J. Gibson, A. N. Goland, M. Milgram, and G. Vineyard, “Dynamics of radiation damage,” *Physical Review*, vol. 120, no. 4, p. 1229, 1960.
- [210] K. Kadau, T. C. Germann, and P. S. Lomdahl, “Large-scale molecular-dynamics simulation of 19 billion particles,” *International Journal of Modern Physics C*, vol. 15, no. 01, pp. 193–201, 2004.
- [211] S. Richard J. Sadus, *Molecular Simulation of Fluids: Theory, Algorithms and object orientation*. Elsevier, 2002.

-
- [212] D. C. Rapaport, *The Art of Molecular Dynamics Simulation*. Cambridge University Press, 2 ed., 2004.
- [213] A. J. Stace, “Molecular dynamic simulations of the elastic and inelastic surface scattering of nanoparticles,” *Physical Chemistry Chemical Physics*, vol. 16, no. 7, pp. 3077–3086, 2014.
- [214] P. Spijker, H. Ten Eikelder, A. J. Markvoort, S. Nedeia, and P. Hilbers, “Implicit particle wall boundary condition in molecular dynamics,” *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part C: Journal of Mechanical Engineering Science*, vol. 222, no. 5, pp. 855–864, 2008.
- [215] B. J. Leimkuhler, S. Reich, and R. D. Skeel, *Integration Methods for Molecular Dynamics*, pp. 161–185. New York, NY: Springer New York, 1996.
- [216] K. L. Johnson and K. L. Johnson, *Contact mechanics*. Cambridge university press, 1987.
- [217] P. Wriggers, *Computational contact mechanics*. J. Wiley & Sons, 2002.
- [218] A. Nayar, *The metals databook*. McGraw-Hill Companies, 1997.
- [219] J. Schäfer, S. Dippel, and D. Wolf, “Force schemes in simulations of granular materials,” *Journal de physique I*, vol. 6, no. 1, pp. 5–20, 1996.
- [220] R. S. Esfandiari, *Numerical Methods for Engineers and Scientists Using MATLAB®*, *Second Edition*. Chapman and Hall/CRC, 2nd ed. ed., 2017.
- [221] C. Scherer, “Métodos computacionais da física: versão scilab,” *Livraria da Física*, 2010.
- [222] W. Milne, “Note on the runge-kutta method,” *J. Res. Nat. Bur. Standards*, vol. 44, pp. 549–550, 1950.
- [223] L. Shampine and H. Watts, “The art of a runge-kutta code. part i,” *Mathematical Software*, vol. 3, pp. 257–275, 1977.
- [224] K. Binder, D. M. Ceperley, J.-P. Hansen, M. Kalos, D. Landau, D. Levesque, H. Mueller-Krumbhaar, D. Stauffer, and J.-J. Weis, *Monte Carlo methods in statistical physics*, vol. 7. Springer Science & Business Media, 2012.
- [225] N. Metropolis, “A. w. rosenbluth, m. n. rosenbluth, a,” *H. Teller and E. Teller, J. Chem. Phys.*, vol. 21, p. 1087, 1953.
- [226] R. Messina and I. Stanković, “Self-assembly of magnetic spheres in two dimensions: The relevance of onion-like structures,” *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 110, no. 4, p. 46003, 2015.

-
- [227] R. Messina, L. A. Khalil, and I. Stanković, “Self-assembly of magnetic balls: From chains to tubes,” *Physical Review E*, vol. 89, no. 1, p. 011202, 2014.
- [228] K. De’Bell, A. MacIsaac, I. Booth, and J. Whitehead, “Dipolar-induced planar anisotropy in ultrathin magnetic films,” *Physical Review B*, vol. 55, no. 22, p. 15108, 1997.
- [229] D. Schildknecht, M. Schütt, L. J. Heyderman, and P. M. Derlet, “Continuous ground-state degeneracy of classical dipoles on regular lattices,” *Physical Review B*, vol. 100, no. 1, p. 014426, 2019.
- [230] M. Oda and H. Kazama, “Microstructure of shear bands and its relation to the mechanisms of dilatancy and failure of dense granular soils,” *Geotechnique*, vol. 48, no. 4, pp. 465–481, 1998.
- [231] S. C. Wanjala, T. Pipatpongsa, and T. Nguyen, “Experimental realization of incipient active failure in sand heap by seismic loading,” *Granular Matter*, vol. 22, no. 2, pp. 1–16, 2020.
- [232] K.-H. Park, Y.-H. Jung, and T.-Y. Kwak, “Effect of initial granular structure on the evolution of contact force chains,” *Applied Sciences*, vol. 9, no. 22, p. 4735, 2019.
- [233] D. Vella, E. du Pontavice, C. L. Hall, and A. Goriely, “The magneto-elastica: from self-buckling to self-assembly,” *Proceedings of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, vol. 470, no. 2162, p. 20130609, 2014.
- [234] A. Chen and R. Sooryakumar, “Patterned time-orbiting potentials for the confinement and assembly of magnetic dipoles,” *Scientific reports*, vol. 3, p. 3124, 2013.
- [235] M. R. Shaebani, J. Najafi, A. Farnudi, D. Bonn, and M. Habibi, “Compaction of quasi-one-dimensional elastoplastic materials,” *Nat. Commun.*, vol. 8, no. 1, pp. 1–7, 2017.
- [236] M. R. Khadilkar and A. Nikoubashman, “Self-assembly of semiflexible polymers confined to thin spherical shells,” *Soft Matter*, vol. 14, no. 33, pp. 6903–6911, 2018.
- [237] V. B. Shenoy and D. H. Gracias, “Self-folding thin-film materials: From nanopolyhedra to graphene origami,” *MRS Bull.*, vol. 37, no. 9, p. 847, 2012.
- [238] L. J. Hill and J. Pyun, “Colloidal polymers via dipolar assembly of magnetic nanoparticle monomers,” *ACS Appl. Mater. Interfaces*, vol. 6, no. 9, pp. 6022–6032, 2014.
- [239] M. Hanzlik, M. Winklhofer, and N. Petersen, “Spatial arrangement of chains of magnetosomes in magnetotactic bacteria,” *Earth Planet. Sci. Lett.*, vol. 145, no. 1–4, pp. 125–134, 1996.

-
- [240] V. P. Shcherbakov, M. Winklhofer, M. Hanzlik, and N. Petersen, “Elastic stability of chains of magnetosomes in magnetotactic bacteria,” *Eur. Biophys. J.*, vol. 26, no. 4, pp. 319–326, 1997.
- [241] E. Alphandéry, F. Guyot, and I. Chebbi, “Preparation of chains of magnetosomes, isolated from magnetospirillum magneticum strain amb-1 magnetotactic bacteria, yielding efficient treatment of tumors using magnetic hyperthermia,” *Int. J. Pharm.*, vol. 434, no. 1-2, pp. 444–452, 2012.
- [242] S. M. Taheri *et al.*, “Self-assembly of smallest magnetic particles,” *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, vol. 112, no. 47, pp. 14484–14489, 2015.
- [243] S. L. Tripp, R. E. Dunin-Borkowski, and A. Wei, “Flux closure in self-assembled cobalt nanoparticle rings,” *Angew. Chem. Int. Ed.*, vol. 115, no. 45, pp. 5749–5751, 2003.
- [244] D. V. Talapin, E. V. Shevchenko, C. B. Murray, A. V. Titov, and P. Král, “Dipole-dipole interactions in nanoparticle superlattices,” *Nano Lett.*, vol. 7, no. 5, pp. 1213–1219, 2007.
- [245] K. Zahn and G. Maret, “Dynamic criteria for melting in two dimensions,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 85, no. 17, p. 3656, 2000.
- [246] L. Baraban, D. Makarov, M. Albrecht, N. Rivier, P. Leiderer, and A. Erbe, “Frustration-induced magic number clusters of colloidal magnetic particles,” *Phys. Rev. E*, vol. 77, no. 3, p. 031407, 2008.
- [247] M. Klokkenburg, R. P. Dullens, W. K. Kegel, B. H. Ern e, and A. P. Philipse, “Quantitative real-space analysis of self-assembled structures of magnetic dipolar colloids,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 96, no. 3, p. 037203, 2006.
- [248] J. Stambaugh, Z. Smith, E. Ott, and W. Losert, “Segregation in a monolayer of magnetic spheres,” *Phys. Rev. E*, vol. 70, no. 3, p. 031304, 2004.
- [249] N. Vandewalle and S. Dorbolo, “Magnetic ghosts and monopoles,” *New Journal of Physics*, vol. 16, no. 1, p. 013050, 2014.
- [250] J. Stambaugh, D. P. Lathrop, E. Ott, and W. Losert, “Pattern formation in a monolayer of magnetic spheres,” *Phys. Rev. E*, vol. 68, no. 2, p. 026207, 2003.
- [251] C. L. Hall, D. Vella, and A. Goriely, “The mechanics of a chain or ring of spherical magnets,” *SIAM J. Appl. Math.*, vol. 73, no. 6, pp. 2029–2054, 2013.
- [252] E. L. L D Landau, *Statistical Physics, Third Edition, Part 1: Volume 5 Volumen 5. Part 1*. Course of Theoretical Physics, Volume 5, Butterworth-Heinemann, 3 ed., 1980.

-
- [253] P. A. Cundall and O. D. Strack, “A discrete numerical model for granular assemblies,” *Geotechnique*, vol. 29, no. 1, pp. 47–65, 1979.
- [254] T. Pöschel and T. Schwager, *Computational granular dynamics: models and algorithms*. Springer, Berlin, 2005.
- [255] F. L. Buessen, M. Hering, J. Reuther, and S. Trebst, “Quantum spin liquids in frustrated spin-1 diamond antiferromagnets,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 120, no. 5, p. 057201, 2018.
- [256] S. Göttel, S. Andergassen, C. Honerkamp, D. Schuricht, and S. Wessel, “Critical scales in anisotropic spin systems from functional renormalization,” *Phys. Rev. B*, vol. 85, no. 21, p. 214406, 2012.
- [257] A. Keleş and E. Zhao, “Absence of long-range order in a triangular spin system with dipolar interactions,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 120, p. 187202, 2018.
- [258] A. P. Rosa, F. R. Cunha, and H. D. Cenicerros, “On minimal energy dipole moment distributions in regular polygonal agglomerates,” *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 421, pp. 269–282, 2017.
- [259] Y. Yang, R. B. Meyer, and M. F. Hagan, “Self-limited self-assembly of chiral filaments,” *Physical review letters*, vol. 104, no. 25, p. 258102, 2010.
- [260] G. M. Grason, “Chiral and achiral mechanisms of self-limiting, twisted bundle assembly,” *arXiv preprint arXiv:1909.05208*, 2019.

APÊNDICE - TRABALHOS PUBLICADOS

Morphological Transition between Patterns Formed by Threads of Magnetic Beads

Danilo S. Borges¹, Hans J. Herrmann^{1,2}, Humberto A. Carmona¹, José S. Andrade, Jr.¹, and Ascânio D. Araújo¹
¹*Departamento de Física, Universidade Federal do Ceará, Campus do Pici, 60455-760 Fortaleza, Ceará, Brazil*
²*PMMH, ESPCI, CNRS UMR 7636, 7 quai St. Bernard, 75005 Paris, France*

(Received 3 September 2020; accepted 18 February 2021; published 16 March 2021)

Magnetic beads attract each other, forming chains. We push such chains into an inclined Hele-Shaw cell and discover that they spontaneously form self-similar patterns. Depending on the angle of inclination of the cell, two completely different situations emerge; namely, above the static friction angle the patterns resemble the stacking of a rope and below they look similar to a fortress from above. Moreover, locally the first pattern forms a square lattice, while the second pattern exhibits triangular symmetry. For both patterns, the size distributions of enclosed areas follow power laws. We characterize the morphological transition between the two patterns experimentally and numerically and explain the change in polarization as a competition between friction-induced buckling and gravity.

DOI: [10.1103/PhysRevLett.126.118001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.126.118001)

The folding and crumpling of slender objects like wires is of increasing interest due to its many applications in mechanics and biology. A rich spectrum of instabilities and patterns has been found depending on friction, stiffness, aspect ratio, and the type of confinement [1–3]. By adding attractive forces, self-assembling systems like origamis have been devised [4]. However, much less is known when the wire has a polarization, as it is the case for a chain of magnetic particles. In fact, threads of magnetic beads occur in nature on different scales. They form on nanometric scale in magnetic colloids [5] and as chains of magnetosomes in magnetotactic bacteria [6–8]. Here we will consider macroscopic metal beads to study two-dimensional folding patterns by injecting them into a Hele-Shaw cell. The relative polarization of two chains allows for two fundamentally different types of local interactions that lead to new, completely dissimilar types of macroscopic patterns. In what follows, we show that the transition from one to the other can be controlled experimentally by adjusting the action angle of the gravitational forces on the system.

The injection of wires into cavities has been of interest to model the coiling of long DNA in globules and viral capsids [9–12], as well as a minimally invasive treatment of saccular aneurysms [13]. Fractal filling patterns have been observed, while the injection force diverges with a power law [14–17]. Three different filling patterns emerge depending on friction and the bending elastoplasticity of the wire: a spiral phase, folding phase, and chaotic phase [1,18]. Also, deformable cavities have been considered [19,20]. In this Letter, we replace the wire by a chain of magnetic beads and the cavity by a Hele-Shaw cell. Magnetic hard spheres generate self-assembled patterns in the microscopic scale [21–23], mesoscopic scale [24–27], and macroscopic scale [28–30]. The anisotropy of the magnetic forces induces different orientations in the

interaction between sections of the chain, resulting in the self-assembly of novel types of patterns, which we realize here experimentally and numerically.

The experiments were performed with magnetized neodymium beads of $d = 5$ mm diameter. As shown in Fig. 1, the Hele-Shaw cell consisted of a black plate covered with a transparent acrylic disk separated by a flat acrylic cylindrical ring of 6 mm height and radius R . The cell could be inclined by an angle θ . A step motor controlled a quasistatic injection at 0.43 mm/s into a hole in the middle of the black bottom plate. Images were recorded with a digital Canon PowerShot SX510 HS camera with 30 frames/s at 27 cm above the cavity and used to determine the particle positions through image segmentation.

With aligned dipole moments, the magnetic beads naturally assemble into chains that exhibit macroscopically

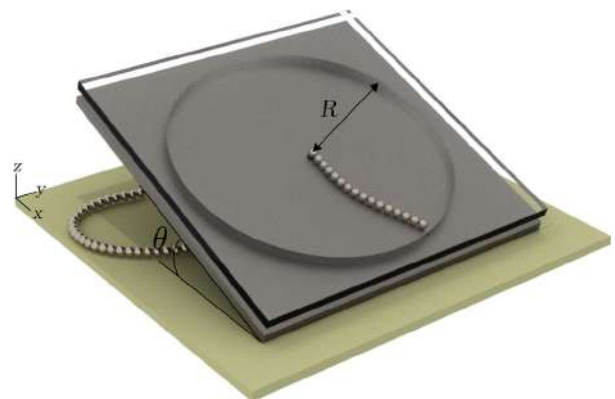


FIG. 1. Schematic setup of the experiment. The chain of magnetic beads is pushed from below into a Hele-Shaw cell with a transparent top plate inclined by θ deg. The acrylic cylindrical ring of radius R separates the two plates.

elastoplastic bending stiffness [31,32]. We injected such chains of beads into the cavity from the bottom into the cell. When they enter the cell, the spheres in the chain and their magnetic moments undergo rotations, which weakens the forces in the direction of the chain between the beads close to the entrance. Eventually, either by hitting the wall of the cell or due to the friction with the bottom plate, the chain slows down and starts buckling. It then forms loops that get closer and closer to the injection hole, until the region close to the hole is jammed and no more particles can be inserted. At this point, the motor is stopped and the resulting pattern is analyzed.

In Fig. 2 we show four of such patterns obtained for two different angles, $\theta = 0^\circ$ and 90° , and cell radii, $R = 20d$ and $40d$. For $\theta = 0^\circ$ [see Figs. 2(a) and 2(c)], we observe the formation of polygonal shaped patterns which look like fortresses viewed from above. In the particular case of Fig. 2(a), due to the larger size of the cell ($R = 40d$), the chain never reaches the walls, but buckles before, stopping due to friction with the bottom plate. When the experiment is performed in a smaller cell ($R = 20d$), as shown in Fig. 2(c), the chain eventually hits the walls of the cell and then buckles, leading to the polygonal structure. In the case of $\theta = 90^\circ$ [see Figs. 2(b) and 2(d)], the structure resembles the stacking of a rope, which we will thus call stacked patterns (see videos in the Supplemental Material [33]).

In polygonal patterns, chain pieces having the same dipolar orientation attract each other, forming stripes that locally exhibit triangular symmetry. These stripes spontaneously bend, forming pronounced corners of around 120° , as shown in Fig. 3. In stacked patterns, on the other hand, chain pieces having opposite dipolar orientation attract each other, forming domains that locally exhibit square symmetry (see schematic illustrations in Fig. S1 of the Supplemental Material [33]).

The reason why equally oriented chains form triangles, while chains of opposite orientation end up in squares, can be found by searching for the configurations of lowest magnetic energy E . This is obtained by summing over all pairs of beads in the pattern according to

$$E = - \sum_{i=1}^{N-1} \sum_{j=i+1}^N \mathbf{m}_i \cdot \mathbf{B}_j, \quad (1)$$

where \mathbf{m}_i is the dipole moment of particle i , N is the total number of particles, and \mathbf{B}_j is the magnetic dipole field of particle j at the position of particle i given by

$$\mathbf{B}_j = \frac{\mu_0}{4\pi} \left[\frac{3(\mathbf{m}_j \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij})\hat{\mathbf{r}}_{ij} - \mathbf{m}_j}{r_{ij}^3} \right], \quad (2)$$

with \mathbf{r}_{ij} being the vector pointing from the center of particle i to the center of particle j , $\hat{\mathbf{r}}_{ij} = \mathbf{r}_{ij}/|\mathbf{r}_{ij}|$, and μ_0 is the vacuum permeability. We performed Monte Carlo simulations of two parallel chains of magnetic dipoles using Eq. (1) as energy in the Boltzmann factor and found that, after decreasing the temperature, the energetically most favorable configurations for parallel (antiparallel) orientations of the chains were indeed the triangular (square) configurations with all dipoles oriented in parallel along the direction of the chains.

All patterns self-assemble into scale-free structures. For instance, this can be seen from the areas enclosed by loops, as shown in Figs. 4(a) and 4(c). Clearly there are areas of all sizes. To calculate the areas, we first transform the RGB images into black-white images. The analysis is performed using the dimensionless area $A_b^* = A_b/A_0$, where A_b is the area of the hole and $A_0 = \pi(d/2)^2$ is the area of the projection of one sphere, both measured in pixels. Typical

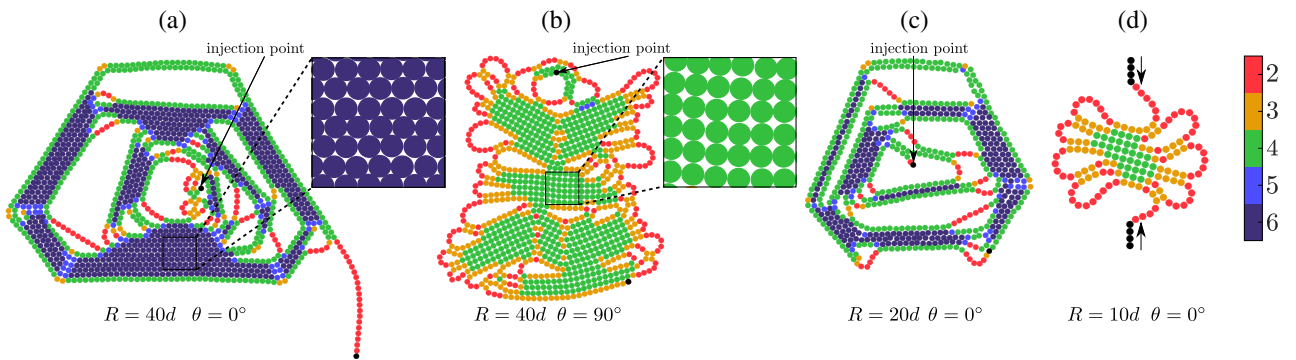


FIG. 2. Patterns obtained after no more beads can be injected anymore into the cell for (a) $R = 40d$ and $\theta = 0^\circ$, (b) $R = 40d$ and $\theta = 90^\circ$, (c) $R = 20d$ and $\theta = 0^\circ$. (d) Two chains are injected into the cell from opposite sides, as indicated by black arrows, with $\theta = 0^\circ$. (a),(c) We see *polygonal* patterns and for (b) and (d) *stacked* ones. The insets in (a) and (b) highlight the two patterns, polygonal and stacked ones, respectively. The color code indicates the number of nearest neighbors of each particle, i.e., having a distance of less than 10% of their diameter. We see that in polygonal patterns locally most particles have six neighbors, producing thus a triangular lattice, while in stacked patterns four nearest neighbors prevail, yielding a square lattice. Only in (a) the chains never hit the wall of the cell. The black points in (a)–(c) indicate the injection point.

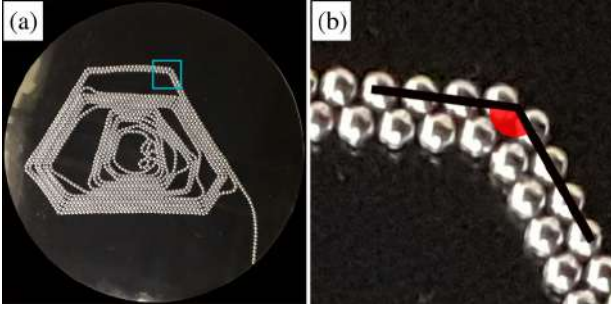


FIG. 3. The polygonal pattern is formed by stripes of paired chains with a locally triangular arrangement. These stripes spontaneously create corners forming angles of around 120° , as shown in (a) and enlarged in (b).

examples of such two-dimensional disjointed domains are shown in Figs. 4(a) and 4(c), obtained from the patterns in Figs. 2(b) and 2(c), respectively. The distributions of areas shown in Figs. 4(b) and 4(d) were obtained from the average over 15 injection experiments each, performed with inclination angles $\theta = 0^\circ$ and 90° , respectively. As depicted, for areas that have at least ten pixels, both

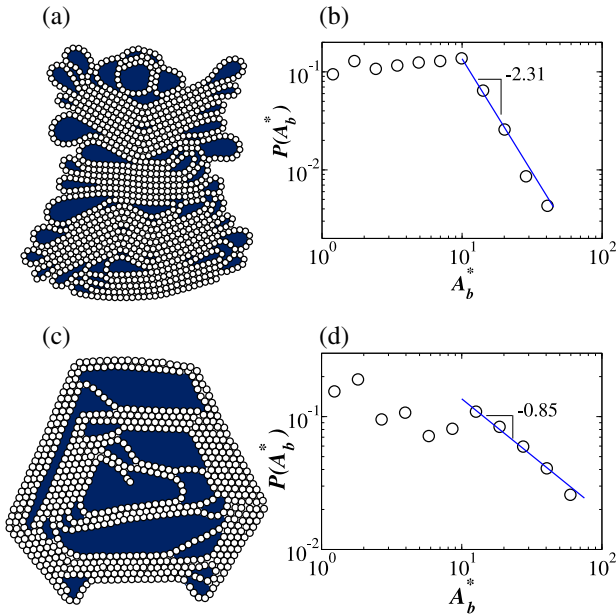


FIG. 4. The areas enclosed by the loops within the chain of magnetic particles are shown in blue for two typical injection experiments, resulting in (a) a stacked pattern and (c) a polygonal pattern. The dimensionless area $A_b^* = A_b/A_0$ is calculated from black and white images, where A_b is the area of the hole measured in pixels and $A_0 = \pi(d/2)^2$. The area distributions are shown in (b) stacked and (d) polygonal patterns, calculated from the average over 15 experimental realizations in each case. The blue solid lines are the least-squares fit to the datasets of a power law, $P(A_b^*) \propto A_b^{*\gamma}$, calculated for areas with more than ten pixels, with exponents $\gamma = 2.31 \pm 0.03$ and 0.85 ± 0.03 for (b) and (d), respectively.

distributions follow power-law behaviors, $P(A_b^*) \propto A_b^{*\gamma}$, with exponents $\gamma = 2.31 \pm 0.03$ for the stacked pattern ($\theta = 0^\circ$) and $\gamma = 0.85 \pm 0.03$ for the polygonal pattern ($\theta = 90^\circ$).

By increasing the inclination angle θ of the cell, we observe a transition from the polygonal to the stacked pattern. A convenient order parameter to characterize this transition is the percentage ϕ_6 of particles that have six neighbors. In Fig. 5, we plot ϕ_6 as a function of θ for $R = 40d$ and $20d$ and see that below a critical angle $\theta_c = 19.4^\circ \pm 0.4$ the order parameter ϕ_6 is finite and above it is zero. The change at θ_c is abrupt, as it is the case for first-order transitions, which is typically expected for morphological phase transitions. This sharp transition is also observed in the presence of finite-size effects, i.e., when the chain hits the wall of the cell for $R = 20d$. The inset of Fig. 5 shows that the average fractions ϕ of particles in the chain having a certain number of neighbors n ($2 \leq n \leq 6$) change dramatically from $\theta = 0^\circ$ to $\theta = 90^\circ$.

In Fig. 6 we show how the number N of particles that can be injected into the cell before the chain gets stuck depends on the inclination angle θ . For $R = 40d$, the size of polygonal patterns, i.e., below θ_c , changes with θ , while for stacked patterns, i.e., above θ_c , the size is independent of θ . If R is too small ($R = 20d$), the chain hits the wall of the cell and then the patterns can not attain their full size, with N becoming substantially smaller, as depicted in Fig. 6.

In order to measure the friction, we formed a triangle of three particles and let it slide down on the bottom plate. This triangular arrangement allowed suppression of any rolling. Interestingly, the inclination angle at which the

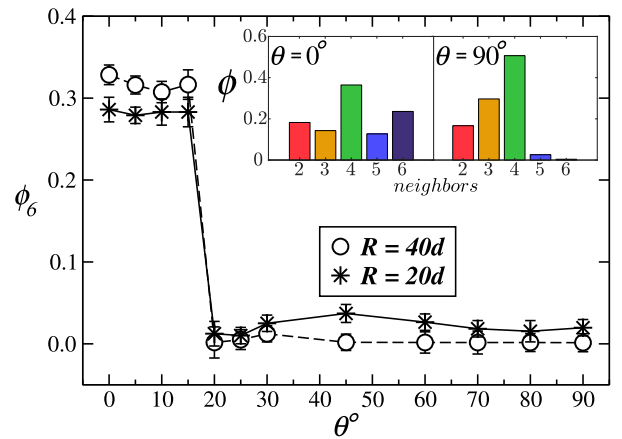


FIG. 5. Order parameter ϕ_6 of the morphological phase transition as a function of the inclination angle θ for $R = 40d$ (circles) and $R = 20d$ (stars). ϕ_6 is defined as the average fraction of particles that have six neighbors. One clearly observes an abrupt jump near the critical point $\theta_c = 19.4^\circ$, being the signature of a first-order transition. The inset shows how the average fractions ϕ of particles in the chain with n neighbors change going from $\theta = 0^\circ$ to $\theta = 90^\circ$, both for $R = 40d$.

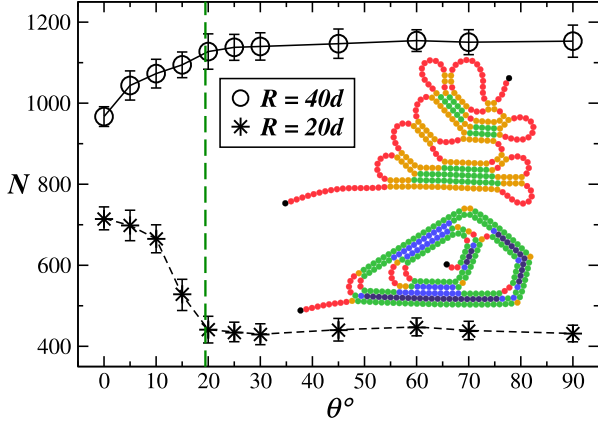


FIG. 6. Number N of particles in the pattern as a function of the inclination angle θ of the cell for $R = 40d$ (circles) and $R = 20d$ (stars). The vertical dashed green line at $\theta_c = 19.4^\circ$ corresponds to the static friction angle of the particles with the bottom plate, measured by letting three particles forming a triangle slide down on the plate in order to avoid rolling. The relationship between the critical angle and the static friction coefficient is $\mu_e = \tan(\theta_c) \approx 0.35$. Above θ_c , the number of particles N becomes independent of θ , but depends on the radius R of the cell. Inset: simulated patterns for $\theta = 0^\circ$ without (upper) and with (bottom) weakening of the dipolar forces at the entry of the chain.

triangle starts to slide down, i.e., the static friction angle, turns out to be $19.4^\circ \pm 0.4$, agreeing perfectly with θ_c . This seems to indicate that the phase transition is triggered by the sliding of the chain; that is, above (below) the static friction angle, the chain will (not) slide, therefore producing stacking (polygonal) patterns.

Instead of pushing the chains of magnetic particles into the Hele-Shaw through a hole in the center, we also injected them into the cell from its boundary. Surprisingly, in this case it is impossible to create polygonal patterns, i.e., always only stacked patterns appear. An example for $\theta = 0^\circ$ in which two chains are simultaneously injected from opposite sides is shown in Fig. 2(d).

In order to understand this last experimental observation and get deeper insight into the mechanism producing the observed patterns, we also performed discrete element model simulations [34] using a fourth-order Runge-Kutta algorithm for integration and rotations [35]. The contact forces are written as

$$\vec{F}_{ij}^c = F_n \hat{n}_{ij} + \vec{F}_s, \quad (3)$$

where $F_n \hat{n}_{ij}$ and \vec{F}_s represent the normal and shear forces between contacting spherical beads. The normal force is given by $F_n = k_n u_n$, where k_n is the normal stiffness and u_n is the contact overlap. The shear forces are computed incrementally by $\Delta \vec{F}_s = -k_s \Delta \vec{r}_{ij}$, where k_s is the shear stiffness and $\Delta \vec{r}_{ij}$ is the relative shear displacement vector.

Friction between particles is implemented in a similar fashion. The magnetic force \vec{F}_{ij}^M and torque $\vec{\tau}_{ij}^M$ between particles i and j are assumed to be due to point-like magnetic dipoles at the centers of the beads and computed as

$$\vec{F}_{ij}^M = \nabla(\vec{m}_i \cdot \vec{B}_j) \quad (4)$$

and

$$\vec{\tau}_{i,j}^M = \vec{m}_i \times \vec{B}_j, \quad (5)$$

where \vec{m}_i is the dipole moment of particle i and \vec{B}_j is the magnetic dipole field of particle j at the position of particle i , as defined in Eq. (2). The magnitude of the magnetic dipoles defines the bending stiffness of the chain.

In our simulation, we inserted chains of magnetic particles quasistatically either from the center or from one point at the boundary of the cell and always stacked patterns were formed independently of the choice of parameters, as shown in Fig. 6 (upper inset). Only after weakening systematically the magnetic dipole force between the last two beads that just entered the cell by at least a factor of 2, we could reproduce the polygonal pattern, as shown in Fig. 6 (bottom inset). In fact, when particles are injected through a hole in the center of the cell, a rotation of 90° is imposed on them, which locally weakens their magnetic forces. This weakening has a dramatic consequence on the evolution of the pattern (see the videos in the Supplemental Material [33]). After the chain has stopped, either due to friction or after hitting a wall, it buckles in one direction. If no weakening is imposed at the entry, after some time the bending stiffness of the chain will, however, force it to flip back, inducing an oscillatory behavior and forming stacking patterns. Only if at the entry the dipoles are sufficiently weakened, can the chain bend enough to allow it to continue turning in the same direction, forming, for adequately chosen parameters, the polygonal patterns.

Here we reported new patterns that appear while feeding a chain of magnetic beads into the center of a Hele-Shaw cell. We discovered that, depending on the inclination of the cell, i.e., the effect of gravity, two completely different types of scale-free patterns self-assemble. The first-order phase transition between the two patterns occurs at the static friction angle. Crucial for obtaining the polygonal pattern is the weakening of the dipolar forces at the entry into the cell, due to the redirection of the chain by 90° . The subtle effects encountered at the injection point discovered here, which dictates the way the magnetic chain deforms into the cell, might become relevant in the manipulation of magnetic colloids [36], chains of magnetosomes [37,38], and soft micromachines based on dipole-dipole interactions [39]. It would be interesting to include in the future electric, entropic, van der Waals, and other forces. It would also be

important to study patterns formed by interacting chains filling three-dimensional cavities and investigate the effect of the magnetic dipoles and friction on those patterns.

We thank the Brazilian agencies CNPq, CAPES, and FUNCAP and the National Institute of Science and Technology for Complex Systems (INCT-SC) in Brazil for financial support.

-
- [1] N. Stoop, F. K. Wittel, and H. J. Herrmann, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 094101 (2008).
- [2] M. R. Shaebani, J. Najafi, A. Farnudi, D. Bonn, and M. Habibi, *Nat. Commun.* **8**, 15568 (2017).
- [3] M. R. Khadilkar and A. Nikoubashman, *Soft Matter* **14**, 6903 (2018).
- [4] V. B. Shenoy and D. H. Gracias, *MRS Bull.* **37**, 847 (2012).
- [5] L. J. Hill and J. Pyun, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **6**, 6022 (2014).
- [6] M. Hanzlik, M. Winklhofer, and N. Petersen, *Earth Planet. Sci. Lett.* **145**, 125 (1996).
- [7] V. P. Shcherbakov, M. Winklhofer, M. Hanzlik, and N. Petersen, *Eur. Biophys. J.* **26**, 319 (1997).
- [8] E. Alphandéry, F. Guyot, and I. Chebbi, *Int. J. Pharm.* **434**, 444 (2012).
- [9] K. Richards, R. Williams, and R. Calendar, *J. Mol. Biol.* **78**, 255 (1973).
- [10] J. Kindt, S. Tzlil, A. Ben-Shaul, and W. M. Gelbart, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **98**, 13671 (2001).
- [11] L. Dai, C. B. Renner, and P. S. Doyle, *Adv. Colloid Interface Sci.* **232**, 80 (2016).
- [12] Q. Cao and M. Bachmann, *Soft Matter* **13**, 600 (2017).
- [13] S. C. Johnston *et al.*, *Stroke* **33**, 2536 (2002).
- [14] C. C. Donato, M. A. F. Gomes, and R. E. de Souza, *Phys. Rev. E* **66**, 015102(R) (2002).
- [15] C. C. Donato, M. A. F. Gomes, and R. E. de Souza, *Phys. Rev. E* **67**, 026110 (2003).
- [16] M. A. F. Gomes, V. P. Brito, M. S. Araújo, and C. C. Donato, *Phys. Rev. E* **81**, 031127 (2010).
- [17] Y. C. Lin, Y. W. Lin, and T. M. Hong, *Phys. Rev. E* **78**, 067101 (2008).
- [18] R. Vetter, F. Wittel, N. Stoop, and H. J. Herrmann, *Eur. J. Mech.* **37**, 160 (2013).
- [19] R. Vetter, F. K. Wittel, and H. J. Herrmann, *Nat. Commun.* **5**, 4437 (2014).
- [20] H. Elettro, F. Vollrath, A. Antkowiak, and S. Neukirch, *Soft Matter* **13**, 5509 (2017).
- [21] S. M. Taheri *et al.*, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **112**, 14484 (2015).
- [22] S. L. Tripp, R. E. Dunin-Borkowski, and A. Wei, *Angew. Chem., Int. Ed. Engl.* **115**, 5749 (2003).
- [23] D. V. Talapin, E. V. Shevchenko, C. B. Murray, A. V. Titov, and P. Král, *Nano Lett.* **7**, 1213 (2007).
- [24] K. Zahn and G. Maret, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 3656 (2000).
- [25] R. Messina and I. Stanković, *Europhys. Lett.* **110**, 46003 (2015).
- [26] L. Baraban, D. Makarov, M. Albrecht, N. Rivier, P. Leiderer, and A. Erbe, *Phys. Rev. E* **77**, 031407 (2008).
- [27] M. Klokkenburg, R. P. A. Dullens, W. K. Kegel, B. H. Erné, and A. P. Philipse, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 037203 (2006).
- [28] J. Stambaugh, Z. Smith, E. Ott, and W. Losert, *Phys. Rev. E* **70**, 031304 (2004).
- [29] N. Vandewalle and S. Dorbolo, *New J. Phys.* **16**, 013050 (2014).
- [30] J. Stambaugh, D. P. Lathrop, E. Ott, and W. Losert, *Phys. Rev. E* **68**, 026207 (2003).
- [31] C. L. Hall, D. Vella, and A. Goriely, *SIAM J. Appl. Math.* **73**, 2029 (2013).
- [32] D. Vella, E. du Pontavice, C. L. Hall, and A. Goriely, *J. Appl. Math.* **470**, 20130609 (2014).
- [33] See Supplemental Material at <http://link.aps.org/supplemental/10.1103/PhysRevLett.126.118001> for viewing films showing the injection of magnetic beads into a Hele-Shaw cell both experimentally and by means of numerical simulations.
- [34] P. A. Cundall and O. D. Strack, *Geotechnique* **29**, 47 (1979).
- [35] T. Pöschel and T. Schwager, *Computational Granular Dynamics: Models and Algorithms* (Springer, Berlin, 2005).
- [36] A. P. Philipse and D. Maas, *Langmuir* **18**, 9977 (2002).
- [37] X. Zhu, A. P. Hitchcock, D. A. Bazylinski, P. Denes, J. Joseph, U. Lins, S. Marchesini, H.-W. Shiu, T. Tyliczszak, and D. A. Shapiro, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **113**, E8219 (2016).
- [38] E. Katzmann, F. D. Müller, C. Lang, M. Messerer, M. Winklhofer, J. M. Plitzko, and D. Schüler, *Mol. Microbiol.* **82**, 1316 (2011).
- [39] H.-W. Huang, M. S. Sakar, A. J. Petruska, S. Pané, and B. J. Nelson, *Nat. Commun.* **7**, 1 (2016).

Patterns formed by chains of magnetic beads

Danilo S. Borges^{1,*}, Hans J. Herrmann^{1,2,**}, Humberto A. Carmona^{1,***}, José Soares Andrade Jr.^{1,****}, and Ascânio D. Araújo^{1,†}

¹Departamento de Física, Universidade Federal do Ceará, Campus do Pici, 60455-760 Fortaleza, Ceará, Brazil

²PMMH, ESPCI, CNRS UMR 7636, 7 quai St. Bernard, 75005 Paris, France

Abstract. Magnetic beads attract each other forming rather stable chains. We consider such chains formed by magnetic beads and push them into a Hele-Shaw cell either from the boundary or from the center. When such a chain is pushed into a cavity, it bends and folds spontaneously forming interesting unreported patterns. These patterns are self-similar and an effective fractal dimension can be defined. As found experimentally and with numerical simulations, the numbers of beads, loops and contacts follow power laws as a function of packing fraction and, depending on the injection procedure, even energetically less favorable triangular configurations can be stabilized.

1 Introduction

Due to its many applications in mechanics and biology, the folding and crumpling of threads and wires is of increasing interest. A rich spectrum of patterns has been found depending on friction, stiffness, aspect ratio and the type of confinement [1]. Self-assembling systems like origamis have been devised by adding attractive forces [2]. Much less is known, however, when the wire has a chirality, as it is the case for a chain of magnetic particles. In fact, threads of magnetic beads can be found in Nature on different scales: on nanometric scale in magnetic colloids [3] and as chains of magnetosomes in magnetotactic bacteria [4]. Here we will consider macroscopic metal beads to study two-dimensional folding patterns by injecting them into a Hele-Shaw cell. Depending on the type of injection one can get two different folding orientations which then lead to completely distinct types of macroscopic patterns.

The injection of wires into cavities has been of interest to model the coiling of long DNA in globules and viral capsids [5] as well as a minimally invasive treatment of saccular aneurysms [6]. Fractal filling patterns have been observed, while the injection force diverges with a power law [7, 8]. Three different filling patterns have been observed depending on friction and the bending elasto/plasticity of the wire: a spiral phase, a folding phase and a chaotic phase [1, 9]. Also deformable cavities have been considered [10, 11]. Here we replace the wire by a chain of magnetic beads allowing for attractive and repulsive interactions between sections of the wire. This opens up a spectrum of new possibilities including the patterns, about which we will report here.

*e-mail: daniloborges@fisica.ufc.br

**e-mail: hans@fisica.ufc.br

***e-mail: carmona@fisica.ufc.br

****e-mail: soares@fisica.ufc.br

†e-mail: ascanio@fisica.ufc.br

A video is available at <https://doi.org/10.48448/e18b-6663>

2 Experiment

For the experiment we use magnetized neodymium beads of $d = 5$ mm diameter. The cavity consists of a flat acrylic cylinder of varying radius and 6 mm height put on a black dish and covered with a transparent plate of acrylic. Two step motors control the quasi-static (at 4.3 mm/s) injection into two diametrically opposed holes. Additionally, feeding into the center of the cavity through a hole in the bottom plate is possible. Images are recorded above the cavity with a digital camera Canon PowerShot SX510 HS in 30 frames per second at 23 cm and used to determine the particle positions. The magnetic beads naturally assemble with aligned dipole moments into wires that exhibit macroscopically elasto-plastic bending stiffness [12, 13]. These wires of beads are pushed into the cavity from opposite sides until the step motor is unable to proceed further. When the two chains come together they connect to each other (a little differently depending on the polarity of their tips). Typical patterns formed by the crumpling wires are shown in the lower row of Fig. 1a.

3 Results

Due to the attractive forces between opposite magnetic dipoles, neighboring chains tend to collapse into square lattice structures, which are energetically the most favorable configuration [13, 14] and the competition between this crystallization and the elastic bending forces of the chains produces the flower-like shapes seen in Fig. 1a. The network formed by contacting beads is shown for one pattern in Fig. 1b. Besides their compact core these patterns resemble the "classical" patterns of Ref. [1]. For our patterns the number of loops and the number of contacts increase with the packing fraction ϕ like power laws with exponents $\alpha = 1.72 \pm 0.06$ for loops and $\beta = 1.19 \pm 0.03$ for contacts, as shown in Fig. 2.

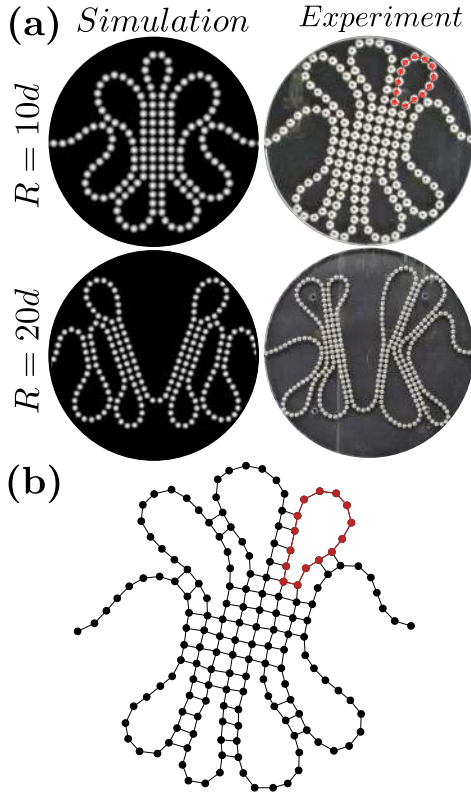


Figure 1. (a) Patterns obtained injecting wires of magnetic beads from opposite sides. First column: simulations using a molecular dynamics method (MD). Second column: experiments performed for two different cavity radii, namely, $R = 10d$ and $R = 20d$. (b) Contact network (graph) of the pattern obtained in a cavity of $R = 20d$ radius. Edges are established when the distance between the centers of the spheres are less than or equal to the sphere diameter. A typical loop is highlighted in red.

If the radius of the cavity exceeds 25 particle diameters the two injected chains start to self-interact before reaching the opposite chain and the patterns become anisotropic. Beyond a radius of 40 particle diameters two separate aggregates independently grow on each side.

In order to characterize the aggregate morphology we choose the relationship between radius of gyration and number of beads to determine an effective “fractal dimension” [15–17],

$$R_g(N) \propto N^{1/d_f}$$

where $R_g(N)$ is the radius of a circle around the center and N the number of particles inside the circle. The average is taken over nine samples and the results can be seen in Fig. 3. Unfortunately, due to the small system sizes the range of validity of the power-law is too narrow to allow for the proper definition of a fractal dimension. From $R = 10d$ to $R = 20d$ the effective fractal dimension decreases from $d_f = 1.55 \pm 0.03$ to $d_f = 1.33 \pm 0.03$. For comparison, the fractal dimension found in Ref. [17] was $d_f = 1.54 \pm 0.03$ and $d_f = 1.71 \pm 0.01$ in Ref. [16].

Quite different is the situation when one chain is injected from the bottom into the center of the cavity as depicted in Fig. 4. We see that then eventually space is

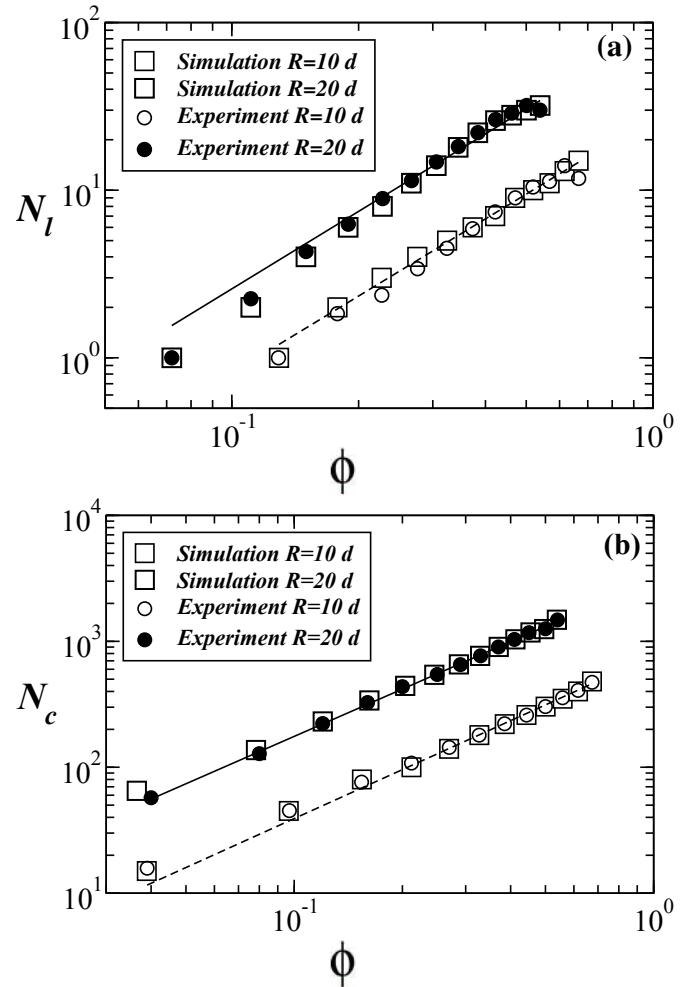


Figure 2. Log-log plot of (a) number of loops N_l and (b) number of contacts N_c as a function of the packing fraction ϕ . The open and full symbols correspond to a cavity of radius $R = 10d$ and $R = 20d$, respectively. The solid and dashed lines correspond to least-squares fits to the data, giving the scaling exponents $\alpha = 1.72 \pm 0.06$ for loops (a) and $\beta = 1.19 \pm 0.03$ for contacts (b).

completely filled with beads. Besides their hexagonal texture these patterns resemble the “spiral” patterns found in Ref. [1]. What is spectacular about these compact patterns is their triangular crystallization, which clearly is energetically less favorable than the square lattice.

From the sequence of images in Fig. 4 we see that from the beginning, stripes of attached chains do not form squares as in Fig. 1, but triangles. By injecting from the bottom, the spheres in the chain and their magnetic moments undergo some rotations, which weakens their forces in the direction of the chain while allowing for out of plane interactions. As explained in Ref. [18] this favors a triangular lattice as shown in Figs. 5a and b.

In order to get a deeper understanding behind the energetic stability of the observed patterns we also performed Molecular Dynamics simulation. Short-range repulsions are accounted for through the repulsive part of a Lennard-Jones potential, while the magnetic pair forces \mathbf{F}_{ij} and pair torques $\boldsymbol{\tau}_{ij}$ due to point-like magnetic dipoles at the centers of the beads are computed through

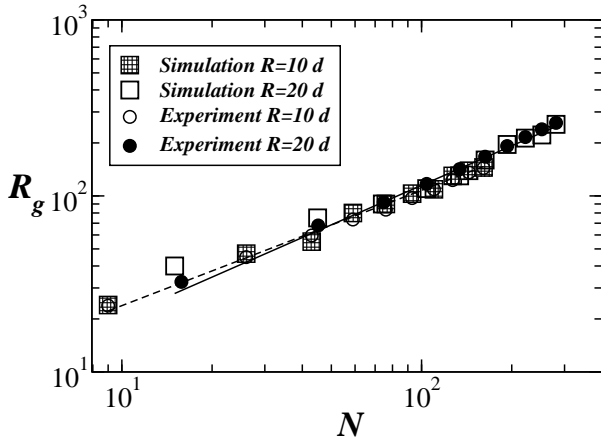


Figure 3. Radius $R_g(N)$ of a circle around the center versus the number N of particles inside the circle. The lines are least-squares fits to the data, giving the exponents $d_f = 1.55 \pm 0.04$ for $R = 10d$ (open circles) and $d_f = 1.34 \pm 0.03$ for $R = 20d$ (full circles).

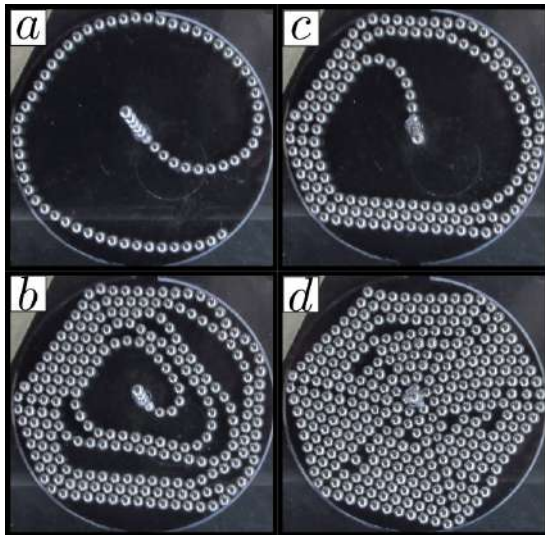


Figure 4. Four snapshots taken during the filling of the cavity. Here a chain of magnetic beads is injected into the cavity into the center from the bottom.

$$\mathbf{F}_{ij} = \nabla (\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{B}_j) \quad (1)$$

$$\boldsymbol{\tau}_{i,j} = \mathbf{m}_i \times \mathbf{B}_j \quad (2)$$

where

$$\mathbf{B}_j(\mathbf{r}_{ij}) = \frac{\mu_0}{4\pi} \left[\frac{3(\mathbf{m}_j \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij})\hat{\mathbf{r}}_{ij} - \mathbf{m}_j}{r_{ij}^3} \right] \quad (3)$$

is the magnetic field produced by bead j at the position of bead i , \mathbf{r}_{ij} is the vector pointing from the center of the bead i to the center of the bead j , $\hat{\mathbf{r}}_{ij} = \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}}$ and μ_0 is the vacuum permeability.

The equations of motion for the translation and rotation of all beads, $\mathbf{F}_i = d\mathbf{p}_i/dt$ and $\boldsymbol{\tau}_i = d\mathbf{L}_i/dt$, were

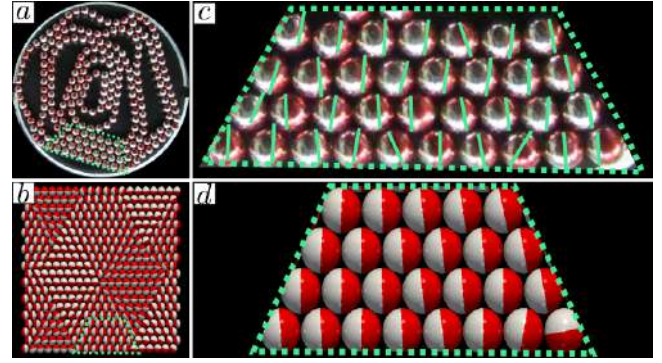


Figure 5. Lowest energy configuration of a triangular lattice for (a) experiment injecting the chain through the center of the cavity and (b) Monte Carlo simulation of dipoles on a triangular network with periodic boundary condition in both directions (top-bottom and right-left). Here, the dipoles can only rotate (not move) to reach the lowest energy configuration. In both cases, the dipoles are identified by painting in red the hemisphere (the heads of the dipoles) into which the dipole vector points. For the sake of clarity, we have added green lines along the direction of the dipoles on the experimental images as shown in (c). (d) For better visualization we magnify part of the Fig. 5 (b). We surround with a dashed green line a region of the packing, experimentally and numerically obtained where the magnetic dipole orientations exhibit considerable similarity. Those regions are shown in c and d, respectively. In these selected regions the pattern of the magnetic dipoles corresponds to the lowest energy configuration.

solved using a 6th order predictor-corrector method, where \mathbf{p}_i and \mathbf{L}_i are linear and angular momentum, respectively. After adjusting parameters we obtained simulated patterns that agree quite well with the experimental ones as seen in Fig. 1. We verified that our simulations also reproduce the experimental data quantitatively by calculating the number of loops and contacts as shown in Fig. 2 and the radius of gyration as shown in Fig. 3. Using the positions of the N beads from the simulation, the total magnetic potential energy E can be obtained by summing over all pairs of beads in the patterns according to Eq. (4).

$$E = - \sum_{i=1}^{N-1} \sum_{j=i+1}^N \mathbf{m}_i \cdot \mathbf{B}_j \quad (4)$$

As seen in Fig. 6, for the case of flower-like patterns, we find that the total magnetic energy increases linearly with packing fraction, while the magnetic energy per particle tends to approximately $1.29E_0$, where $E_0 = -2\frac{\mu_0 m^2}{4\pi d^3}$ is the energy per particle for a pair of aligned dipoles of moment \mathbf{m} separated by a distance d equal to the diameter of the beads.

On the square lattice, the configuration of the magnetic dipole moments with the lowest energy is very simple since it corresponds to the antiferromagnetic ground state of the Ising model. The situation on the triangular lattice is much more complicated, since it corresponds to the Heisenberg model on a triangular lattice which is known to be frustrated, exhibiting many ground states at low temperatures [19]. Fig. 5 shows that the lowest energy

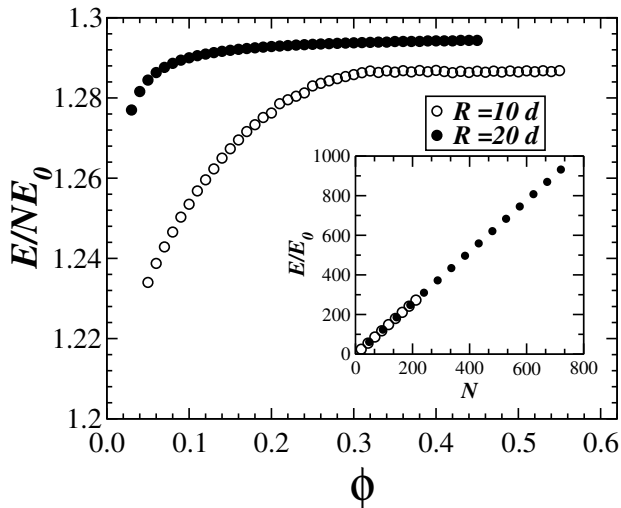


Figure 6. Total magnetic energy E normalized by E_0 (the minimum energy of a pair of dipoles of moment m at distance equal to the particle's radius) as a function of packing fraction obtained from the simulation. The simulation was performed for the flower-like pattern for two different cavity sizes, $R = 10d$ (open symbols) and $R = 20d$ (full symbols). The inset shows the energy density versus the packing fraction.

configurations on the triangular lattice involve magnetic dipole moments that are strongly aligned with the plane. To understand how the system evolves to the minimal energy configuration we realized a Monte Carlo simulation of dipoles on a triangular network with periodic boundary condition in both directions (top-bottom and right-left). Here, the dipoles can only rotate (not move) to reach the minimal energy configuration. As in the experiment, the results shown in Fig. 5b also reveal domains of parallel dipoles that are all rather strongly aligned with the plane of the cell. Once the metastable magnetic situation is locked in, the slight pressure pushing the chain against the cavity wall is sufficient to achieve the densest packing configuration and stabilize the pattern of Fig. 4. In fact, a transition to the flower-type pattern can be achieved by tilting the Hele-Shaw cell beyond the friction angle [18].

4 Conclusion

We have reported here new patterns that appear while feeding a chain of magnetic beads into a cavity. Precisely, if two chains are simultaneously injected from opposite sides, we observe flower-like structures having a square lattice in the center and loops as petals. If one chain is injected in the center, then the cavity is filled with a hexagon of six triangular lattices. We explained how this energetically metastable state can be attained.

We have shown with our model experiment how interactions between elements of a chain can modify its crumpling when injected into a cavity. This applies for instance to the coiling of long polymers in globules or viruses in capsids [5], which in fact not only exhibit magnetic effects but also many other types of interactions. Therefore, it would be interesting to also include electric, entropic, van der Waals and other forces in the future. It would also be important to study in the future the filling of three-dimensional cavities.

References

- [1] N. Stoop, F.K. Wittel, H.J. Herrmann, *Phys. Rev. Lett* **101**, 094101 (2008)
- [2] V.B. Shenoy, D.H. Gracias, *MRS Bull.* **37**, 847 (2012)
- [3] L.J. Hill, J. Pyun, *ACS Appl. Mat. & Interfaces* **6**, 6022 (2014)
- [4] V.P. Shcherbakov, M. Winklhofer, M. Hanzlik, N. Petersen, *Europ. Biophys. J.* **26**, 319 (1997)
- [5] K.E. Richards, R.C. Williams, R. Calendar, *J. Mol. Biol.* **78**, 255 (1973)
- [6] S.C. Johnston et al., *Stroke* **33**, 2536 (2002)
- [7] C.C. Donato, M.A.F. Gomes, R.E. de Souza, *Phys. Rev. E* **66**, 015102 (2002)
- [8] Y.C. Lin, Y.W. Lin, T.M. Hong, *Phys. Rev. E* **78**, 067101 (2008)
- [9] R. Vetter, F.K. Wittel, N. Stoop, H.J. Herrmann, *Eur. J. Mech* **37**, 160 (2013)
- [10] R. Vetter, F.K. Wittel, H.J. Herrmann, *Nat. Comm.* **5**, 4437 (2014)
- [11] H. Elettro, F. Vollrath, A. Antkowiak, S. Neukirch, *Soft Matter* **13**, 5509 (2017)
- [12] C.L. Hall, D. Vella, A. Goriely, *SIAM J. Appl. Math.* **73**, 2029 (2013)
- [13] D. Vella, E. du Pontavice, C.L. Hall, A. Goriely, *J. Appl. Math.* **470**, 20130609 (2014)
- [14] H. Schmidle, C.K. Hall, O.D. Velev, S.H.L. Klapp, *Soft Matter* **8**, 1521 (2012)
- [15] T. Vicsek, *Fractal growth phenomena* (World Scientific, Singapore, 1992)
- [16] R. Pastor-Satorras, J.M. Rubí, *Trends in Colloid and Interface Science XII* (Springer, 1998) 29-33
- [17] J. Byrom, S.L. Biswal, *Soft Matter* **9**, 9167 (2013)
- [18] D.S. Borges, H.J. Herrmann, H.A. Carmona, J.S. Andrade Jr., A.D. Araújo, *Phys. Rev. Lett.* **126**, 118001 (2021)
- [19] F.L. Buessen, M. Hering, J. Reuther, S. Trebst, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 057201 (2018)