

Felipe de Freitas Munarin

*Estudo de sistemas bi-dimensionais de
partículas clássicas*

Fortaleza – Ceará

Dezembro / 2008

Felipe de Freitas Munarin

*Estudo de sistemas bi-dimensionais de
partículas clássicas*

Tese apresentada ao Departamento de Física
da Universidade Federal do Ceará, como
parte dos requisitos para a obtenção do
Título de Doutor em Física.

Orientador:
Prof. Dr. Wandemberg Paiva Ferreira

DOUTORADO EM FÍSICA
DEPARTAMENTO DE FÍSICA
CENTRO DE CIÊNCIAS
UNIVERSIDADE FEDERAL DO CEARÁ.

Fortaleza – Ceará

Dezembro / 2008

Felipe de Freitas Munarin

*Study of two-dimensional systems of
classical particles*

Thesis presented to the Antwerp University
as a requirement to obtain the grade of Doc-
tor in Physics.

Supervisor:
Prof. Dr. Francois M. Peeters

DOCTORATE IN PHYSICS
CONDENSED MATTER THEORY
ANTWERP UNIVERSITY

Fortaleza – Ceará

December / 2008

*Dedico essa dissertação para as pessoas nas quais
sempre encontro força para ultrapassar
barreiras. Obrigado aos meus pais,
pois devo a eles tudo que
sou e ainda serei.*

Agradecimentos (*acknowledgments*)

- Inicialmente, ao Professor Wandemberg Paiva Ferreira pela demonstração de vontade e dedicação na minha orientação. Na sua pessoa de ser professor e amigo, sou grato por me ensinar a seriedade e a responsabilidade de fazer trabalhos científicos em várias áreas da física além de me instruir a ter um ponto de vista crítico sobre trabalhos científicos. Nossas discussões, sempre muito instrutivas, me enriqueceram imensamente.
- Ao Professor Gil de Aquino Farias, pela competência, sabedoria e esforço no sentido da realização das pesquisas que são, certamente, um grande estímulo para mim. Agradeço pela confiança depositada em mim além de sua orientação firme e segura ao longo dos seis anos em que integrei seu grupo de pesquisa, especialmente durante o desenvolvimento deste trabalho. Seus valiosos ensinamentos marcarão para sempre minha formação como pesquisador e ser humano.
- To Professor Francois M. Peeters, who I would like to express my gratitude for the opportunity to spend one year in his research group. I am very grateful for believing and giving me time to solve problems in my work. He gave me an opportunity to enrich my scientific knowledge. His dedication to science and research is certainly a great incentive for me. To Prof Francois, my sincerely gratefulness.
- To the members of my PhD jury.
- Ao professor Josué Mendes Filho, chefe do departamento de Física da Universidade Federal do Ceará, por sua incontestável determinação em favor desta instituição.
- Aos professores Soares, Raimundo, Murilo e King (em memória) pelas discussões, críticas e sugestões nos trabalhos científicos que me engrandeceram como pesquisador, além do apoio técnico.
- Aos professores do departamento de Física da UFC, principalmente àqueles que contribuíram para minha formação acadêmica.

- À Professora Eloneid Felipe Nobre por, além de ensinar física e ser um exemplo de ética e responsabilidade para mim, deixar-me conhecer sua família sem nenhum tipo de constrangimento.
- Aos meus grandes amigos Alan, Aristeu, Bruno Abagaro, Bruno Bastos, Cláudio Lucas, David, Francisco Franciné, Francisco Ednílson, Francisco Wagner, Francisco Valderlan, Kátia, Leandro e Victor, uns pela amizade inestimável outros por contribuições intelectuais, mas todos muito importantes para minha formação acadêmica e humana em toda graduação e durante a realização desse trabalho.
- Aos colegas do laboratório da estação de trabalho do grupo de semicondutores, em especial João Cláudio, Andrey, Florêncio, Jusciane, Erlânia, Ítalo, Diego Lucena, Diego Rabelo, Leandro e Luci pelo companheirismo e trabalho em equipe.
- Aos demais amigos do departamento de Física.
- To the friends which I met in Belgium, Kwinten, Nga, Massoud, Doorbek, Antonio Romaguera, Sergio Apolinário, and Prof. Mauro Dória who helped me to spend pleasant moments in the most beautiful city that I have ever lived.
- Aos meus pais por me ajudarem a crescer e pensar, mesmo passando por dificuldades. Seus esforços e dedicações durante toda minha vida foram surpreendentes, pois agüentar um estudante de física é muito difícil. Meu esforço é, também, para retribuir a eles todos os seus esforços. Apesar de não falar, amo meus pais.
- Ao meu irmão Fabio que mudou minha vida de uma hora para outra enchendo-a de felicidade e companheirismo.
- À minha noiva e futura esposa Talita, por, além de ter me ajudado na realização desse trabalho, me dar ânimo e mais prazer de seguir em frente. Agradeço a ela por ter mudado o meu destino tornando-o grandioso e alegre. Pelo mundo que criamos. Sem ela não estaria onde estou hoje. Obrigado por viver ao meu lado.
- Aos funcionários do departamento de Física, em especial ao Elias, Rejane, Ana Cleide, Creuza, pelas facilidades e apoio.
- À CAPES - Fundação Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior, pelo apoio financeiro que foi fundamental na realização desse trabalho.

*“Se A é o sucesso, então é igual a X mais Y mais Z.
O trabalho é X; Y é o lazer; e Z é manter a boca fechada.”*

*“If A is success in life, then A equals X plus Y plus Z.
Work is X; Y is play; and Z is keeping your mouth shut.”*

Albert Einstein

Resumo

Esta tese dedica-se ao estudo das propriedades estruturais, dinâmicas e térmicas de sistemas bidimensionais (2D) de partículas clássicas. Na primeira parte da tese, estudam-se as estruturas e as propriedades vibracionais de partículas em sistemas confinados em temperatura zero. Inicialmente, investigam-se as configurações de uma monocamada de dipolos magnéticos confinados por um potencial parabólico em função do momento de dipolo das partículas. Apesar do confinamento circular, encontram-se diversas estruturas assimétricas, como configurações em forma de cadeias (linhas de partículas) e em forma de Y quando um campo magnético é aplicado paralelamente ao plano das partículas. Além disso, analisa-se a dinâmica das partículas por meio do estudo do espectro de seus modos normais, em função do campo magnético e da intensidade do momento de dipolo das partículas. As componentes de translação e rotação dos modos normais são obtidas e estudadas em detalhes. Esse sistema também foi estudado em função do número de partículas onde foram encontradas diferentes estruturas para diferentes valores do momento de dipolo das partículas e do campo magnético aplicado. Apresenta-se ainda nesta tese um estudo da estrutura e do espectro dos modos normais de um sistema composto por dois planos bidimensionais, acoplados verticalmente, formado por partículas clássicas carregadas, confinadas por uma distribuição não uniforme de carga. As propriedades estruturais e dinâmicas desse sistema são analisadas em função da separação entre os planos de cargas, bem como em função da intensidade do potencial de confinamento. Observam-se diferentes configurações assimétricas, além de transições estruturais induzidas pela desvinculação (evaporação) de partículas. Dependendo da transição estrutural, observou-se que as frequências dos modos normais exibem uma descontinuidade ou uma contínua diminuição de seus valores.

Na segunda parte da tese, estuda-se a influência da temperatura nas estruturas de sistemas 2D. Especificamente, investiga-se detalhadamente a transição sólido-líquido de um sistema bidimensional finito, constituído por dois tipos de partículas com diferentes cargas e/ou massas, confinadas em um potencial parabólico. A temperatura de fusão é obtida para diferentes valores da relação entre as cargas e/ou massas dos dois tipos de partículas. Observou-se que a fusão dos dois tipos de partículas ocorre em diferentes temperaturas. A importância das configurações comensuráveis e incomensuráveis, e dos diferentes modos normais de vibração na temperatura de fusão do sistema, também é estudada. Quando a configuração de mínima energia do sistema é composta por um arranjo assimétrico de partículas, observam-se transições estruturais termicamente induzidas. Além disso, encontra-se que o aumento de temperatura induz uma separação dos dois tipos de partículas no sistema. Estudou-se também a transição sólido-líquido de um sistema bidimensional de partículas clássicas interagindo através de um potencial competitivo e confinadas por um potencial parabólico. As partículas interagem através de um potencial atrativo de curto alcance e de um potencial repulsivo de longo alcance. Comportamentos diferentes da temperatura de fusão são encontrados em função da intensidade do

potencial atrativo entre as partículas. Observou-se também que a transição sólido-líquido de um sistema constituído por pequenos aglomerados ocorre através de um processo de fusão em duas etapas. Comportamento reentrante e transições termicamente induzidas são observados em uma pequena região de um digrama dos principais parâmetros do sistema. Além disso, observa-se o efeito de histerese na configuração do sistema em função da temperatura, concluindo-se que este efeito é consequência da presença de uma barreira de potencial entre as diferentes configurações do sistema.

Abstract

This thesis is dedicated to the study of the structural, dynamical and thermal properties of finite two-dimensional systems of classical particles. In its first part, we study the structures and the vibrational properties of particles of confined systems in the zero temperature case. Specifically, the ordered configurations of a monolayer of interacting magnetic dipoles confined in a circular parabolic potential are investigated as a function of the dipole moment of the particles. Despite the circular confinement, we find very asymmetric ordered structures, like chains and Y-shaped configurations, when a magnetic field is applied parallel to the plane of the particles. Besides, we analyze the dynamic of particles through the study of the normal-mode spectrum. It is studied as a function of the magnetic field and the strength of the dipole moment of the particles. The translational and rotational components of the normal mode spectrum are obtained and investigated in details. As a function of the number of particles, we found different ordered configurations for different values of the dipole moment and the external magnetic field. We also study numerically the structure and the normal mode spectrum of a two vertically coupled finite-size two-dimensional system, composed of interacting classical charged particles confined by a nonuniform distribution of background charge. The structural and dynamical properties of the system are analyzed as a function of the separation between the planes of charges, and as a function of the strength of the confinement potential. We find different asymmetrical ground-state configurations, as well as structural phase transitions induced by the unbinding of particles, which were not present in previous models with a parabolic confinement potential. Depending on the order of the structural transition the normal-mode frequencies exhibit a discontinuity or a softening.

In the second part of the thesis, we study the structural dependence of the two-dimensional systems on the temperature. Specifically, we systematically investigate the melting of a finite size binary system consisting of two types of particles having different charges and/or masses, confined in a two-dimensional parabolic trap. The melting temperature is obtained for different values of the ratio between the charges and/or masses of the two types of particles. It is found that two types of particles melt at different temperatures; e.g., particles with smaller charge melt first. The importance of the commensurate/incommensurate configurations, and the different normal modes to the melting phenomenon, is also studied. When the ground state consists of a nonsymmetric arrangement of particles, new thermally induced structural phase transitions are found. In addition, a remarkable temperature induced spatial separation of the two types of particles is observed. We also study the melting of a competing interacting potential system of classical particles confined in a circular parabolic trap. The particles interact through a short-range attractive, and long-range repulsive, potential. Different behaviors of the melting temperature are found depending on the strength of the attractive part of the interparticle potential. The melting of a system consisting of small bubbles takes place through a two-step melting process. A reentrant behavior and a thermally

induced structural phase transition are observed in a small region of a space diagram of the main parameters of the system. A hysteresis effect in the configuration of the particles is observed as a function of temperature. This is a consequence from the presence of a potential barrier between different configurations of the system.

Overzicht

Dit proefschrift is gewijd aan de studie van de structurele, dynamische en thermische eigenschappen van eindige twee-dimensionale systemen van klassieke deeltjes. In het eerste deel bestuderen we de structuur en de vibrationele eigenschappen van deeltjes in gesloten systemen voor temperatuur nul. Met name worden de geordende configuraties van een monolaag van interagerende magnetische dipolen opgesloten in een circulaire parabolische potentiaal onderzocht als functie van het dipoolmoment van de deeltjes. Ondanks de circulaire opsluiting, vinden we zeer asymmetrische geordende structuren, zoals ketting en Y-vormige configuraties wanneer er een magnetisch veld wordt aangelegd evenwijdig met het vlak van de deeltjes. Daarnaast analyseren we de dynamiek van de deeltjes aan de hand van het spectrum van de eigentrillingen als functie van het magnetische veld en de sterkte van het dipoolmoment van de deeltjes. De translationele en rotationele componenten van de normale trillingen werden verkregen en onderzocht in detail. Als functie van het aantal deeltjes vonden we verschillende geordende configuraties voor verschillende waarden van het dipoolmoment en het externe magnetische veld. We hebben ook de structuur en de normale trillingen numeriek bestudeerd van een twee, verticaal gekoppelde twee-dimensionale eindige systemen bestaande uit interagerende klassieke geladen deeltjes in een opsluiting tengevolge van een niet uniforme verdeling van de achtergrond lading. De structurele en dynamische eigenschappen van het systeem zijn geanalyseerd als functie van de scheiding tussen de ladingsvlakken en als functie van de sterkte van de opsluitingspotentiaal. We vinden verschillende asymmetrische grondtoestand configuraties, evenals structurele fase-overgangen veroorzaakt door de ontkoppeling van de deeltjes, die niet aanwezig waren in eerdere modellen met een parabolische opsluiting potentiaal. Afhankelijk van de orde van de structurele fase-overgang vertonen de normaal mode frequenties een discontinuïteit (voor orde overgang) of gaat één van de frequenties naar nul (voor een tweede orde overgang).

In het tweede deel van het proefschrift bestuderen we de structurele veranderingen van twee-dimensionale systemen t.g.v. temperatuur. Concreet hebben we systematisch onderzoek gedaan naar het smelten van een eindig groot binair systeem bestaande uit twee soorten deeltjes met verschillende lading en/of massa's opgesloten in een twee-

dimensionale parabolische opsluiting. De smelttemperatuur is verkregen voor verschillende waarden van de verhouding lading en/of massa van de twee soorten deeltjes. Het is gebleken dat de twee verschillende soorten deeltjes smelten bij een verschillende temperatuur, bijvoorbeeld deeltjes met een kleinere lading smelten eerst. Ook werd het belang van de geordende/niet-geordende configuraties en de verschillende normale modes op het smelten onderzocht. Wanneer de grondtoestand bestaat uit een niet symmetrische ordening van de deeltjes worden nieuwe thermisch geïnduceerde structurele fase-overgangen gevonden. Daarnaast wordt er een opmerkelijke temperatuur geïnduceerde ruimtelijke scheiding van de twee soorten deeltjes waargenomen. Tevens bestuderen we het smelten van concurrerende interagerende klassieke deeltjes opgesloten in een circulaire parabolische potentiaal. De deeltjes interageren doormiddel van een korte aantrekkingspotentiaal van korte dracht en een afstotingspotentiaal van lange dracht. Verschillende gedragingen van de smelttemperatuur zijn gevonden afhankelijk van de sterkte van het aantrekkingsgedeelte van de inter-deeltjes potentiaal. Het smelten van een systeem bestaande uit kleine clusters vindt plaats doormiddel van een twee-staps smeltproces. Een reëtrant gedrag en een thermisch geïnduceerde structurele fase-overgang werden waargenomen in een klein gebied van het fase-ruimte diagram. Een hysteresis effect in de configuratie van de deeltjes werd waargenomen als functie van de temperatuur. Dit is een gevolg van de aanwezigheid van een potentiaal barrière tussen de verschillende configuraties van het systeem.

Sumário

Lista de Figuras

Lista de Tabelas

1	Introdução	p. 24
1.1	Cristal de Wigner	p. 26
1.2	Elétrons sobre líquido de hélio (He)	p. 27
1.3	Plasma Complexo	p. 27
1.4	Armadilhas de Paul e Penning	p. 29
1.5	Sistemas coloidais com interação competitiva	p. 31
1.6	Nanopartículas magnéticas	p. 34
2	Métodos Numéricos	p. 38
2.1	Dinâmica molecular (DM)	p. 38
2.1.1	Condições de contorno periódicas	p. 41
2.2	Monte Carlo	p. 43
2.2.1	Método de Metropolis	p. 45
2.3	Métodos de Monte Carlo e Newton Modificado	p. 47
3	Estrutura e modos normais de partículas dipolares de um sistema bidimensional	p. 49
3.1	Introdução	p. 49
3.2	Modelo	p. 50
3.3	Resultados	p. 51

3.3.1	Dependência do momento de dipolo	p. 51
3.3.1.1	Ausência de campo magnético	p. 51
3.3.1.2	Presença de campo magnético	p. 57
3.3.2	Campo magnético variável	p. 62
3.3.3	Variando o número de partículas	p. 64
3.3.3.1	Caso $B = 0$	p. 65
3.3.3.2	Caso $B \neq 0$	p. 66
3.4	Conclusão	p. 68
4	Estados Moleculares de dois sistemas de partículas acoplados verticalmente	p. 71
4.1	Introdução	p. 71
4.2	Modelo	p. 72
4.3	Resultados	p. 74
4.4	Conclusão	p. 85
5	Transição Sólido-Líquido (<i>Melting</i>)	p. 87
5.1	Introdução	p. 87
5.2	Transição sólido-líquido de um sistema com dois tipos de partículas . .	p. 91
5.2.1	Modelo	p. 91
5.2.2	Transição Sólido-Líquido (<i>Melting</i>)	p. 93
5.2.2.1	Partículas com cargas diferentes	p. 93
5.2.2.2	Partículas com massas diferentes	p. 101
5.2.3	Transição de fase estrutural termicamente induzida	p. 105
5.2.4	Conclusões	p. 110
6	Transição sólido-líquido de um sistema auto-organizado de partículas clássicas	p. 112

6.1	Modelo	p. 113
6.2	Transição sólido-líquido	p. 115
6.3	Estabilidade das estruturas	p. 122
6.3.1	Fenômeno Reentrante	p. 122
6.3.2	Histerese	p. 126
6.4	Conclusão	p. 127
7	Conclusões e Perspectivas	p. 129
	Apêndice A – Modos Normais - Aproximação Harmônica	p. 133
	Apêndice B – Melting of a two-dimensional binary cluster of charged particles confined in a parabolic trap [J. Phys.: Condens. Matter 18, 9385 (2006)]	p. 143
	Apêndice C – Molecular states of two vertically coupled systems of classical charged particles confined by a Coulomb potential [Phys. Rev. B 76, 035336 (2007)]	p. 144
	Apêndice D – Hysteresis and reentrant melting of a self-organized system of classical particles confined in a parabolic trap [Phys. Rev. E 77, 031608 (2008)]	p. 145
	Apêndice E – Ground state and normal-mode spectra of a two-dimensional system of dipole particles confined in a parabolic trap [Phys. Rev. E 78, 031405 (2008)]	p. 146
	Referências	p. 147

Lista de Figuras

- 1 Configuração de (a) 2, (b) 8 e (c) 20 ondulações (pontos escuros) dentro de uma parede cilíndrica simétrica numa superfície de hélio. Figura retirada da referência [1]. (d) Esquema experimental. (e) Configuração do sistema com $N=3,7,12,19,34$ e 145 partículas. Figura retirada da referência [2]. p. 28
- 2 Visão esquemática de um *dusty* plasma. p. 29
- 3 (a) Ilustração de uma armadilha de *Penning*, onde a idéia é confinar partículas carregadas utilizando um campo elétrico e um campo magnético. (b) Esboço do experimento utilizado para confinar as partículas carregadas e (c) imagem do aparelho utilizado no experimento da Ref. [3]. p. 30
- 4 Imagem da fluorescência de um cristal duplo consistindo de íons $^{40}\text{Ca}^+$ e íons $^{44}\text{Ca}^+$. (a) Fluorescência apenas da parte dos íons $^{40}\text{Ca}^+$ do cristal. (b) Fluorescência apenas da parte dos íons $^{44}\text{Ca}^+$ do cristal, (c) Imagem da fluorescência de todo o cristal. Figura retirada da Ref. [3] p. 31
- 5 (a) Partículas suspensas colidindo entre si devido ao movimento Browniano. (From NASA/JPL-Caltech/G.Melnick) (b) Pequena quantidade de um fluido magnético formado por nanopartículas de cobalto. Figuras retiradas da referência [4]. (c) Micrografia de elétrons da proteína cristalino S do globo ocular de um cefalópode. Figuras retiradas da referência [5]. p. 32
- 6 Configuração de equilíbrio de esferas carregadas para baixa (a) e alta (b) concentração de partículas. (c) Apresentação dos diversos tipos de aglomerados observados. Figuras retiradas da referência [6]. p. 34
- 7 Após o tratamento da célula HEK293T com óxido de ferro, as imagens foram feitas das células (a) na ausência e (b) na presença de um campo magnético por 8 horas. Figuras retiradas da referência [7]. p. 35

8	Efeitos do tratamento hipertérmico em células <i>microtubules</i> (a-b) e <i>actins</i> (c-d) usando microscópio de fluorescência. (a-c) Células na ausência do campo magnético. (b-d) Células com nanopartículas magnéticas sob o efeito de um campo magnético oscilante depois de 30 minutos de exposição. Figuras retiradas da referência [8].	p. 36
9	Imagens das cápsulas de $(Fe_3O_4/PAH)_4$ expostas a um campo magnético de alta frequência por (a) 10 minutos, (b) 15 minutos, e (c) 30 minutos. (d) Comportamento da curva de liberação das drogas pela célula $(Fe_3O_4/PAH)_4$ com e sem a influência de um campo magnético de alta frequência. Figuras retiradas da referência [9].	p. 37
10	Comparação da precisão obtida entre os métodos de Newton modificado e algoritmo Monte Carlo de Metropolis. Figura retirada da referência [10].	p. 48
11	(a) Posição radial e (b) frequência dos modos normais de vibração de um aglomerado com $N = 19$ partículas dipolares em função do momento de dipolo das partículas (μ^*). A frequência associada ao modo de vibração radial das partículas (modo de “respiração” ou <i>breathing</i>) em $\mu^* = 0$, é mostrada como uma linha vermelha. (c)-(g) Configuração de menor energia do sistema para cada região definida em (a). A linha tracejada em (c) é apenas um guia para os olhos.	p. 52
12	(a) Menor frequência não-nula (MFN) em função de μ^* para o sistema com $N = 19$ partículas e $B = 0$. (b)-(j) Modos normais de vibração para cada sub-região definida em (a).	p. 54
13	Componente rotacional do modo da MFN para o sistema com $N = 19$ partículas e $B = 0$. Sub-regiões definidas na Figura 12(a) são indicadas em cada figura. A escala colorida informa a amplitude e a direção de rotação das partículas.	p. 55
14	(a) Posição radial e (b) distância de cada partícula em relação ao eixo-x de $N = 19$ partículas dipolares para $B = 5$ em função do momento dipolar das partículas μ^* . (c)-(n) Configuração de mínima energia do sistema para cada região definida em (a).	p. 56

15	(a) Espectro de frequência dos modos normais e (b) a menor frequência não nula (MFN) de $N = 19$ partículas dipolares em função do momento de dipolo das partículas μ^* para $B = 5$. (c)-(p) Modos normais de vibração para cada sub-região definida em (b).	p. 58
16	Modos normais de rotação para o sistema com $N = 19$ partículas e $B = 5$. Em cada figura, indica-se as sub-regiões mostradas na Figura 15(b). A escala de cor indica a amplitude e a direção de rotação das partículas. .	p. 59
17	(a) Posição radial e (b) distancia média de cada partícula em relação ao eixo-x de $N = 19$ partículas dipolares em função do campo magnético B para um valor fixo do momento magnético ($\mu^* = 5$). (c)-(f) Configurações de mínima energia do sistema em diferentes regiões definidas em (a).	p. 61
18	(a) Frequência dos modos normais e (b) menor frequência não-nula (MFN) de $N = 19$ partículas dipolares em função do campo magnético B e momento de dipolo fixo $\mu^* = 5$. (c)-(g) Modos normais de vibração para cada região definida em (b).	p. 63
19	Modos normais de rotação para o sistema com $N = 19$ partículas e $\mu^* = 5$. As sub-regiões definidas na Figura 18(b) são indicadas em cada figura. A escala de cores informa a amplitude e a direção da oscilação rotacional das partículas.	p. 64
20	(a) Posição radial e (b) frequência dos modos normais em função do número de partículas N para $\mu^* = 5$ e $B = 0$. (c)-(e) Configurações de mínima energia do sistema para três regiões definidas em (a).	p. 65
21	(a) Posição radial, (b) distância de cada partícula em relação ao eixo-x e (c) frequência dos modos normais em função do número de partículas para $\mu^* = 5$ e $B = 5$. (d)-(h) Configurações de mínima energia do sistema para cada região definida em (a).	p. 67
22	Ilustração do modelo onde a carga positiva está localizadas na parte interna do sistema, ou seja, na região entre os planos de partículas. . .	p. 73

- 23 (a) Distância média de cada partícula em relação ao eixo-z em função da separação entre as cargas positivas ($d - 2$), para o sistema com $2N = 6$ partículas e $2Z = 6$. (b) Freqüência dos modos normais em função de ($d - 2$). Energia da configuração de mínima energia em função de ($d - 2$) é mostrada no interior de (b). Um exemplo do configuração de mínima energia é apresentado no interior de (a). Círculos abertos e fechados representam partículas de diferentes planos. p. 75
- 24 (a) Distância média de cada partícula em relação ao eixo-z, (b) energia, (c) primeira derivada da energia com respeito a ($d - 2$) e (d) freqüência dos modos normais em função de ($d - 2$) para o sistema com $2N = 6$ partículas e $2Z = 4.4$. Configurações de mínima energia são apresentadas no interior de (d). Círculos abertos e fechados representam partículas de planos diferentes. p. 76
- 25 (a) Distância média de cada partícula ao eixo-z em função de Z para o sistema com $2N \leq 6$ partículas e ($d - 2$) = 2. As curvas em vermelho e preto representam a posição das partículas em planos diferentes. O número de partículas confinadas é mostrado na parte de cima do gráfico. (b) Freqüência dos modos normais em função de Z . Freqüências de vibração em fase (círculos azuis) e fora de fase (estrelas verdes) das partículas de cada plano ao redor do centro do sistema (eixo-z), Eqs. (4.5) e (4.6), respectivamente, são mostradas também. p. 78
- 26 Configurações de mínima energia do sistema com $2N \leq 6$ e ($d - 2$) = 2 para as diferentes regiões da Figura 25. Partículas de diferentes planos estão representadas por diferentes símbolos (círculos abertos e esferas vermelhas). p. 79
- 27 Distância média de cada partícula ao eixo-z e freqüência dos modos normais em função de Z para o sistema com $2N \leq 6$ partículas e ($d - 2$) = 1 (a,b, respectivamente) e ($d - 2$) = 5 (a,b, respectivamente). p. 80
- 28 Diagrama de fase $Z \times (d - 2)$ da configuração de menor energia do sistema com $2N \leq 6$. O número de partículas $2N$ em cada região é apresentado também. Transições estruturais de fase de primeira e segunda ordem são representados por círculos e triângulos, respectivamente. p. 82

- 29 (a)(c) Distância média de cada partícula em relação ao centro do eixo-z com uma função de Z para o aglomerado com $2N \leq 10$, e distância entre as cargas de confinamento $(d - 2) = 2$. Curvas em preto e vermelho representam posições das partículas de planos diferentes. O número de partículas confinadas é dado logo acima da Figura. (b)(d) Freqüência dos modos normais de vibração em função de Z p. 83
- 30 Configurações de mínima energia do sistema com $2N \leq 10$ e $(d - 2) = 2$ para diferente regiões da Figura 29. Partículas de planos diferentes são representadas por símbolos diferente (círculos abertos e esferas vermelhas). p. 84
- 31 Ilustração das oscilações consideradas no cálculo do (a) deslocamento radial médio, (b) deslocamento angular médio das partículas da mesma camada e (c) deslocamento angular entre as camadas. Nas representações de (b) e (c), o vizinho mais próximo da partícula 1 é a partícula 2. . . . p. 88
- 32 (a) Deslocamento radial médio ($\langle u_R^2 \rangle$), (b) deslocamento angular médio das partículas da mesma camada ($\langle u_{a1}^2 \rangle$) e (c) deslocamento angular entre as camadas ($\langle u_{a2}^2 \rangle$) para o sistema com $N_f = 7, N_v = 6$ partículas. A configuração do estado fundamental é mostrada no interior de (a). Partículas de referência ($q_f = 1$) estão representadas por esferas pretas, enquanto partículas com carga $q_v = 3$ estão representadas por esferas cinzas. O modo normal com a menor freqüência não-nula está indicado no interior de (c). p. 95
- 33 (a) Menor freqüência não-nula em função de α para o aglomerado com $N_f = 7, N_v = 6$ partículas. Algumas configurações do estado fundamental são exibidas no interior de (a) (símbolos pretos representam partículas com carga $q_f = 1$, enquanto símbolos cinzas representam partículas com carga $q_v = \alpha$). (b) Temperatura radial média T_r , temperatura de fusão angular das partículas da camada mais interna T_{a1} temperatura de fusão entre as camadas T_{a2} em função de α . (c) Distância de cada partícula em relação ao centro de confinamento em função de α . Curvas de cor preta e cinza são associadas com as partículas que possuem carga $q_f = 1$ e $q_f = \alpha$, respectivamente. p. 97

- 34 Temperatura de fusão radial T_r e temperatura de fusão angular das partículas da camada interna do sistema e a diferença entre a energia da configuração do primeiro estado meta-estável e da energia do estado fundamental ($E_m - E_g$) em função de α para o sistema com $N_f = 7, N_v = 6$ partículas. As configurações do estado fundamental e do estado meta-estável estão indicadas no interior da figura. p. 100
- 35 Deslocamento radial médio ($\langle u_R^2 \rangle$) para as configurações comensuráveis e não-comensuráveis para o sistema com $N_f = 19, N_v = 6$ partícula em função da temperatura. Configuração $T = 0$ está indicada no interior da figura, onde esferas pretas representam as partículas de referência $q_f = 1$, enquanto esferas cinzas representam partículas com carga variável $q_v = 0.1$ ou $q_v = 1.5$ p. 101
- 36 Deslocamento radial médio ($\langle u_R^2 \rangle$) em função da temperatura para cada camada da configuração (a) comensurável e (b) não-comensuráveis para o sistema com $N_f = 19, N_v = 6$ partícula. Configuração em $T = 0$ é apresentada no interior da figura. Esferas pretas representam as partículas de referência $q_f = 1$, enquanto esferas cinzas representam partículas com carga variável $q_v = 1.5$ em (a) e $q_v = 0.1$ em (b) p. 102
- 37 (a) Deslocamento radial médio ($\langle u_R^2 \rangle$), (b) deslocamento angular médio das partículas da mesma camada ($\langle u_{a1}^2 \rangle$) e (c) deslocamento angular entre as camadas ($\langle u_{a2}^2 \rangle$) para o sistema com $N_f = 7, N_v = 6$ partículas. A configuração do estado fundamental é mostrada no interior de (a). Partículas de referência ($m_f = 1$) estão representadas por esferas pretas, enquanto partículas com carga $m_v = 0.1$ estão representadas por esferas cinzas. O modo normal com a menor frequência não-nula está indicado no interior de (c). p. 103
- 38 Deslocamento radial médio ($\langle u_R^2 \rangle$) em função da temperatura para o sistema com $N_f = 7, N_v = 6$ partículas para diferentes valores de β no caso onde (a) $\alpha = 0.3$ e (b) $\alpha = 4.85$. A configuração do estado fundamental para cada valor de α é mostrada no interior das figuras. Esferas pretas representam as partículas de referência ($q_f = 1$), enquanto esferas cinzas representam as partículas de massa $m_v = \beta$ p. 104

- 39 Deslocamento radial médio ($\langle u_R^2 \rangle$) em função da temperatura para o sistema com $N_f = 7, N_v = 6$ partículas para diferentes valores de α . Todas as partículas possuem a mesma massa ($\beta = 1$). p. 106
- 40 Distância média de cada partícula ao centro do potencial de confinamento em função da temperatura para o sistema com $N_f = 7, N_v = 6$ partículas e (a) $\alpha = 1.03$, (b) $\alpha = 1.1$, (c) $\alpha = 1.25$ e (d) $\alpha = 1.3$. Todas as partículas possuem a mesma massa ($\beta = 1$). p. 107
- 41 Temperatura de fusão radial T_r em função de α para o sistema com $N_f = 7, N_v = 6$ partículas. Configurações do estado fundamental estão indicadas no interior da figura. p. 109
- 42 Temperatura de fusão angular entre as camadas T_{a2} em função de α para o sistema com $N_f = 7, N_v = 6$ partículas no limite $|\alpha - 1| \rightarrow 0$ na região III da Figura 33(a). p. 110
- 43 Média do deslocamento radial das partículas para um sistema com $N = 20, B = 8.5$ e $\kappa = 4$ em função da temperatura dada na escala logarítmica. No interior, apresenta-se a configuração de menor energia desse sistema. p. 116
- 44 Influência da temperatura no (a) deslocamento radial médio de cada partícula com respeito ao centro do potencial de confinamento. (b) deslocamento radial médio, (c) distância média e (d) deslocamento angular médio na mesma camada de cada partícula em relação ao centro de massa de cada aglomerado pequeno. (e) deslocamento angular médio do centro de massa de cada pequeno aglomerado em relação ao centro do potencial de confinamento. Os símbolos em forma de círculos abertos e fechados em (a) e (c) representam as posições das partículas dos aglomerados com quatro e seis partículas, respectivamente. A temperatura é dada na escala logarítmica. p. 118
- 45 Temperatura da fusão total do sistema (T_m) (transição sólido-líquido) em função do parâmetro B para um sistema com $N = 20$ partículas e $\kappa = 4$. (a) para pequeno e (b) para altos valores de B . A linha horizontal pontilhada indica a temperatura de um sistema Coulombiano com $N = 20$ partículas. A energia por partícula desse sistema com e sem potencial de confinamento é mostrado no interior de (b). p. 119

46	Configurações de mínima energia para um sistema com $N = 20$ partículas, $\kappa = 4$ e diferentes valores de B	p. 120
47	(a) Deslocamento médio radial das partículas ($\langle u_R^2 \rangle$), (b) média da distância de cada partícula ao centro do sistema, (c) deslocamento radial médio e (d) deslocamento angular médio com respeito ao centro de massa dos aglomerados pequenos para os sistemas com $N = 20$, $B = 7$ e $\kappa = 4$. . .	p. 123
48	Diagrama de fase dos parâmetros (B, κ) mostrando os valores onde o comportamento re-entrante foi observado para o sistema com $N = 20$ partículas. O perfil do potencial de interação para alguns valores relevantes de (B, κ) é mostrado no interior.	p. 124
49	Deslocamento radial médio para um aglomerado com $N = 20$, $B = 7$ e $\kappa = 4$ em função de um aumento de temperatura (círculos pretos e triângulos verdes) e de um decréscimo da temperatura (quadrados vermelhos).	p. 125
50	Energia média por partículas em função da distância da partícula selecionada (para ser movida) ao centro do sistema (partícula indicada por um círculo aberto) para o sistema com $N = 20$ partículas, $B = 7$, $\kappa = 4$ e temperatura fixa $T = 0.0045$. A configuração para três valores da distância da partícula selecionada é mostrada no interior assim como a trajetória da partícula selecionada (linha tracejada).	p. 127
51	Definição dos ângulos utilizados no cálculo dos modos normais.	p. 134

Lista de Tabelas

- 1 Número de estados meta-estáveis (N_{meta}) para diversos valores da razão entre as cargas (α) dos dois tipos de partículas do sistemas com $N_f = 7$, $N_v = 6$ partículas. p. 108

1 Introdução

Sistemas de partículas estão relacionadas a diversos fenômenos envolvendo sistemas físicos, químicos e biológicos. Sua importância não se deve apenas a seu tamanho e seu uso individualmente, mas sim a seu potencial de formar estruturas auto-organizadas. A auto-organização de partículas é importante tanto para pesquisas científicas como na fabricação de sistemas de partículas em nano escala. Sistemas organizados desempenham um papel importante como modelos para o estudo de diferentes fenômenos na física da matéria condensada porque podem ser observados diretamente através de imagens e vídeos produzidos, por exemplo, por uma camera acoplada a microscópio. Através da manipulação correta de partículas, a interação entre as mesmas pode ser controlada quase ilimitadamente. Os estudos dos sistemas citados são motivados, por exemplo, pelo desejo de aumentar o entendimento em relação aos fluidos eletro- e magneto-reológicos [11]. Sistemas auto-organizados compostos por colóides também tornaram possível o estudo de fenômenos termodinâmicos, como: dissipação, fusão, congelamento, transição vítrea e dinâmica Browniana. Nesses sistemas, o tamanho das nanopartículas coloidais pode ser determinado pelo espaço vazio nos cristais coloidais, que são determinados pela interação entre as partículas coloidais. Variando a interação entre as partículas, estruturas em forma de pirâmides, de anéis e linhas de partículas podem ser formadas [12]. Essa formação de estruturas é importante para diversas áreas, como química e biologia. Por exemplo, na área da nanotecnologia, os especialistas então interessados em saber como colóides e nanopartículas podem se auto-organizar em uma estrutura específica. Na indústria, especialistas almejam prever qual liga metálica irá formar o melhor metal [13] e que mudanças estruturais são responsáveis pela formação de vidros [14].

Essa tese apresenta trabalhos dirigidos ao estudo de sistemas de partículas interagentes sob efeito de diferentes forças externas. Na seqüência desta introdução, apresenta-se uma visão geral sobre experimentos envolvendo sistemas de partículas que se organizam devido a forças externas, ou devido à sua interação, além de algumas aplicações. No Capítulo

2, apresenta-se uma breve introdução aos métodos numéricos aqui utilizados (método de Monte Carlo, Dinâmica molecular e Newton Modificado), além da apresentação do cálculo utilizado para obter os modos normais de vibração dos sistemas estudados nesta tese.

No Capítulo 3, estudam-se as configurações de equilíbrio de um sistema bi-dimensional de partículas magnéticas confinadas por um potencial parabólico. Analisa-se a influência da intensidade do momento magnético permanente de cada partícula na configuração de mínima energia do sistema. É mostrado que as partículas se auto-organizam espontaneamente em diferentes estruturas. Além disso, aplica-se um campo magnético paralelo ao plano das partículas de modo que diversos novos tipos de configurações como, por exemplo, estruturas em forma de anel, cadeia de partículas e estruturas em forma de Y, observadas experimentalmente. Apresenta-se também uma análise das frequências dos modos normais das configurações de equilíbrio com e sem a influência do campo magnético. É mostrado que as componentes de vibração e rotação dos modos associados com a menor frequência não-nula, são influenciadas pelo campo magnético externo e pela intensidade do momento de dipolo das partículas. Neste Capítulo, apresenta-se ainda a influência desses parâmetros na configuração de sistemas com diferentes números de partículas.

No Capítulo 4, estuda-se o comportamento de um sistema clássico formado por dois planos de partículas carregadas, acoplados verticalmente. A atenção é concentrada nos efeitos que um potencial de confinamento não parabólico pode causar na estrutura e dinâmica do sistema. Foi observada evaporação de partículas do aglomerado que, em alguns casos, provoca um desbalanceamento de cargas nos planos, levando o sistema a uma configuração não simétrica. Calculou-se também as frequências dos modos normais de vibração, que se mostram sensíveis as transições estruturais sofrida pelo sistema.

A partir do Capítulo 5 estuda-se a estabilidade do sistemas de partículas coloidais. Primeiramente mostra-se uma introdução do método utilizado no estudo da transição sólido-líquido de sistemas de partículas, além de definir propriedades calculadas nos estudos. Em seguida, apresentam-se os resultados para o fenômeno de fusão em um sistema binário contendo dois tipos de partículas confinadas por um potencial parabólico. O objetivo desse trabalho é compreender melhor como a presença de impurezas, representadas por partículas com diferentes cargas e/ou massas, influência na temperatura da transição sólido-líquido de sistemas bi-dimensionais. Para estudar essa influência, as propriedades térmicas do sistema são analisadas em função da relação entre as cargas e massas dos dois tipos de partícula. Neste Capítulo, apresenta-se também um estudo sobre uma possível relação entre a menor frequência não-nula do sistema calculada em $T = 0$ e a temperatura

de fusão do sistema.

No Capítulo 6 analisa-se a fusão de um sistema competitivo consistindo de um número finito de partículas clássicas interagindo através de um potencial formado por um termo repulsivo de longo alcance e um termo atrativo de curto alcance. As partículas deslocam-se em um plano bidimensional e são confinadas por um potencial parabólico. As configurações de mínima energia desse sistema apresentam diferentes configurações topológicas como, por exemplo, estrutura de anéis (círculos), linhas e pequenos aglomerados de partículas. Com a observação dessas estruturas, estuda-se como o fenômeno de fusão ocorre nessas configurações auto-organizadas. Em particular, analisa-se o efeito da interação de curto e longo alcance na estabilidade do sistema. Interessantes fenômenos, como efeito re-entrante e histerese, foram observados em função da temperatura do sistema.

1.1 Cristal de Wigner

Em 1934, Wigner mostrou, teoricamente que, em um sistema tridimensional, elétrons podem se cristalizar numa forma ordenada quando valores críticos de densidade e temperatura fossem atingidos (alta densidade e baixa temperatura). Isso é devido à alta energia de interação coulombiana entre os elétrons, quando comparada à energia cinética; logo, o efeito de correlação domina fortemente a estrutura eletrônica. No regime clássico, a importância da interação coulombiana pode ser determinada pelo chamado parâmetro de acoplamento $\Gamma = \langle V \rangle / \langle K \rangle$, definido pela razão entre a energia potencial $\langle V \rangle = e^2 \langle 1/r \rangle$ e a energia cinética $\langle K \rangle = k_B T$. De acordo com o parâmetro Γ , diferentes regimes podem ser distinguidos. Quando $\Gamma < 1$, que é realizado em um sistema em alta temperatura, a interação coulombiana tem pouca importância no sistema, que se comporta quase como um gás de fermions. Para $1 < \Gamma < 100$, os elétrons são correlacionados e o sistema se comporta com um líquido. Para $\Gamma > 100$, que é um regime de alta-densidade e baixa temperatura, a energia potencial coulombiana “domina” em relação a energia cinética provocando uma forte correlação entre os elétrons, levando o sistema para um estado ordenado.

Experimentalmente, observações de uma rede de Wigner tridimensional não foram ainda realizadas. Elétrons em materiais como metais ou semicondutores são influenciados por imperfeições que podem estar em qualquer lugar da rede. Defeitos, impurezas ou imperfeições semelhantes podem destruir uma rede de Wigner tridimensional. Em

1971, Crandall e Williams [15] propuseram observar a rede de Wigner em um sistema 2D de elétrons acima de uma superfície de hélio líquido, onde as condições de cristalização podem ser realizadas mais facilmente e também por causa da característica quase ideal do sistema, ou seja, sem imperfeições ou impurezas. A primeira observação experimental da cristalização de Wigner em um sistema 2D composto por elétrons foi realizada em 1979, por Grimes e Adams [16]. Desde então, investigações experimentais têm encontrado a formação de cristais de Wigner em diversos sistemas. Mostra-se, por exemplo, que elétrons em pontos quânticos [17], partículas em suspensões coloidais [18] e partículas carregadas em um plasma confinado [19] podem exibir estruturas ordenadas do tipo cristal de Wigner.

1.2 Elétrons sobre líquido de hélio (He)

Um dos sistemas clássicos mais utilizados na observação de cristais de Wigner bidimensionais é a suspensão de elétrons acima da superfície do hélio líquido (He). Nesse caso, os elétrons flutuam numa camada que está, aproximadamente, a 100 Å da superfície do He [1]. Os elétrons são atraídos em direção à superfície devido a uma pequena polarização induzida na mesma, mas são impedidos de penetrar no líquido devido a uma alta barreira de energia potencial na superfície. Quando um campo elétrico perpendicular é aplicado, o sistema torna-se bastante instável e a distribuição homogênea de cargas é destruída. Os elétrons acima da superfície tornam-se localizados em depressões, ou “bolsas”, que se formam na superfície do líquido devido à presença do campo elétrico. Essas depressões, cujo o diâmetro médio é de 1mm, contêm, em média, 10^7 elétrons. As “bolsas” de elétrons podem ser consideradas partículas macroscópicas clássicas interagindo através do potencial coulombiano, levando o sistema para uma configuração de camadas, como mostrado nas Figuras 1(a)(b)(c). Esses sistemas de elétrons acima de uma superfície de elétrons se comportam classicamente, por sua densidade ser da ordem de $10^5 - 10^9 \text{ e cm}^{-2}$ (energia de Fermi $E_F \sim 0.01 - 100mK$).

1.3 Plasma Complexo

Outro sistema no qual é possível encontrar uma cristalização de cargas, e que tem recebido grande atenção nos últimos anos, é o chamado *dusty* plasma, ou plasma complexo [20]. Não só por sua ampla aplicação tecnológica (por exemplo, na deposição de filmes finos, onde a contaminação por impurezas pode resultar em filmes com propriedades

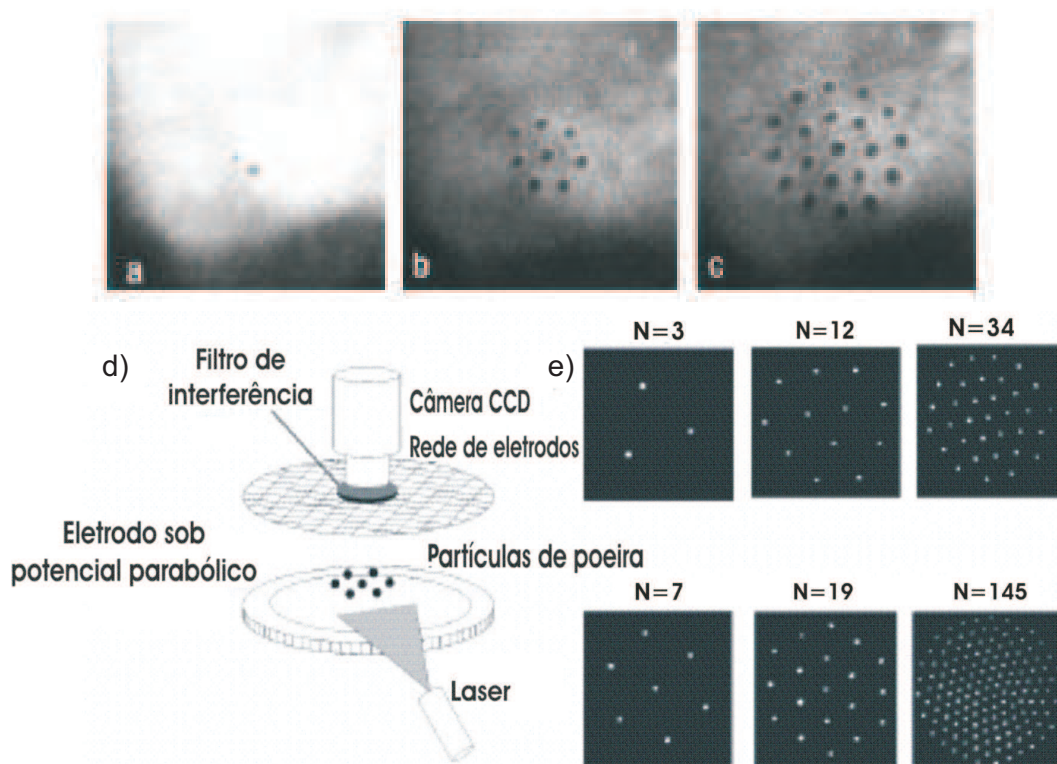


Figura 1: Configuração de (a) 2, (b) 8 e (c) 20 ondulações (pontos escuros) dentro de uma parede cilíndrica simétrica numa superfície de hélio. Figura retirada da referência [1]. (d) Esquema experimental. (e) Configuração do sistema com $N=3, 7, 12, 19, 34$ e 145 partículas. Figura retirada da referência [2].

bastante diferentes), mas também pela possibilidade de investigação de propriedades fundamentais de sistemas fortemente carregados. Na produção de microchips, o processo para evitar a contaminação por partículas nos vários passos que envolvem plasmas, tem sido um grande desafio tecnológico [21, 22]. Por outro lado, o crescimento, transporte e deposição de nanopartículas é objetivo central de várias técnicas de deposição de plasma na fabricação de células solares.

Um *dusty* plasma consiste de partículas microscópicas (com tamanho variando entre 10^{-9} m e 10^{-4} m), imersas em um plasma onde estão presentes elétrons, íons e outras partículas neutras [ver Figura 2]. Nesse meio, as partículas microscópicas tornam-se altamente carregadas (com carga da ordem de 10^4 cargas elementares) devido a um fluxo contínuo de elétrons e íons, que são adsorvidos nas partículas microscópicas (*dust*). Devido ao elevado valor de carga, a interação coulombiana entre as partículas microscópicas excede bastante o valor da energia cinética, de modo que o sistema é dito fortemente acoplado. Quando este acoplamento excede um limiar crítico, as partículas arranjam-se numa estrutura cristalina e este fato relaciona bastante o estudo do *dusty* plasma

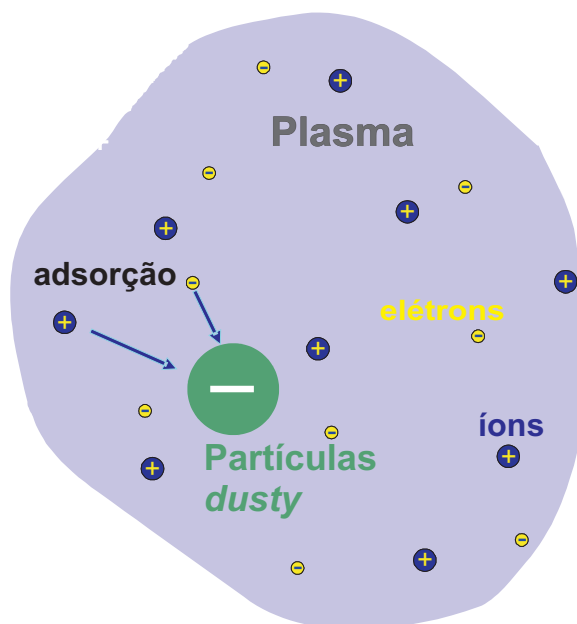


Figura 2: Visão esquemática de um *dusty* plasma.

à pesquisa em matéria condensada [19, 23, 24, 2], visto que as propriedades típicas de cristais podem ser estudadas nesse sistema. Uma das vantagens observadas no sistema de *dusty* plasma é que os processos dinâmicos são fracamente amortecidos, sendo as escalas espacial e temporal típicas envolvidas perfeitas para o uso de vídeo-microscopia [2]. Assim sendo, são convenientes investigações envolvendo, por exemplo, o tipo de interação entre partículas, pois podem ser diretamente comparadas com simulações numéricas e/ou cálculos analíticos.

1.4 Armadilhas de Paul e Penning

Um plasma constituído puramente de partículas positivas (como íons de magnésio) ou puramente de partículas negativas (como elétrons) é extremamente difícil de controlar por causa da natureza repulsiva da força entre as partículas. Esses sistemas são chamados plasma não-neutro, e podem ser controlados em uma armadilha de *Penning*, onde um campo elétrico e um campo magnético são usados para confinar as partículas carregadas. Esse dispositivo de confinamento possui simetria tipicamente cilíndrica, com baterias colocadas nas pontas do cilindro para produzir o campo elétrico e campo magnético de baixo para cima na Figura 3. Além disso, um feixe de laser é utilizado para diminuir a temperatura para valores muito baixos, onde estados de líquido e cristal são encontrados.

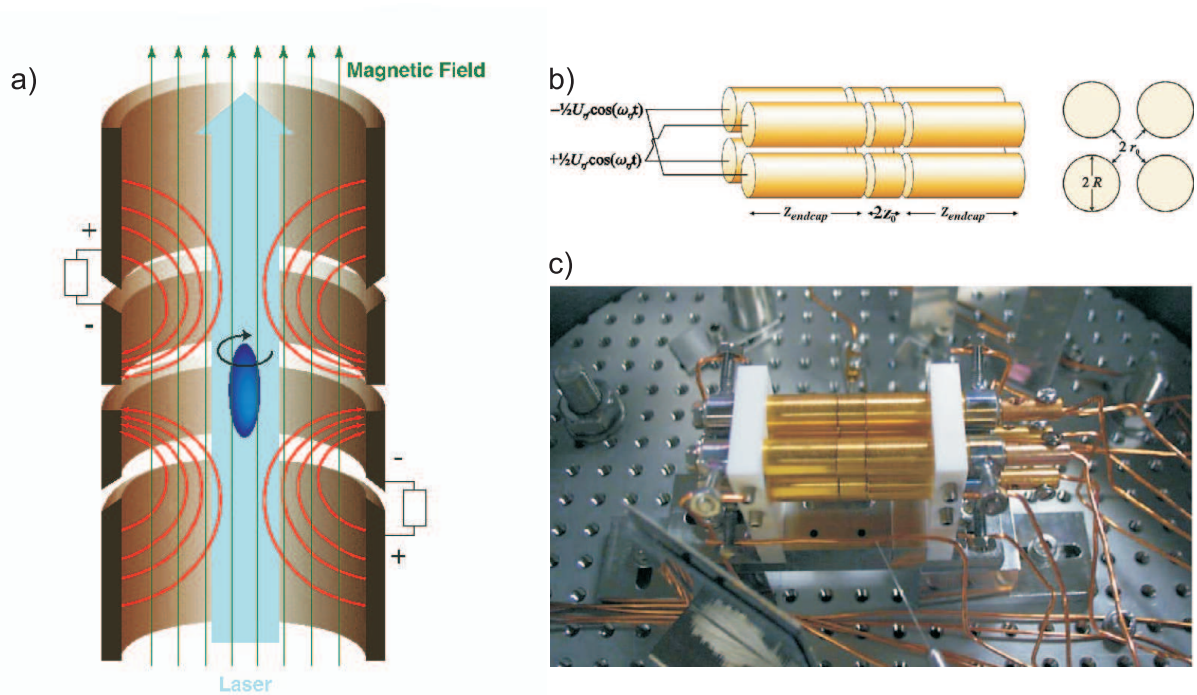


Figura 3: (a) Ilustração de uma armadilha de *Penning*, onde a idéia é confinar partículas carregadas utilizando um campo elétrico e um campo magnético. (b) Esboço do experimento utilizado para confinar as partículas carregadas e (c) imagem do aparelho utilizado no experimento da Ref. [3].

A cristalização, utilizando armadilha de *Penning*, com números pequenos de íons ($N < 50$) em aglomerados coulombianos, foi primeiro observada por Diedrich *et al.* [25] e Wineland *et al.* [26]. Recentemente, trabalhos em armadilha de *Penning* vêm sendo desenvolvidos, com novas técnicas de confinamento sendo utilizadas, como por exemplo, o sistema analisado por Drewsen *et al.* [3]. Esse experimento é composto por quatro eletrodos [ver Figura 3(b)], arranjados de forma a aplicar uma frequência de mesma fase nos eletrodos da diagonal, porém com uma fase deslocada de 180° em relação aos eletrodos vizinhos. Através de uma frequência apropriada, confinamentos axiais e radiais podem ser obtidos. Na Figura, é mostrada 4, uma imagem de um cristal duplo, consistindo de dois isótopos de cálcio. Observa-se que a luz proveniente dos íons $^{40}\text{Ca}^+$ se agrupa próxima ao eixo de confinamento em uma estrutura cilíndrica, enquanto os íons mais pesados $^{44}\text{Ca}^+$ formam uma estrutura do tipo camadas elipsoidais. Essa segregação é uma das características que deverá ser comentada durante esta tese, em outro sistema estudado com diferentes partículas. Experimentalmente, é uma característica importante, por possibilitar a seletividade de isótopos, já que as partículas carregadas mais leves

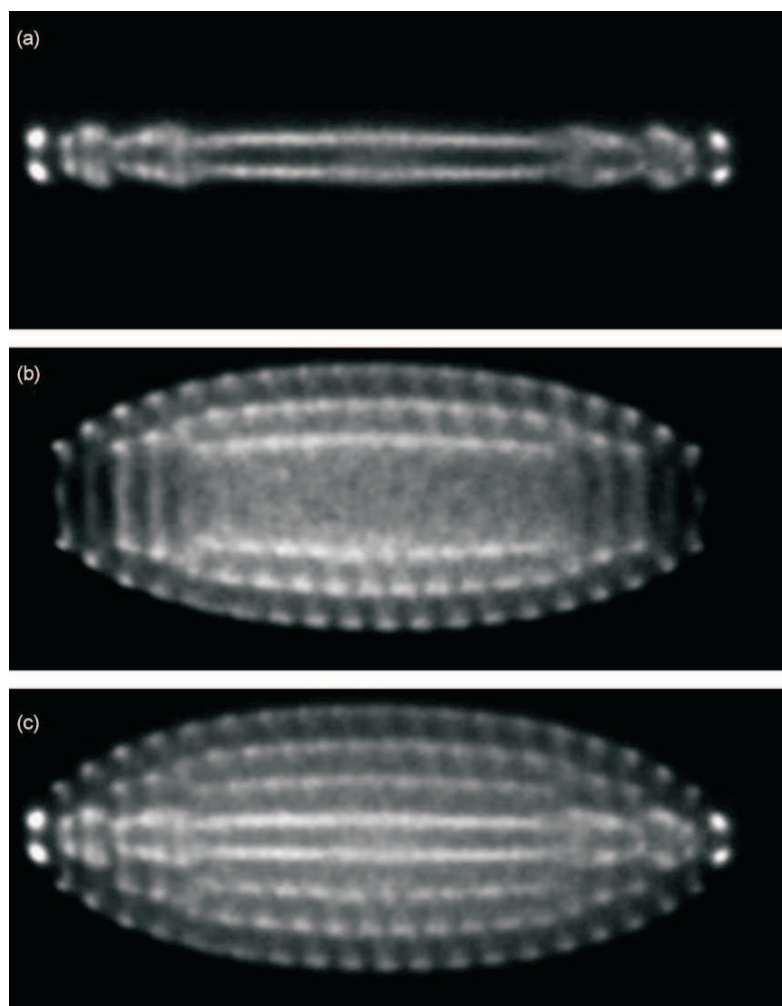


Figura 4: Imagem da fluorescência de um cristal duplo consistindo de íons $^{40}\text{Ca}^+$ e íons $^{44}\text{Ca}^+$. (a) Fluorescência apenas da parte dos íons $^{40}\text{Ca}^+$ do cristal. (b) Fluorescência apenas da parte dos íons $^{44}\text{Ca}^+$ do cristal, (c) Imagem da fluorescência de todo o cristal. Figura retirada da Ref. [3]

situam-se na parte mais externa do aglomerado.

1.5 Sistemas coloidais com interação competitiva

Além da configuração em forma de anéis (observada na Figura 1), sistemas reais apresentam diferentes arranjos estruturais. Em geral, as diversas estruturas observadas podem ser classificadas como aglomerados (*bubbles*), linhas (*stripes*) e camadas (*rings*). Várias dessas estruturas são observadas na natureza. Na biologia, essas estruturas são formadas por membranas celulares formadas por proteínas e lipídios. Um exemplo das estruturas formadas por proteínas pode ser observado na Figura 5(c), onde são mostradas algumas estruturas da proteína cristalino S, principal proteína da membrana ocular dos

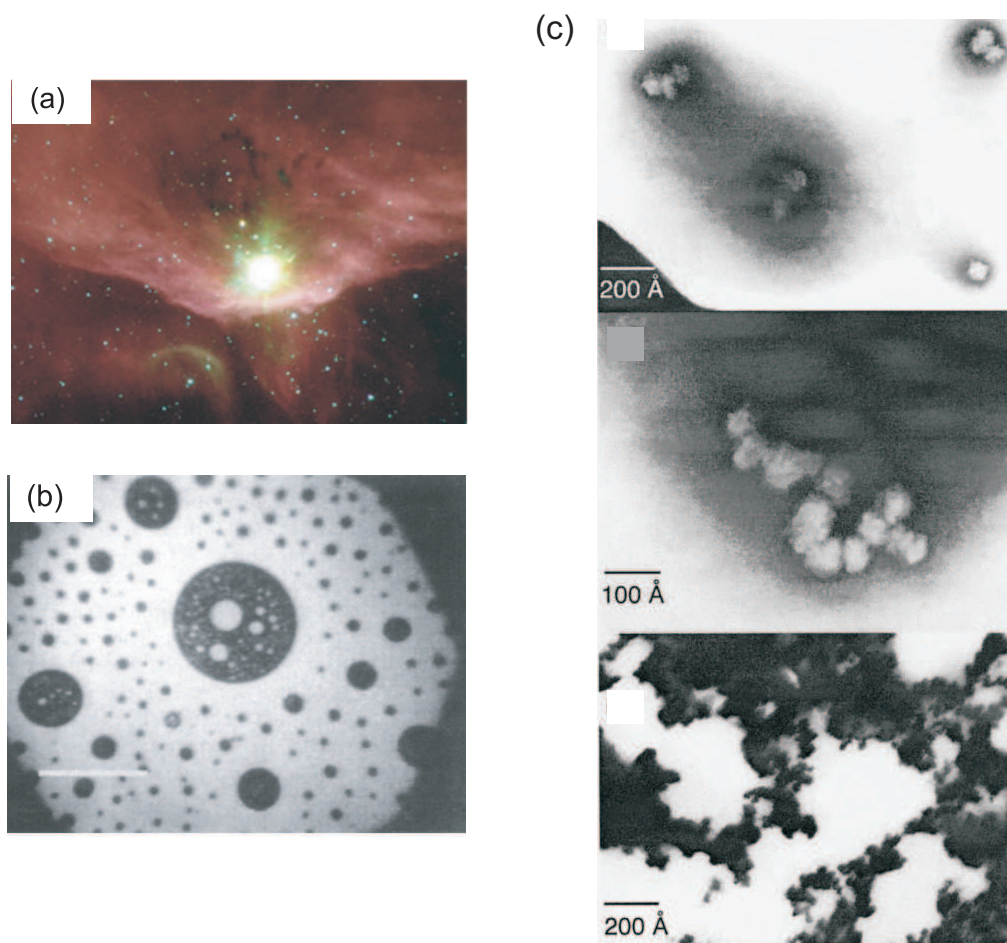


Figura 5: (a) Partículas suspensas colidindo entre si devido ao movimento Browniano. (From NASA/JPL-Caltech/G.Melnick) (b) Pequena quantidade de um fluido magnético formado por nanopartículas de cobalto. Figuras retiradas da referência [4]. (c) Micrografia de elétrons da proteína cristalino S do globo ocular de um cefalópode. Figuras retiradas da referência [5].

cefalópodes [5]. Essa figura mostra a morfologia do cristalino S examinado através de um microscópio de transmissão de elétrons. Várias formas poliméricas podem ser observadas, incluindo monômeros, dímeros, trímeros e polímeros. Essa proteína tem uma alta tendência de agregação e, como pode ser visto, forma estruturas irregulares. Atualmente, sabe-se que uma grande variedade dessas estruturas é formada pela competição entre tensão superficial e repulsão, devido a um potencial eletrostático dipolar [27].

Além das proteínas, a interação atrativa pode ser observada entre partículas coloidais [28, 29] e DNA [30]. O entendimento dessa força atrativa é de extrema importância pois possibilita determinar a estabilidade do sistema e permite controlar a formação de estruturas de uma variedade de macromoléculas em soluções aquosas. O entendimento desse processo também é necessário para modelos computacionais, controle de processos e várias aplicações em engenharia de colóides desde matérias leves até biotecnologia [6, 31]. Em ciência dos materiais, por exemplo, experimentos em sistemas coloidais, combinados com

predições teóricas, podem levar à concepção de novos materiais leves e a uma compreensão mais profunda dos estados da matéria como vidro e gel [32]. Diversos sistemas mostram possuir uma interação competitiva de atração e repulsão. No espaço, por exemplo, existem partículas flutuantes (Figura 5(b)) que colidem devido à constante agitação térmica. Atração gravitacional entre desses minúsculos grãos de poeira é desprezível, de forma que eles se aglomeram apenas devido às forças eletrostáticas de van der Waals e repelem-se mutuamente por um potencial Coulombiano. Um outro exemplo é a dispersão de materiais químicos sintetizados como nanopartículas de cobalto num meio aquoso (Figura 5(b)).

Além de apresentar uma rica variedade de tipos de aglomerados, e mostrar um excelente modelo para aplicações tecnológicas, os sistemas coloidais permitem controlar a interação entre constituintes, além da vantagem de poderem ser filmados em tempo real através de um microscópio. Com isso, uma grande variedade de atividades está sendo desenvolvida em sistemas coloidais a fim de compreender a estrutura e a dinâmica de diferentes tipos de sistemas, onde as partículas coloidais interagem através de um potencial atrativo de curto alcance e um potencial repulsivo de longo alcance [33, 34]. Dessa maneira, diversos experimentos estão sendo realizados a fim de observar a influência da intensidade do potencial de atração nas estruturas exibidas pelo sistema. Chen *et. al* [6] estudaram recentemente um sistema de partículas carregadas em uma solução aquosa. As Figuras 6(a) e 6(b) mostram a configuração de mínima energia para o experimento com baixa e alta concentração de partículas carregadas, respectivamente. Em baixa concentração, observa-se que as partículas ficam dispersas no sistema. Para uma concentração elevada (Figura 6(b)), observa-se que as partículas começam a se aproximar formando pequenos aglomerados de diversos formatos. Essas estruturas podem ser observadas mais claramente na Figura 6(c), que mostra as configurações individualmente. Diversos outros experimentos estudaram sistemas de partículas interagindo com um potencial competitivo como, por exemplo, esferas metálicas [35, 36], sistemas dinâmicos [37] e cristalização em suspensão coloidais [38].

No Capítulo 6 desta tese, serão apresentados resultados sobre a estabilidade de um sistema de partículas coloidais que interagem através de uma interação competitiva de atração num curto alcance e repulsão para grandes distâncias que forma diversas estruturas assim como os sistemas apresentados acima.

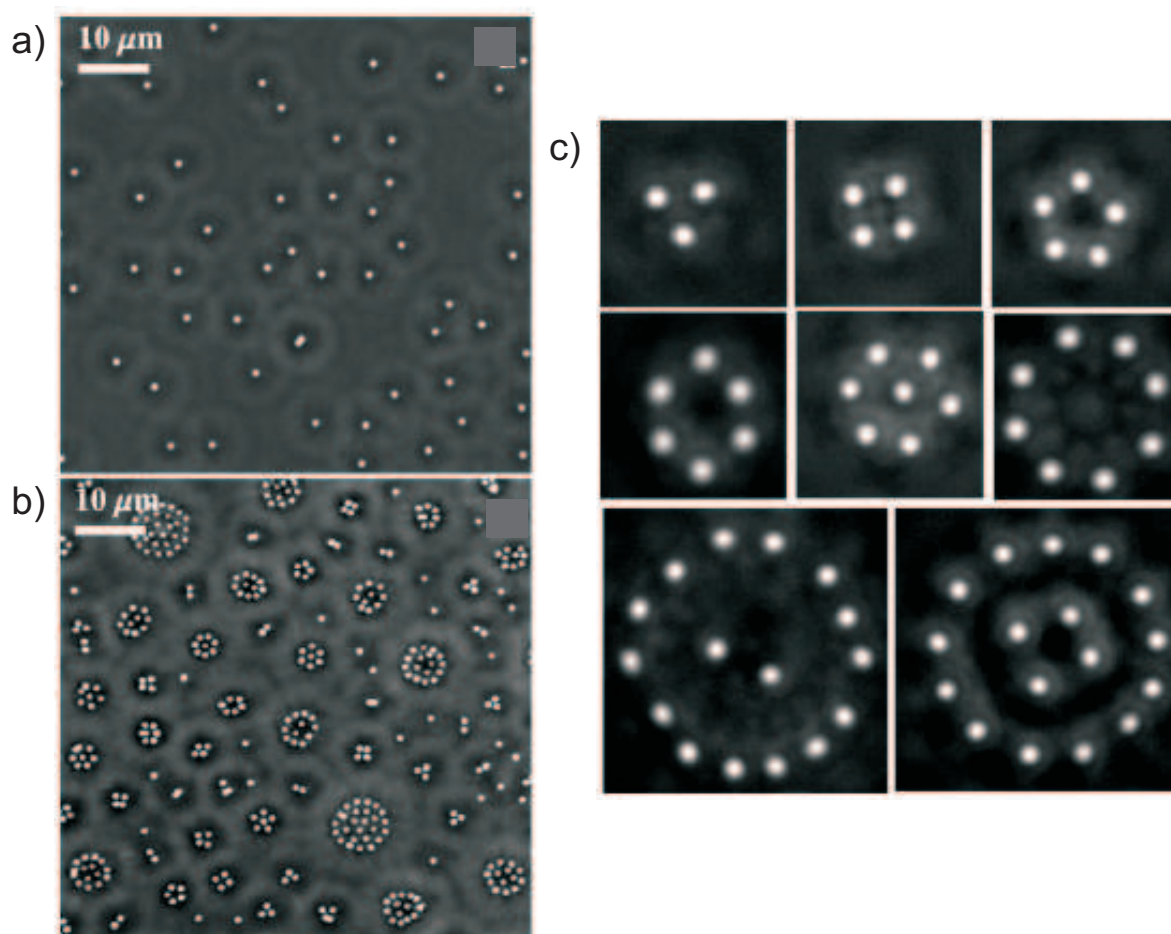


Figura 6: Configuração de equilíbrio de esferas carregadas para baixa (a) e alta (b) concentração de partículas. (c) Apresentação dos diversos tipos de aglomerados observados. Figuras retiradas da referência [6].

1.6 Nanopartículas magnéticas

A principal característica das nanopartículas magnéticas é o fato das mesma poderem ser controladas por um campo magnético externo. Isso possibilita o uso dessas partículas em diversas aplicações. Por exemplo, se a manipulação de nanomateriais controláveis no interior de células for viável, isso pode permitir formas eficazes de investigação de funções específicas das células sem perturbar outras partes do seu interior. Com esse objetivo, Xu *et al.* sintetizaram nanopartículas magnéticas fluorescentes $Fe_3O_4 - CdSe$ para demonstrar sua manipulação intracelular [7]. Essas nanopartículas magnéticas fluorescentes exibem duas interessantes características: superparamagnetismo e fluorescência, permitindo que seus movimentos intracelulares sejam controlados utilizando força magnética, monitorados através de um microscópio de fluorescência.

A Figura 7 apresenta nanopartículas magnéticas dentro de uma célula utilizando ima-

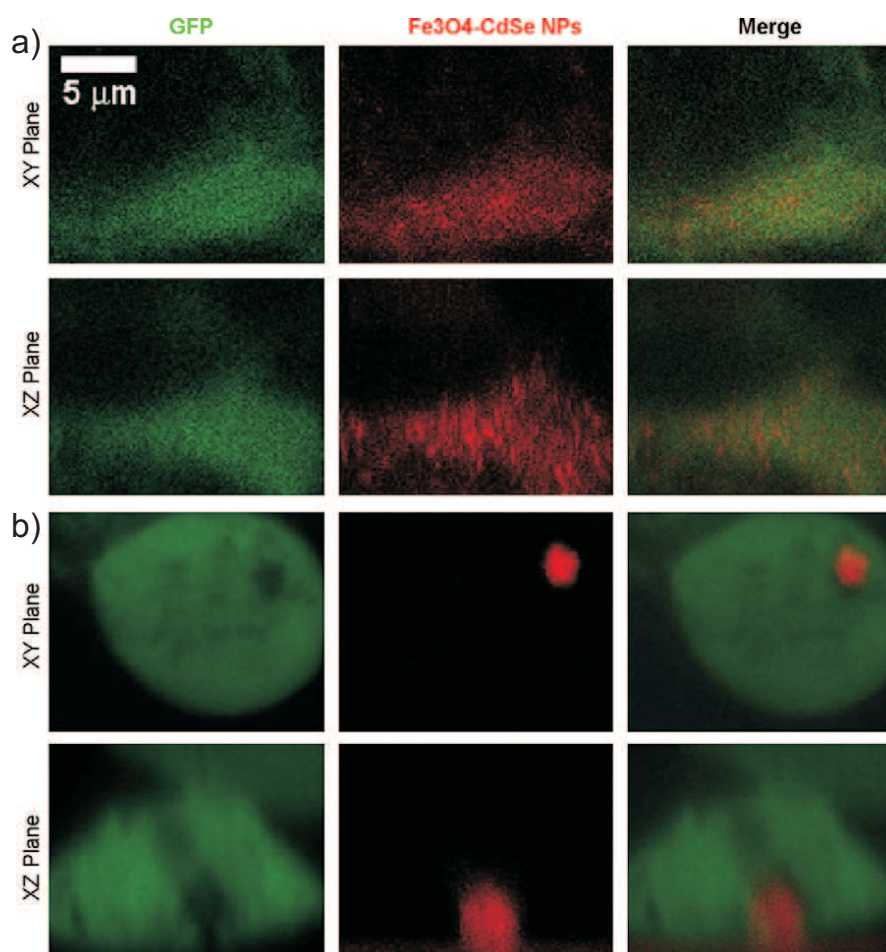


Figura 7: Após o tratamento da célula HEK293T com óxido de ferro, as imagens foram feitas das células (a) na ausência e (b) na presença de um campo magnético por 8 horas. Figuras retiradas da referência [7].

gens de um microscópio confocal. A Figura 7(a), mostra que, sem a aplicação de um campo magnético, as partículas se distribuem de forma aleatória na célula. Com a aproximação de um pequeno ímã (Figura 7(b)) as nanopartículas se agregam no lado da célula, próximo do ímã. Devido ao seu momento magnético, as nanopartículas caminham em direção ao ímã devido ao gradiente do campo magnético. O movimento de cada nanopartícula sobre o efeito do campo magnético (H) é parcialmente impedido devido à viscosidade da célula, resultando numa resposta lenta das partículas. Dessa maneira, os autores observaram que essas nanopartículas se aglomeram completamente após 8 horas sob a influência do campo magnético externo.

Localizar as nanopartículas magnéticas dentro de células teria um outro benefício potencial terapêutico, chamado de hipertermia magnética terapêutica (MHT). A possibilidade de tratar câncer por um aumento induzido da temperatura levou ao desenvolvimento de diversos dispositivos concebidos para aquecer as células malignas sem atingir os tecidos

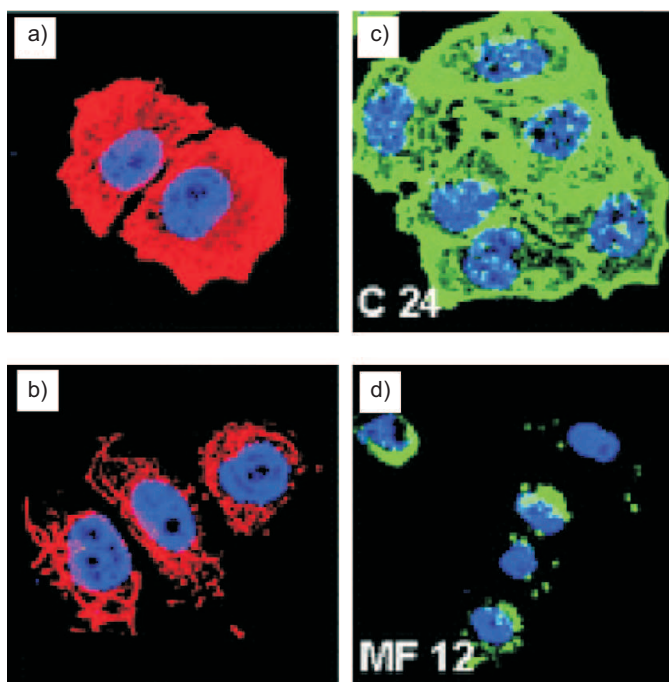


Figura 8: Efeitos do tratamento hipertérmico em células *microtubules* (a-b) e *actins* (c-d) usando microscópio de fluorescência. (a-c) Células na ausência do campo magnético. (b-d) Células com nanopartículas magnéticas sob o efeito de um campo magnético oscilante depois de 30 minutos de exposição. Figuras retiradas da referência [8].

sadios [39]. Quando as nanopartículas magnéticas são expostas a campos magnéticos AC (oscilatório) as partículas tornam-se poderosas fontes de calor. Com isso, podem destruir células cancerosas. Diferente de outros métodos de tratamento, a hipertemia magnética terapêutica é eficiente, pois oferece uma maneira de garantir que a calefação só aconteça nos tecidos desejados.

Usando nanopartículas de manganês dopado por óxido de ferro, Prasad *et. al* investigaram o mecanismo de hipertermia magnética de células utilizando microscopia imunofluorescente [8]. Conforme mostrado na Figura 8, a morfologia das células muda significativamente após um breve aumento de temperatura induzido nas nanopartículas magnéticas por um campo magnético AC. Como pode ser observado, as células sob efeito de um campo magnético AC diminuíram sua atividade (Figura 8(b)) e foram até destruídas (Figura 8(d)) em relação a seu estado inicial, ou seja, na ausência de um campo magnético oscilante (Figura 8(a) e (c)).

As partículas magnéticas não são utilizadas apenas na destruição de partículas cancerosas, mas também no aumento da eficiência de fármacos dentro delas. Esse procedimento está ilustrado na Figura 9(d), mostrando que o processo consiste em encapsular os agentes ativos da droga por camadas de óxido de ferro (Fe_3O_4). Feito isso, essas cápsulas

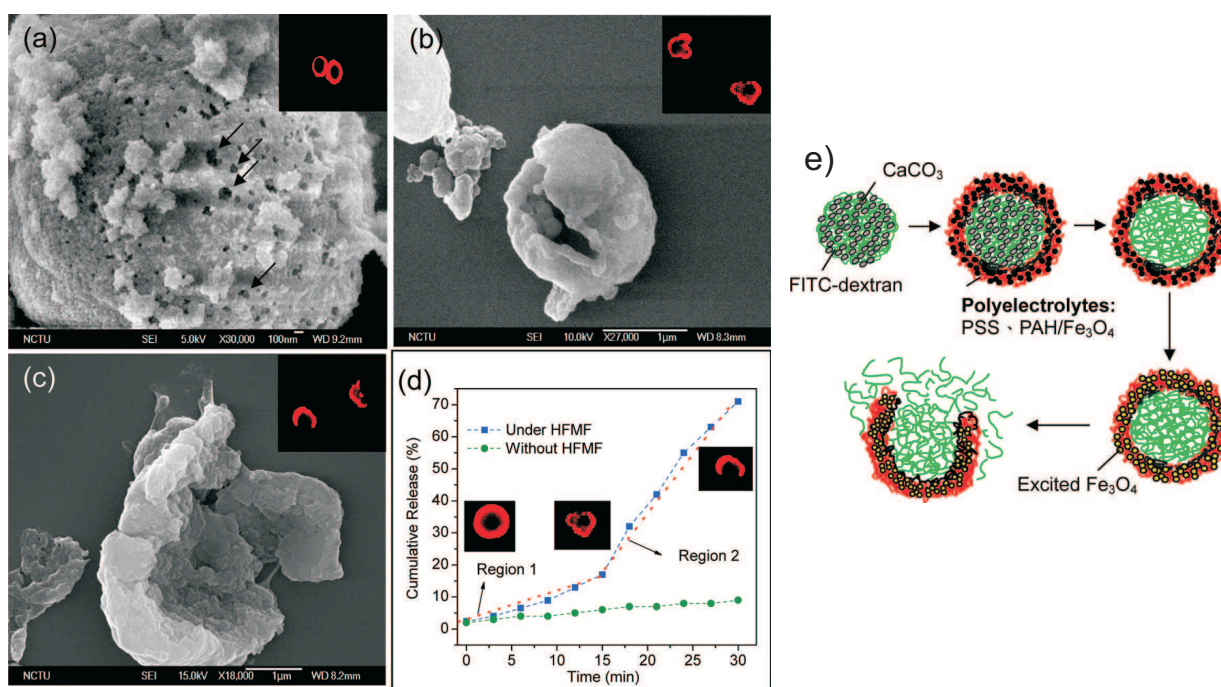


Figura 9: Imagens das cápsulas de $(Fe_3O_4/PAH)_4$ expostas a um campo magnético de alta frequência por (a) 10 minutos, (b) 15 minutos, e (c) 30 minutos. (d) Comportamento da curva de liberação das drogas pela célula $(Fe_3O_4/PAH)_4$ com e sem a influência de um campo magnético de alta frequência. Figuras retiradas da referência [9].

são levadas à célula desejada, onde liberam os agentes ativos dos fármacos devido ao descapsulamento produzido por um campo magnético oscilante.

A Figura 9 mostra a morfologia da superfície das microcápsulas na ausência do campo magnético, as quais não apresentam qualquer fenda ou buracos perceptíveis. No entanto, após 10 minutos sob a influência de um campo magnético oscilante, uma certa quantidade de pequenas cavidade surge na superfície das microcápsulas (Figura 9(a)). Após 15 minutos de exposição ao campo, numerosas fissuras surgiram na superfície das microcápsulas (Figura 9(b)). Após 30 minutos de exposição ao campo magnético, as microcápsulas foram rompidas (Figura 9(c)) liberando assim os agentes ativos das drogas. Com isso, pode-se observar na Figura 9(d) que a ruptura das microcápsulas causou um aumento dramático na liberação da droga, indicando a grande utilidade das partículas magnéticas no tratamento de doenças [31].

Motivado pela grande aplicabilidade das partículas magnéticas, apresenta-se no Capítulo 3 desta tese um estudo sobre as diferentes estruturas que essas partículas, dotadas de interação dipolar, podem apresentar na presença ou na ausência de um campo magnético externo (efeito de viscosidade não foram levados em consideração).

2 Métodos Numéricos

Com o aparecimento dos computadores, vários métodos numéricos foram desenvolvidos para possibilitar simulações computacionais em sistemas, que muitas vezes são impossíveis de serem realizados experimentalmente [40, 41, 42]. Métodos numéricos são empregados em diversos problemas aplicados em diversas áreas como biologia [43], física [40] e medicina [44], através de simulações computacionais utilizadas no estudo das propriedades dos sistemas ou para a predição do comportamento dos mesmos. Simulações computacionais desempenham relevante papel tanto no desenvolvimento do conhecimento, através da análise de sistemas hipotéticos, quanto na modelagem de experimentos reais.

Neste Capítulo, serão descritos os principais métodos de simulação utilizados nesta tese juntamente com técnicas de aproximação utilizadas para melhorar a eficiência e a rapidez numérica. Serão introduzidas as técnicas de simulação de Dinâmica molecular e Monte Carlo, utilizadas em vários estudos aqui desenvolvidos. Além dessas técnicas, o método de Newton Otimizado será descrito em detalhes, por não ser tão conhecido como os outros métodos citados e por oferecer uma maior rapidez nos resultados numéricos.

2.1 Dinâmica molecular (DM)

Descrevendo a evolução do sistema físico através da solução das equações de movimento de cada partícula, o método de Dinâmica Molecular permite calcular propriedades estáticas e dinâmicas. Diferente do método Monte Carlo, que considera apenas a configuração das partículas e que será discutido posteriormente, o método de Dinâmica Molecular requer completa informação sobre as posições e velocidades das partículas em todo o tempo de simulação, descrevendo assim as trajetórias no espaço de fase não apenas de uma partícula, mas de todas elas, obedecendo às leis clássicas de movimento. Basicamente, a forma mais simples do método de Dinâmica Molecular envolve a segunda Lei de Newton. No entanto, em alguns casos os sistemas são estudados por outros métodos

como equações de Lagrange e Hamilton. Moléculas que possuem graus de liberdade internos estão sujeitas às forças estruturais, por exemplo, são estudadas através do método de Lagrange com o objetivo de incorporar os efeitos geométricos do sistema nas equações de movimento [42].

O ambiente de equilíbrio natural de um sistema simulado por Dinâmica Molecular é o *ensemble*¹ microcanônico da Mecânica Estatística. Isso se deve ao fato de o método de Dinâmica Molecular permitir que o sistema percorra o espaço de fase em uma trajetória caracterizada por um valor constante de energia, conhecido previamente. A simulação do sistema em outros *ensembles* requer modificações nas equações de movimento, além de não considerar a energia constante. Sendo esse método baseado no movimento contínuo das partículas, as propriedades estatísticas do sistema devem ser calculadas resolvendo-se numericamente as equações de movimento e obtendo-se as médias das propriedades sobre os passos de simulação. Sendo essas médias estatísticas calculadas em vários passos de simulação, a veracidade deste cálculo é justificada pelo Teorema da Ergodicidade da Mecânica Estatística².

Em geral, sistemas de partículas são descritos através do Hamiltoniano do sistema, composto por um termo cinético e um termo que descreve o potencial de interação, ou seja,

$$H = \frac{1}{2} \sum_{i=1} \frac{p_i^2}{m_i} + \sum_{i<j} U(r_{ij}), \quad (2.1)$$

onde r_{ij} é a distância entre as partículas i e j , p_i e m_i são o momento linear e a massa da partícula i , respectivamente. A força resultante em uma partícula é calculada através da derivada do potencial de interação. Sabendo-se que a força resultante é $\vec{F} = -\nabla U$, a componente x da força resultante da partícula i é dada por

$$F_{x_i}(r_{ij}) = -\frac{x}{r_{ij}} \left(\frac{\partial U(r_{ij})}{\partial r} \right) \quad (2.2)$$

e similarmente para as componentes y e z . A equação de movimento para cada partícula

¹Conjunto de estados microscópicos de um sistema. Especificamente, *ensemble* é uma coleção de sistemas que possuem composições e condições macroscópicas idênticas, existindo em diferentes estados.

²O Teorema da Ergodicidade afirma que uma propriedade pode ser calculada através de uma média temporal, que é o cálculo dessa propriedade sobre um tempo suficiente para que o sistema ocupe todos os estados acessíveis no espaço de fase, ou através da média sobre todas as possíveis configurações do sistema para um dado *ensemble*.

i segue da segunda Lei de Newton

$$m_i \left(\frac{\partial^2 \vec{r}_i}{\partial t^2} \right) = \vec{F}_i = \sum_{\substack{j=1 \\ (j \neq i)}}^N \vec{f}_{ij} \quad (2.3)$$

onde f_{ij} é a força que a partícula j exerce na partícula i . Dessa maneira, o somatório se dá sobre as N partículas excluindo a própria partícula i cuja aceleração é dada por $(f(t)/m)$. De acordo com a terceira Lei de Newton $\vec{f}_{ij} = -\vec{f}_{ji}$, cada par de partícula necessita ser calculado apenas uma vez. A evolução temporal das posições e as velocidades das partículas podem ser calculadas através da expansão de Taylor das coordenadas de uma partícula em relação ao tempo t , ou seja,

$$r(t + \Delta t) = r(t) + v(t)\Delta t + \frac{f(t)}{2m}\Delta t^2 + \frac{\Delta t^3}{3!} \left(\frac{\partial^3 r}{\partial t^3} \right) + O(\Delta t^4), \quad (2.4)$$

para um tempo Δt após o tempo atual t . Na equação anterior, v é a velocidade e $f(t)$ é a força aplicada na partícula calculada anteriormente. Da mesma forma, para um intervalo de tempo Δt anterior a t , temos

$$r(t - \Delta t) = r(t) - v(t)\Delta t + \frac{f(t)}{2m}\Delta t^2 - \frac{\Delta t^3}{3!} \left(\frac{\partial^3 r}{\partial t^3} \right) + O(\Delta t^4). \quad (2.5)$$

Somando as Eqs. (2.4) e (2.5), temos

$$r(t + \Delta t) + r(t - \Delta t) = 2r(t) + \frac{f(t)}{m}\Delta t^2 + O(\Delta t^4) \quad (2.6)$$

ou

$$r(t + \Delta t) = 2r(t) - r(t - \Delta t) + \frac{f(t)}{m}\Delta t^2. \quad (2.7)$$

Observa-se que a nova posição da partícula é dada em função das posições em instantes anteriores e pela força das outras partículas que atuam nela. A partir do conhecimento da trajetória pode-se derivar a velocidade. Subtraindo as Eqs. (2.4) e (2.5) tem-se

$$r(t + \Delta t) - r(t - \Delta t) = 2v(t)\Delta t + O(\Delta t^3), \quad (2.8)$$

obtendo

$$v(t) = \frac{r(t + \Delta t) - r(t - \Delta t)}{2\Delta t} + O(\Delta t^2). \quad (2.9)$$

Esse procedimento é o método executado pelo algoritmo de Verlet [45]. Nota-se nesse método que a velocidade não determina a posição, e sim o oposto, e que a expressão para a velocidade apresenta um erro na ordem Δt^2 . Contudo, há outros métodos de

integração que podem oferecer maior precisão na velocidade, como *leapfrog*, *Runge-Kutta* e *Predictor-Corrector* [45, 46, 42].

A partir das Eqs. (2.7) e (2.9), pode-se evoluir o sistema de partículas no tempo calculando a energia cinética e energia potencial em cada passo Δt . Sendo o sistema composto apenas por forças conservativas, a energia total do sistema, ou seja, a energia cinética mais a potencial, deverá ser conservada durante toda a simulação. Considerando a média da energia cinética pode-se calcular a temperatura instantânea do sistema através do teorema da equi-partição, ou seja,

$$T(t) = \frac{1}{Nk_b} \sum_{i=1}^N \frac{mv_i^2(t)}{d}, \quad (2.10)$$

onde N é o número de partículas, k_b é a constante de Boltzmann e d é o número de graus de liberdades das partículas no sistema.

Vários outros métodos de Dinâmica Molecular foram propostos com o objetivo de simular sistemas físicos em *ensembles* diferentes do microcanônico (energia total constante), por exemplo, *ensemble* canônico [47], *ensemble* com pressão constante [48, 49, 50] e *ensemble* com pressão e temperatura constantes [47]. Em 1984, Shuichi Nosé [47] comparou alguns desses métodos relacionados ao *ensemble* canônico e desenvolveu um formalismo unificado. Especificamente, o método de Nosé, também chamado de método de Sistema Estendido [47], tem como base a introdução de um sistema externo ao que será simulado, e que atua como banho térmico que interage com as partículas. Escolhendo a forma do potencial dos dois sistemas corretamente, o qual deve conter o potencial do sistema de N partículas e alguns termos do banho térmico, pode-se construir uma função distribuição que é exatamente aquela do *ensemble* canônico. Assim, podem-se reescrever as equações de movimento, que agora terão variáveis do banho térmico, e simular um sistema de partículas com temperatura constante. Além de permitir a simulação de um sistema com o método de Dinâmica Molecular no *ensemble* canônico, o método de Sistema Estendido também permite simular sistemas no *ensemble* com pressão e temperatura constantes [47].

2.1.1 Condições de contorno periódicas

Com o avanço das técnicas de simulação computacional, vários trabalhos foram desenvolvidos tanto em sistemas finitos como infinitos. Sistemas finitos e infinitos possuem propriedades muito diferentes devido ao efeito de bordas existente em um sistema finito. Os primeiros trabalhos em sistemas infinitos eram aproximados por sistemas com um

grande número de partículas (N). No entanto, nunca se sabia, de fato, qual o tamanho necessário para que o efeito de borda fosse desprezível. A introdução das condições de contorno periódicas possibilitou a representação de um sistema infinito através de um sistema com um número pequeno de partículas, não influenciado pelos limites espaciais do sistema. Essas condições são facilmente implementadas, e têm como idéia principal a repetição da célula de simulação em todas as direções do sistema. Se uma partícula cruza uma superfície do volume de simulação, ou seja, cruza a superfície da célula onde o sistema se encontra, irá entrar na superfície oposta da célula sem mudança na direção ou na intensidade da velocidade. Utilizando as condições de contorno periódicas, o sistema irá estar livre do efeito de superfície e representará um sistema macroscópico com mais fidelidade.

As condições de contorno periódicas devem ser consideradas tanto no processo de integração das equações de movimento como no cálculo da interação entre as partículas. Em cada passo da simulação as coordenadas das partículas devem ser examinadas a fim de mantê-las no interior da célula (caixa) de simulação. Para descrever o método, considera-se uma caixa de simulação de comprimento L , com o centro dos eixos das coordenadas situado no centro dela. Além disso, consideram-se várias caixas, idênticas à principal, periodicamente distribuídas ao redor desta. Sendo r_i a posição da partícula i em relação ao centro da caixa principal de simulação, haverá um conjunto de *partículas imagens*, com posições dadas por $r_i + nL$, onde n é qualquer número inteiro. Logo, a energia potencial será dada por

$$U(r_i, \dots, r_N) = \sum_{i < j} u(r_{ij}) + \sum_n \sum_{i < j} u(|r_i - r_j + nL|). \quad (2.11)$$

Para evitar o cálculo do somatório infinito presente no segundo termo do lado direito da Eq. (2.11) utiliza-se o conceito de imagem mínima. Dessa maneira, considera-se a distância mínima entre uma partícula e todas as outras partículas imagens e reais, ou seja, $r_{ij} = \min\{|r_i - r_j + nL|\}$ para todo n . Uma partícula irá interagir apenas com $(N - 1)$ partículas, sendo que essas estão localizadas na caixa principal ou nas “caixas imagens”. Pode-se perceber que, com a técnica da imagem mínima, uma partícula irá interagir apenas com as partículas que estão a uma distância menor ou igual à $L/2$. Isso significa que a distância máxima de interação entre as partículas será $L/2$ (metade do comprimento da caixa de simulação). Portanto, o valor de L deverá ser escolhido de tal forma que as forças entre as partículas sejam desprezíveis para distâncias maiores do que $L/2$, eliminando assim o efeito de tamanho finito. A convenção da imagem mínima é

possível apenas quando o potencial é de curto alcance, ou seja, quando o potencial de interação entre as partículas possui um comportamento assintótico do tipo $r^{-\nu}$, onde ν é maior do que a dimensão do sistema. Caso não seja possível a utilização da convenção da imagem mínima, será necessário levar em conta as interações de cada partícula com todas as partículas imagens, procedimento proposto inicialmente por *Edwald*, em 1921 [51].

2.2 Monte Carlo

Conhecido por ser um método numérico que calcula a função partição de um sistema, o método de Monte Carlo simula as flutuações térmicas de um sistema entre seus possíveis estados. Diferente do método de Dinâmica Molecular (DM), que calcula as propriedades físicas através de um caminho no espaço de fase gerado pela equação fundamental do movimento, o método Monte Carlo (MC) gera um caminho completamente aleatório no espaço de fase. Os observáveis do sistema são obtidos através da função distribuição e da função de partição do mesmo. Ambas as funções são descritas em termos do Hamiltoniano, em um *ensemble* apropriado, [40, 41] onde são consideradas apenas as configurações do sistema, ou seja, as posições das partículas. A principal característica desse método é a forma estocástica de determinar o valor estimado de um observável, calculando médias a partir de várias configurações distintas do sistema. O método Monte Carlo geralmente é escolhido para simulação de sistemas nos quais deseja-se calcular apenas propriedades configuracionais, e não aquelas que dependam das trajetórias reais das partículas no espaço de fase. Uma descrição mais formal do método de Monte Carlo será dada a seguir.

Sendo \hat{A} um observável que é função das coordenadas e dos momentos das partículas de um dado sistema físico, sabe-se, a partir da Mecânica Estatística que a média desse observável pode ser obtida através da equação

$$\langle \hat{A} \rangle = \frac{\int_{\Omega} P(p^n, r^n) A(p^n, r^n) dp^n dr^n}{\int_{\Omega} P(p^n, r^n) dp^n dr^n}, \quad (2.12)$$

onde (p^n, r^n) representam todos os momentos e as coordenadas das n partículas e $P(p^n, r^n)$ é a densidade de probabilidade de um *ensemble* apropriado. A Eq. (2.12) determina a média do observável \hat{A} (num dado *ensemble*), calculada em todos os pontos (p, r) do volume do espaço de fase Ω .

Contudo, na maioria das vezes, a preocupação principal é como determinar o valor da função dependente apenas das coordenadas $A(r)$, pois a integração com respeito aos momentos $A(p)$ pode, em geral, ser calculada analiticamente através do cálculo da energia

cinética do sistema. Geralmente, quando se calcula a média da quantidade A , tem-se o problema de calcular uma integral de muitas dimensões. Para esse caso, usam-se esquemas aproximativos, como o método descida íngreme (*steepest-descent*) [52]. No entanto, o método Monte Carlo calcula a média do observável através de somatórios de todos os estados do espaço de fase, sem qualquer aproximação exceto a de considerar o espaço de fase discreto. Nesse caso, a média do observável A é dada por

$$\langle \hat{A} \rangle = \frac{\sum_{i=1}^N P(x_i) A(x_i)}{\sum_{i=1}^N P(x_i)}, \quad (2.13)$$

onde N é o número de estados e x_i é o estado do sistema. Se, por exemplo, deseja-se calcular a média do observável \hat{A} de um sistema em equilíbrio, numa dada temperatura T , e governado por um Hamiltoniano $H(x)$, estaremos tratando de um sistema no *ensemble* canônico. Neste *ensemble* a densidade de probabilidade $P(x_i)$ será dada pela conhecida distribuição de Boltzmann que é escrita como

$$P(x_i) = \frac{e^{-H(x_i)/k_B T}}{\sum_i e^{-H(x_i)/k_B T}} \quad \text{ou} \quad P(x_i) = \frac{e^{-H(x_i)/k_B T}}{Z}, \quad (2.14)$$

onde utiliza-se a função de partição $Z = \sum_i e^{-H(x_i)/k_B T}$ de um sistema clássico em um *ensemble* canônico.

Substituindo a distribuição de Boltzmann na Eq. (2.13), tem-se a expressão da média de um observável \hat{A} no *ensemble* canônico, ou seja,

$$\langle \hat{A} \rangle = \frac{\sum_{i=1}^N e^{-H(x_i)/k_B T} A(x_i)}{\sum_{i=1}^N e^{-H(x_i)/k_B T}}. \quad (2.15)$$

Note-se que a Eq. (2.14) é função de uma distribuição de probabilidade - distribuição de Boltzmann - que revela a probabilidade de um sistema ser encontrado em um específico estado. Assim, podem-se utilizar essas distribuições para determinar quais estados, no espaço de fase, possuem a maior probabilidade de ocorrência. Especificamente, pode-se gerar diversas configurações de acordo com a distribuição de Boltzmann, a fim de obter aquelas nas quais o sistema irá se encontrar em equilíbrio e, com isso, calcular corretamente a média do observável \hat{A} .

Resta saber como essas configurações irão ser selecionadas a fim de permitir que o sistema vá para o estado de equilíbrio. Essa escolha de configuração é determinada pelas regras de seleção de estados que o sistema pode se encontrar, ou seja, através de probabilidade de transição de estado (\mathcal{W}). Dois métodos utilizados freqüentemente em

simulação de Monte Carlo são dados pelos algoritmos de Glauber e de Metropolis. O algoritmo de Metropolis será descrito na próxima seção, e utilizado em alguns trabalhos apresentados nos capítulos seguintes.

2.2.1 Método de Metropolis

Baseado no conceito de caminhada aleatória (*random walk*) no espaço de fase, o algoritmo de Metropolis foi um dos primeiros e mais utilizados algoritmos, do método de Monte Carlo, tendo sido introduzido por Nicolas Metropolis e co-autores, em 1953 [53]. Esse método é essencialmente baseado nas propriedades da distribuição estacionária das cadeias de Markov, onde se começa de um estado inicial \mathbf{x}_0 do espaço de fase, sendo os demais estados gerados de acordo com uma distribuição de probabilidade $P(x)$. Numa cadeia de Markov a probabilidade de transição para um novo estado depende apenas do último estado, ou seja, os estados gerados não são totalmente independentes. A cadeia de Markov é o análogo probabilístico das trajetórias no espaço de fase geradas, pela equação de movimento na Dinâmica Molecular.

As probabilidades de transições numa cadeia de Markov são normalmente representadas por $\mathcal{W}(x_i \rightarrow x_j)$, que é a probabilidade do sistema ir de um estado x_i para outro estado x_j . Se a probabilidade de transição satisfizer certas condições, pode-se assegurar que o sistema irá para um estado de equilíbrio, após um tempo suficiente de simulação. As condições são:

$$(i) \mathcal{W}(x_i \rightarrow x_j) \geq 0 \quad \text{para todo } i, j; \quad (2.16)$$

$$(ii) \sum_j \mathcal{W}(x_i \rightarrow x_j) = 1; \quad (2.17)$$

$$(iii) P(x_i)\mathcal{W}(x_i \rightarrow x_j) = P(x_j)\mathcal{W}(x_j \rightarrow x_i). \quad (2.18)$$

As condições acima mostram que: (i) toda probabilidade de transição de estados deve ser positiva; (ii) \mathcal{W} tem que ser uma matriz estocástica, na qual cada coluna dessa matriz é um vetor de probabilidade, sendo a soma dos valores das probabilidades de cada vetor igual a 1. A condição (iii) é uma condição forte, pois representa a reversibilidade microscópica de dois estados em equilíbrio. Utilizando a Eq. (2.14), a condição (iii) pode ser escrita como

$$\frac{\mathcal{W}(x_i \rightarrow x_j)}{\mathcal{W}(x_j \rightarrow x_i)} = \frac{P(x_j)}{P(x_i)} \quad (2.19)$$

$$= \frac{e^{-H(x_j)/k_B T}}{Z} \frac{Z}{e^{-H(x_i)/k_B T}} \quad (2.20)$$

$$= e^{-[H(x_j) - H(x_i)]/k_B T}. \quad (2.21)$$

Logo, pode-se notar que a probabilidade de transição de um sistema, em um *ensemble* canônico, depende apenas da diferença de energia entre os estados inicial e final, ou seja,

$$\Delta H(x_i, x_j) = H(x_j) - H(x_i).$$

A escolha de Metropolis para $\mathcal{W}(x_i \rightarrow x_j)$ é dada por

$$\mathcal{W}(x_i \rightarrow x_j) = \begin{cases} \frac{1}{A} e^{-\Delta H(x_i, x_j)/k_B T}, & \text{se } \Delta H > 0 \\ \frac{1}{A}, & \text{se } \Delta H \leq 0. \end{cases} \quad (2.22)$$

O fator multiplicativo de $1/A$ é cancelado na Eq. (2.19) e não influi na reversibilidade do sistema. Observa-se que a probabilidade de transição de Metropolis satisfaz às condições necessárias [Eqs. (2.16), (2.17) e (2.18)]. Observa-se também que o sistema se caminha para um estado de equilíbrio quando as condições acima citadas são utilizadas, ou seja, aceitando todas as transições onde $\Delta H \leq 0$. É importante enfatizar que, além de a probabilidade de transição ocorrer para diferentes estados ($i \neq j$), também é permitida a transição no caso do sistema estar no equilíbrio ($i = j$).

2.3 Métodos de Monte Carlo e Newton Modificado

Como visto na Seção anterior, o método de Monte Carlo leva o sistema a configurações próximas do equilíbrio. De fato, este método apresenta uma rápida convergência de simulação, de modo que configurações estáveis, com energias próximas daquela observada no estado de mínima energia podem ser obtidas em poucos passos de simulação. No entanto, o processo de encontrar a configuração que de fato apresenta a mínima energia é um tanto difícil. Geralmente, os sistemas de partículas possuem diversos estados de equilíbrio que não é aquele com menor energia, ou seja, um estado meta-estável. Dessa maneira, os sistema pode ficar “preso” nesses estados estáveis pois suas partículas não conseguem superar as barreiras de energia que separa o sistema do estado mínima energia. O método de Newton modificado, proposto por Schweigert e Peeters em 1995 [10], aparece como um algoritmo bastante poderoso na determinação da configuração do estado fundamental de um conjunto de partículas. Além disso, a convergência do método é, em média, duas ordens de grandeza menor que a obtida no método MC. Nos próximos parágrafos, um breve resumo do método de Newton modificado será considerado.

Inicialmente, considera-se que as coordenadas das partículas, após n passos de simulação do Monte Carlo, são dadas por $r_{\gamma,i}^n$ ($\gamma = x, y; i = 1, 2, 3, \dots, N$). O método de Monte Carlo leva a configuração do sistema para as vizinhanças do mínimo de energia, de modo que o potencial do sistema pode ser expandido numa aproximação harmônica como

$$H[r_{\gamma,i}] = H[r_{\gamma,i}^n] - \sum_i \sum_{\gamma} H_{\gamma,i}(r_{\gamma,i} - r_{\gamma,i}^n) + \frac{1}{2} \sum_{i,j} \sum_{\gamma,\beta} H_{\gamma\beta,ij}(r_{\gamma,i} - r_{\gamma,i}^n)(r_{\beta,j} - r_{\beta,j}^n), \quad (2.23)$$

onde $H_{\gamma,i} = -\partial H / \partial r_{\gamma,i}$ é a coordenada γ da força sobre a partícula i e $H_{\gamma\beta,ij}$ é um elemento da matriz dinâmica, dado por

$$H_{\gamma\beta,ij} = \frac{\partial^2 H}{\partial r_{\gamma,i} \partial r_{\beta,j}}. \quad (2.24)$$

Quando o sistema se encontra no estado de mínima energia, tem-se que $\partial H[r_{\gamma,i}] / \partial r_{\gamma,i} = 0$, de modo que, usando-se a Eq. (2.23), obtém-se a seguinte equação

$$\sum_{j,\beta} H_{\gamma\beta,ij}(r_{\beta,j} - r_{\beta,j}^n) = H_{\gamma,i}. \quad (2.25)$$

O método de Newton modificado tem uma eficiência maior na vizinhança do mínimo, mais especificamente quando a matriz dinâmica é positiva. Dessa forma, é conveniente utilizar inicialmente o método de Monte Carlo, que rapidamente leva o sistema a uma

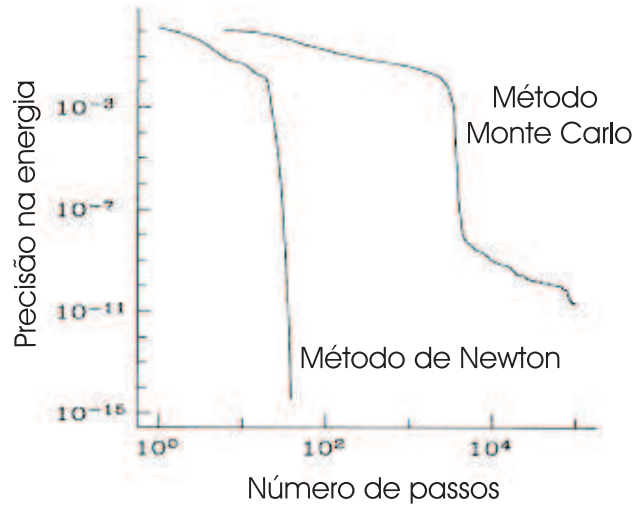


Figura 10: Comparação da precisão obtida entre os métodos de Newton modificado e algoritmo Monte Carlo de Metropolis. Figura retirada da referência [10].

configuração próxima ao mínimo global. Para assegurar a estabilidade do algoritmo, a Eq. (2.25) deve ser modificada pela inclusão de um coeficiente de amortecimento η [10], ou seja,

$$\sum_{j,\beta} (\delta_{\gamma\beta,ij}\eta + H_{\gamma\beta,ij})(r_{\beta,j} - r_{\beta,j}^n) = H_{\gamma,i}, \quad (2.26)$$

onde $\delta_{\gamma\beta,ij}$ representa a matriz unitária. Nas primeiras iterações atribui-se um alto valor para o coeficiente de amortecimento, tipicamente no intervalo $\eta = 10 - 100$. Se nos próximos passos a energia do sistema diminuir, o coeficiente de amortecimento é reduzido, enquanto que no caso contrário, ou seja, se a energia do sistema aumentar, o coeficiente η também será aumentado. É observado que esse processo de escolha do coeficiente de amortecimento garante uma rápida convergência no processo de iteração. O processo de iteração é cessado quando o valor de η torna-se menor que um valor crítico pré-determinado e a precisão desejada no valor da energia é atingida [10]. A eficiência do método de Newton é ilustrada na Figura 10. Como pode ser observado, o método de Newton modificado oferece uma rápida convergência em relação ao método de Monte Carlo (algoritmo de Metropolis).

Para ter a certeza que a configuração de mínima energia foi encontrada é necessário simular várias vezes com configurações iniciais aleatórias. Esse procedimento permite encontrar não apenas o estado fundamental, mas também os estados meta-estáveis do sistema. De todos os estados estáveis obtidos, aquele de menor energia é considerado como o estado fundamental do sistema.

3 Estrutura e modos normais de partículas dipolares de um sistema bidimensional

3.1 Introdução

A estrutura e o comportamento coletivo de partículas coloidais magnéticas apresentam desafios consideráveis em física da matéria condensada, com possíveis aplicações em diversas disciplinas. Em aplicações biomédicas, esses colóides são partículas paramagnéticas que se tornam magnéticas na presença de um campo magnético externo [54] e são frequentemente encontradas em diversas experiências [55, 11]. Por outro lado, ferrofluidos coloidais são fluidos dipolares constituídos por partículas esféricas ferromagnéticas, possuindo momentos dipolares magnéticos permanentes presentes em diversos sistemas em medicina [56, 57], tendo sido utilizados em varias aplicações industriais [58, 59].

Como visto no Capítulo 1, há um grande aumento do número de aplicações utilizando partículas magnéticas em diversas áreas. Essas partículas possuem um potencial de interação dipolar podendo ser guiadas por um campo magnético. Motivado por essas características, estuda-se no presente trabalho as configurações de equilíbrio ($T = 0$) de um sistema bidimensional composto por partículas dipolares confinadas por um potencial parabólico. Analisa-se a influência da intensidade do momento de dipolo magnético das partículas nas configurações de equilíbrio do sistema. As partículas se auto-organizam espontaneamente em uma variedade de interessantes estruturas. Se um campo magnético é aplicado paralelamente ao plano onde as partículas se movem, uma variada gama de configurações possíveis é encontrada (por exemplo, configurações em forma de anéis, linhas e em forma de Y). Além disso, investiga-se a frequência de vibração dos modos normais das configurações de mínima energia com e sem a presença de um campo magnético externo. Analisam-se as componentes de translação e rotação do modo associado com a menor

freqüência não nula, os quais mostram uma forte dependência com relação ao campo magnético externo e à intensidade do momento de dipolo das partículas.

O presente Capítulo está organizado da seguinte forma: Na Seção 3.2, descrevem-se detalhes do modelo matemático utilizado na obtenção das propriedades do sistema. Na Seção 3.3.1 apresentam-se os resultados da influência do momento de dipolo na estrutura do sistema, com e sem a presença de um campo magnético paralelo ao plano das partículas. Na Seção 3.3.2 apresenta-se uma análise da estrutura e dos modos normais das partículas para diferentes intensidades do campo magnético aplicado no sistema. A estrutura e as freqüências dos modos normais do sistema com diferentes número de partículas, com e sem a presença de um campo magnético, são investigadas na Seção 3.3.3. Por fim, apresentam-se as conclusões do Capítulo.

3.2 Modelo

O sistema é composto por uma monocamada de N partículas interagindo entre si através de um potencial dipolar. As partículas são mantidas numa região finita do plano por um potencial parabólico centrado na origem do eixo de coordenadas. Além disso, um campo magnético é também aplicado paralelo ao plano das partículas a fim de introduzir um sentido preferencial ao sistema. O caso de um sistema sob influência de um campo magnético perpendicular ao plano das partículas foi considerado anteriormente, e conduz a resultados semelhantes aos de sistemas compostos por partículas interagindo via um potencial Coulombiano e Yukawa [18, 60]. A energia potencial do sistema aqui estudado é dada por

$$H = \sum_i \left(\frac{1}{2} m \omega_0^2 r_i^2 - \boldsymbol{\mu}_i \cdot \mathbf{B} \right) + \sum_{i < j = 1}^N \left[4\varepsilon \left(\frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^{12} + \frac{\boldsymbol{\mu}_i \cdot \boldsymbol{\mu}_j}{r_{ij}^3} - \frac{3(\boldsymbol{\mu}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\boldsymbol{\mu}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{r_{ij}^5} \right], \quad (3.1)$$

onde ε é um parâmetro que caracteriza a energia de repulsão de curto alcance impedindo que as partículas se unam em um único ponto, $\boldsymbol{\mu}_i$ é o vetor momento de dipolo magnético da partícula i , \mathbf{r}_{ij} é o vetor que localiza a partícula j em relação a partícula i , $r \equiv |\mathbf{r}_i|$ é a distância da partícula i ao centro do potencial de confinamento parabólico, m é a massa e σ é o diâmetro das partículas. Para definir os parâmetros importantes do sistema, é conveniente definir $\mu^* = \sqrt{\mu^2/\varepsilon\sigma^3}$, usar ε como a unidade de energia, $B_0 = \sqrt{\varepsilon/\sigma^3}$ para a unidade de campo magnético, e σ (diâmetro das partículas) como unidade de comprimento. Fazendo essas substituições, obtém-se a energia potencial (Eq. (3.1)) na

forma adimensional

$$H = \sum_i (\alpha r_i^2 - \boldsymbol{\mu}_i^* \cdot \mathbf{B}) + \sum_{i < j=1}^N \left[4 \left(\frac{1}{r_{ij}} \right)^{12} + \frac{\boldsymbol{\mu}_i^* \cdot \boldsymbol{\mu}_j^*}{r_{ij}^3} - \frac{3(\boldsymbol{\mu}_i^* \cdot \mathbf{r}_{ij})(\boldsymbol{\mu}_j^* \cdot \mathbf{r}_{ij})}{r_{ij}^5} \right], \quad (3.2)$$

indicando que o sistema depende do número de partículas N , da intensidade do potencial de confinamento $\alpha = m\omega^2\sigma^2/2\varepsilon$, do momento dipolar das partículas $\boldsymbol{\mu}_i^*$, e do campo magnético externo \mathbf{B} . A energia de interação entre o dipolo i e o campo magnético aplicado é descrita pela expressão $-\boldsymbol{\mu}_i^* \cdot \mathbf{B}$. No presente estudo, fixa-se $\alpha = 1$ e aplica-se o campo magnético ao longo do eixo-x, ou seja, $\mathbf{B} = (B, 0, 0)$.

As configurações de mínima energia ($T = 0$) do sistema foram obtidas utilizando a técnica de simulação Monte Carlo *annealing* seguida pela técnica de Newton [10]. Para verificar se uma configuração é estável, calcula-se, utilizando a técnica de diagonalização Householder, os autovalores da matriz dinâmica

$$H_{\alpha\beta,ij} = \frac{\partial^2 H}{\partial r_{\alpha,i} \partial r_{\beta,j}}, \quad (3.3)$$

onde $\alpha, \beta = x, y$ e θ . Os índices i e j indicam a partícula e θ é o ângulo do momento do dipolo. De todos os estados estáveis obtidos, aquele com a menor energia foi tomado como o estado fundamental do sistema. Uma descrição detalhada dos métodos utilizados para calcular as estruturas de equilíbrio, e os modos normais de vibração das partículas aqui estudadas é apresentada no Apêndice A.

3.3 Resultados

3.3.1 Dependência do momento de dipolo

Nesta Seção, analisa-se o caso particular de um sistema composto de $N = 19$ partículas dipolares em função do momento de dipolo magnético (μ^*), com e sem a presença de um campo magnético B . Inicialmente, as configurações de equilíbrio são obtidas na ausência de um campo magnético externo. Posteriormente, o caso $B \neq 0$ será considerado.

3.3.1.1 Ausência de campo magnético

Para estudar a estrutura do estado fundamental do sistema para diferentes valores do momento de dipolo das partículas, mostra-se, na Figura 11(a), a distância das $N = 19$ partículas em relação ao centro do potencial de confinamento em função de μ^* . Observam-

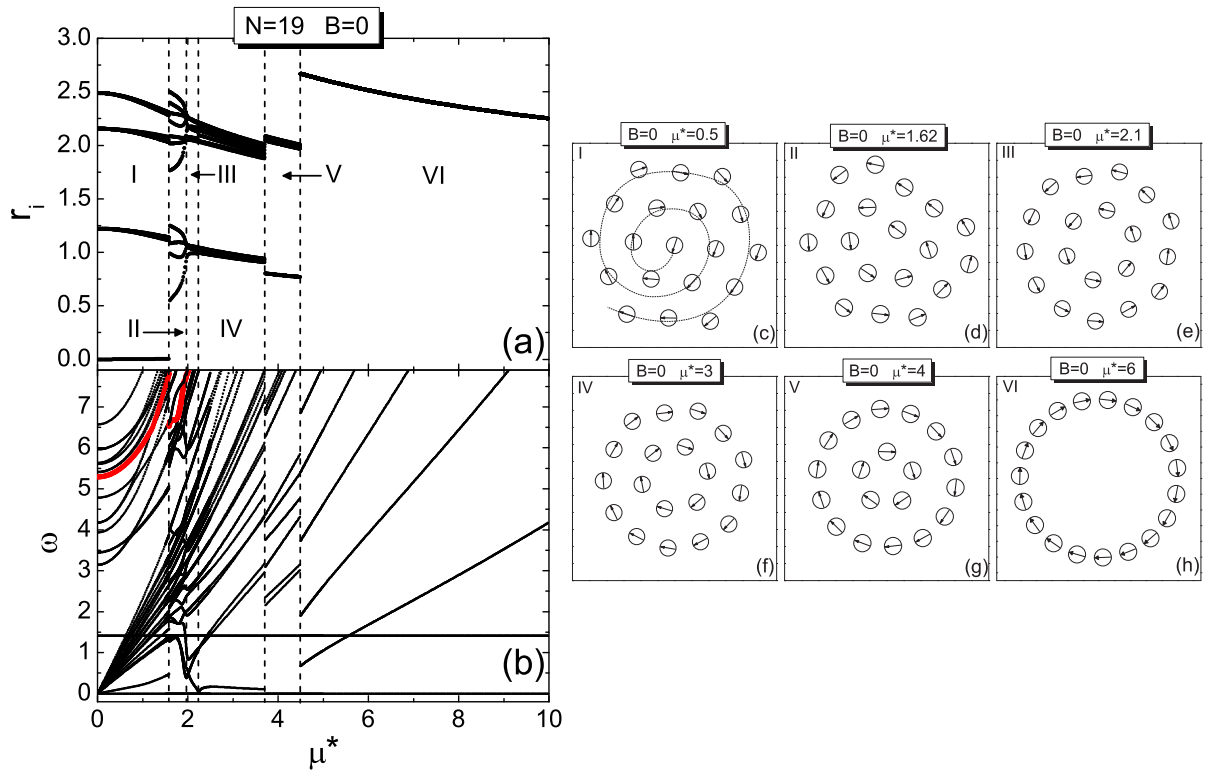


Figura 11: (a) Posição radial e (b) frequência dos modos normais de vibração de um aglomerado com $N = 19$ partículas dipolares em função do momento de dipolo das partículas (μ^*). A frequência associada ao modo de vibração radial das partículas (modo de “respiração” ou *breathing*) em $\mu^* = 0$, é mostrada como uma linha vermelha. (c)-(g) Configuração de menor energia do sistema para cada região definida em (a). A linha tracejada em (c) é apenas um guia para os olhos.

se cinco transições estruturais, indicadas pelas linhas tracejadas, entre diferentes configurações apresentadas nas Figuras 11(c)-(f). Para $\mu^* = 0, 5$ (Figura 11(c)), as partículas se arranjam na forma de um hexágono, observado também experimentalmente em sistemas infinitos de partículas dipolares [61]. A configuração de equilíbrio hexagonal, quando $\mu^* = 0$, é uma característica específica do equilíbrio entre o potencial de confinamento parabólico e a interação repulsiva isotrópica r^{-12} (Eq. (A.1)). Quando o valor do momento de dipolo é aumentado, a partir de $\mu^* = 0$ até $\mu^* \approx 1,6$ (região I), a configuração do sistema permanece inalterada. Porém o momento de dipolo das partículas orientam-se na forma de uma espiral, tal como indicado pela linha tracejada na Figura 11(c). Este comportamento revela a dependência angular entre os momentos de dipolo das partículas que tendem a se alinhar entre si.

Quando $\mu^* \approx 1,6$ (região II), a interação dipolar torna-se intensa o bastante para alterar a configuração de mínima energia, que assume uma forma transitória entre o arranjo configuração hexagonal e a estrutura circular. Como pode ser observado na Figura

11(d), uma partícula moveu-se do centro do sistema para a camada de partícula mais interna, e outra moveu-se da camada mais interna para a camada mais externa, formando uma estrutura de anéis não circulares. Esta configuração é um resultado da interação dipolar das partículas, que tende a alinhar as partículas formando cadeia. No entanto, a competição com o potencial de confinamento circular, transforma a configuração numa estrutura de camadas com os dipolos orientados ao longo da mesma. À medida que o valor de μ^* aumenta, a interação entre os dipolos torna-se suficientemente intensa, alterando de forma contínua a configuração do sistema para uma estrutura composta por dois anéis (círculos) concêntricos, como mostrado nas Figuras 12(e) e 12(f) (regiões III e IV), através de duas transições estruturais em $\mu^* \approx 1,97$ e $\mu^* \approx 2,2$, respectivamente. Na Figura 11(a) da região IV, observa-se que as partículas do círculo mais externo não possuem a mesma distância em relação ao centro de confinamento formando, portanto, um anel imperfeito de partículas. Em $\mu^* \approx 3,7$ (região V), uma estrutura em forma de círculo imperfeito também é observada (Figuras 11(g)), agora apenas para as partículas do círculo mais externo. A configuração mais simétrica é obtida quando $\mu^* > 4,5$ sendo o sistema constituído por um único anel de partículas (ver Figura 11(g)).

Foram também estudadas as frequências dos modos normais do sistema apresentadas na Figura 11(b) em função de μ^* e em unidades de $\omega_0/\sqrt{2}$. As mesmas regiões I-VI, definidas anteriormente na Figura 11(a), também estão indicadas. Pode-se observar que as frequências dos modos normais são sensíveis às transições estruturais, pois as curvas exibem uma mudança de comportamento descontínua quando ocorre uma transição estrutural de primeira ordem, ou uma gradual mudança de comportamento no caso de uma transição estrutural de segunda ordem. Em geral, observa-se que a maior parte das frequências dos modos normais aumenta em função de μ^* . No entanto, existem duas frequências especiais, $\omega = 0$ e $\omega = \sqrt{2}$, que permanecem constante para todos os valores de μ^* . Essas frequências estão associadas com a rotação de todo o sistema em torno da origem e com o movimento do centro de massa do sistema, respectivamente. Outra frequência especial (indicada por uma linha vermelha na Figura 11(b)) está associada ao modo de “compressão e descompressão” de todo o sistema. Nesse modo, as partículas se movimentam ao mesmo tempo radialmente em relação ao centro do sistema. O valor inicial (para $\mu^* = 0$) da frequência associado a esse modo é $\omega = 5,29$ que também aumenta em função do parâmetro μ^* . Esse comportamento se deve ao fato de que esse modo depende do potencial de interação entre as partículas [62]. Observa-se na região I, duas classes de frequências: modos de baixa frequência, que aumentam linearmente com μ^* , e um conjunto de modos com valores maiores de frequência que aumentam quadrática-

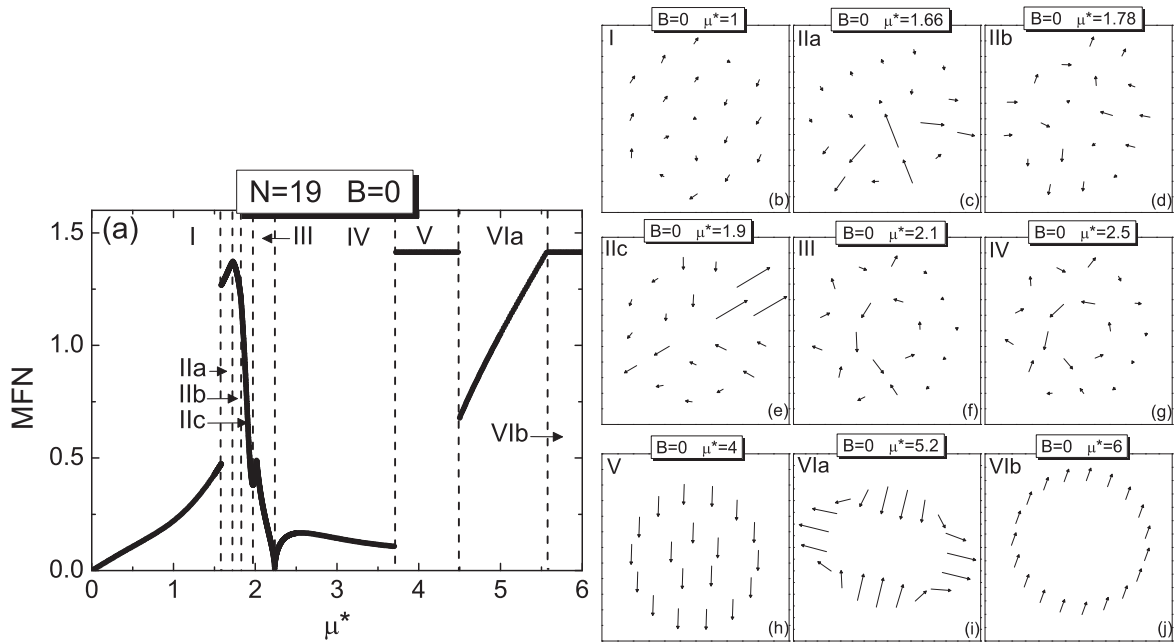


Figura 12: (a) Menor frequência não-nula (MFN) em função de μ^* para o sistema com $N = 19$ partículas e $B = 0$. (b)-(j) Modos normais de vibração para cada sub-região definida em (a).

mente com μ^* . As frequências dos modos normais nas regiões II e III apresentam um comportamento bastante complexo, devido a um gradual movimento das partículas a fim de gerar uma estrutura com simetria circular (ver Figura 11(a)). Nas regiões IV, V e VI as frequências dos modos normais aumentam quase linearmente em função de μ^* , exceto a menor frequência não nula.

Agora, analisa-se cuidadosamente o comportamento da menor frequência não nula (MFN) e seus modos associados. O modo MFN desempenha um papel fundamental no entendimento da fusão do sistema [10, 63]. Na Figura 12(a), a MFN do sistema com $N = 19$ partículas e campo magnético zero é apresentada em função de μ^* . As mesmas regiões definidas na Figura 11(a) são também indicadas, bem como novas sub-regiões separando intervalos de μ^* , onde a configuração de mínima energia é similar, mas o modo normal de vibração e/ou de rotação são diferentes (regiões IIA, IIB, IIC, VIA e VIb).

O movimento oscilatório de translação das partículas em cada região da Figura 12(a) é mostrado nas Figuras 12(b) a 12(i). As setas indicam o sentido e seu tamanho representa a amplitude da oscilação das partículas. Em geral, os modos vibracionais associados à MFN são diferentes para cada configuração, observando-se, entretanto, que modos distintos podem ser excitados numa mesma configuração. Por exemplo: nas sub-regiões IIA, IIB e IIC, o sistema possui a mesma configuração exibida na Figura 11(d), mas apresenta diferentes modos normais mostrados nas Figuras 12(c) a 12(e), respectivamente. Note-se

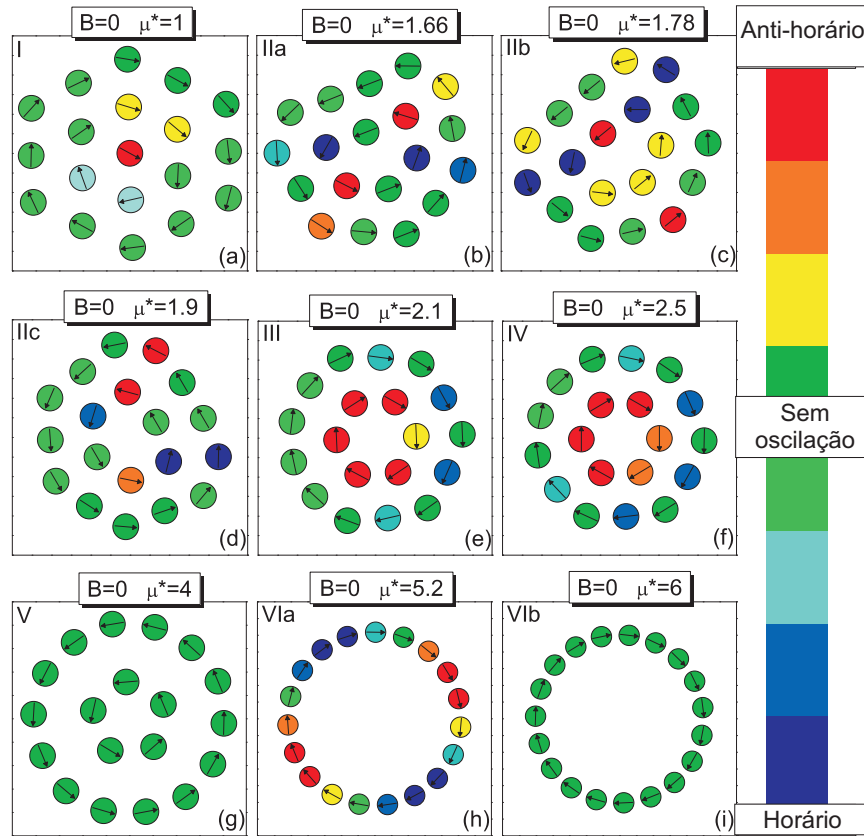


Figura 13: Componente rotacional do modo da MFN para o sistema com $N = 19$ partículas e $B = 0$. Sub-regiões definidas na Figura 12(a) são indicadas em cada figura. A escala colorida informa a amplitude e a direção de rotação das partículas.

que, nas regiões V e VIb, o modo MFN torna-se o modo do centro de massa das partículas que é apresentado nas Figuras 12(h) e 12(j), respectivamente. Com isso, conclui-se que o modo MFN é modificado pelo valor de μ^* , indicando que o valor de μ^* pode controlar a estabilidade do sistema [63].

Apesar da MFN ser bem diferente nas regiões III e IV (ver Figura 12(a)), os modos normais em ambas as regiões são bastante semelhantes (Figura 12(f) e 12(g)). O entendimento da mudança de comportamento da MFN é complicado pelo fato dessa frequência ser também associada com a componente de rotação das partículas. A fim de analisar a componente rotacional do modo associado à menor frequência não-nula das partículas, as Figuras 13(a) a 13(g) mostram o modo rotacional de cada dipolo para todas as regiões definidas na Figura 12(a). O modo de rotação é indicado por cores no interior dos círculos (partículas) representando a direção e amplitude de oscilação de cada uma. As setas indicam a orientação dos dipolos. Observa-se que, quando o sistema tem uma estrutura hexagonal (região I), a direção de oscilação de cada partícula é simétrica em relação ao centro do sistema (Figura 13(a)). Especificamente, observa-se que duas partículas do

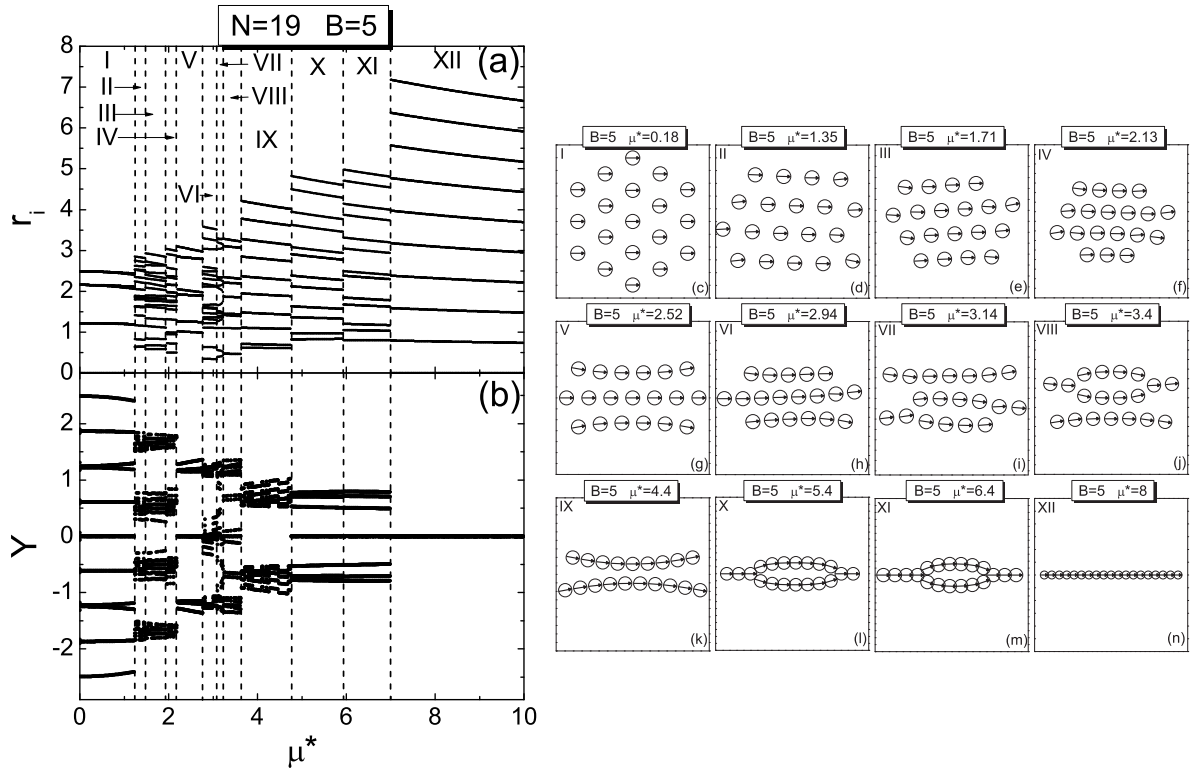


Figura 14: (a) Posição radial e (b) distância de cada partícula em relação ao eixo-x de $N = 19$ partículas dipolares para $B = 5$ em função do momento dipolar das partículas μ^* . (c)-(n) Configuração de mínima energia do sistema para cada região definida em (a).

círculo mais interno oscilam no sentido horário (círculos azuis claro), enquanto outras duas partículas oscilam no sentido anti-horário (círculos amarelos). Além disso, observa-se que a partícula central na Figura 13(a) gira no sentido anti-horário com grande amplitude. Esse comportamento é necessário a fim de conservar o momento angular total do sistema. Existem ainda algumas partículas oscilando no sentido horário com pequenas amplitudes.

As Figuras 13(a) a 13(i) mostram que o modo de rotação das partículas é diferente em cada região da Figura 12(a). Observa-se também que não existe rotação das partículas nas regiões V e VIb (Figuras 13(g) e 13(i)), onde os modos estão associados o movimento do centro de massa do sistema. Além disso, a componente de rotação da MFN revela uma característica muito interessante na Figura 12(a). O modo de rotação das partículas nas regiões III e IV (Figuras 13(e) e 13(f)) é diferente apesar de a configuração e a componente de vibração do modo serem semelhantes nessas regiões. Este fato indica que a transição estrutural de segunda ordem do sistema, entre as regiões III e IV, deve-se exclusivamente devido à mudança do modo de rotação das partículas mostrando-se essencial no estudo da estabilidade do sistema de partículas dipolares.

3.3.1.2 Presença de campo magnético

Nesta Seção, apresenta-se o estudo da influência de um campo magnético B , aplicado ao longo do eixo- x , na configuração e nos modos normais do sistema com $N = 19$ partículas em função de μ^* . O campo magnético introduz uma orientação preferencial ao sistema que tenderá a romper a simetria circular das estruturas. Aqui, o valor do campo magnético B é fixo e varia-se o valor do momento de dipolo das partículas (μ^*). A Figura 14 (a) mostra a posição radial de $N = 19$ partículas em relação ao centro do potencial de confinamento em função de μ^* com campo $B = 5$. Pode-se observar que o sistema exibe várias transições estruturais em função do momento magnético das partículas μ^* , indicado pelas linhas tracejadas na Figura 14(a). As linhas separam regiões com diferentes configurações de equilíbrio, mostradas nas Figuras 14(c) a 14(n).

Para pequenos valores de μ^* (região I), o sistema se organiza na mesma configuração observada na ausência do campo magnético ($B = 0$) (ver Figura 11(c)). Contudo, no presente caso, todos os dipolos estão orientados paralelamente ao campo magnético (Figura 14(c)). Para $\mu^* \approx 1, 2$ (região II), o sistema sofre a primeira transição estrutural alterando sua configuração hexagonal para uma estrutura composta por quatro cadeias (linhas) de partículas, como mostrado na Figura 14(b). Note-se que as cadeias são paralelas ao eixo x , o que significa que o campo magnético acrescenta um confinamento uni-direcional no sistema. Com a intenção de observar a mudança de simetria do sistema em relação a direção do campo B , apresenta-se, na Figura 14(b), a distância de cada partícula com relação ao eixo x em função de μ^* . Aumentando ainda mais o valor de μ^* , observa-se que as partículas das cadeias de partículas mais distantes do eixo x deslocam-se sucessivamente em direção às cadeias mais próximas do eixo- x , diminuindo o número de partículas das cadeias externas em cada transição. Estas transições podem ser reconhecidas por descontinuidades nas curvas das Figuras 14(a) e 14(b).

Quando $\mu^* \approx 3, 1$ (região VII), a configuração do sistema muda para uma estrutura bem interessante, formada por quase duas linhas de partículas, mostrada nas Figuras 14(i) e 14(j). Essas configurações são compostas por uma linha de partículas, e uma cadeia composta por uma mistura de duas linhas de partículas, ou seja, o sistema apresenta uma divisão local de uma única linha em duas, que chamaremos de configuração na forma de $2Y$. A configuração em forma de Y foi analisada e observada em diversos estudos teóricos e experimentais em sistemas de partículas dipolares [64, 65, 66, 67]. No presente caso, essa estrutura apresenta-se como duas configurações em forma de Y , conectadas, o que se deve à influência do potencial de confinamento que comprime o sistema, conectando as duas

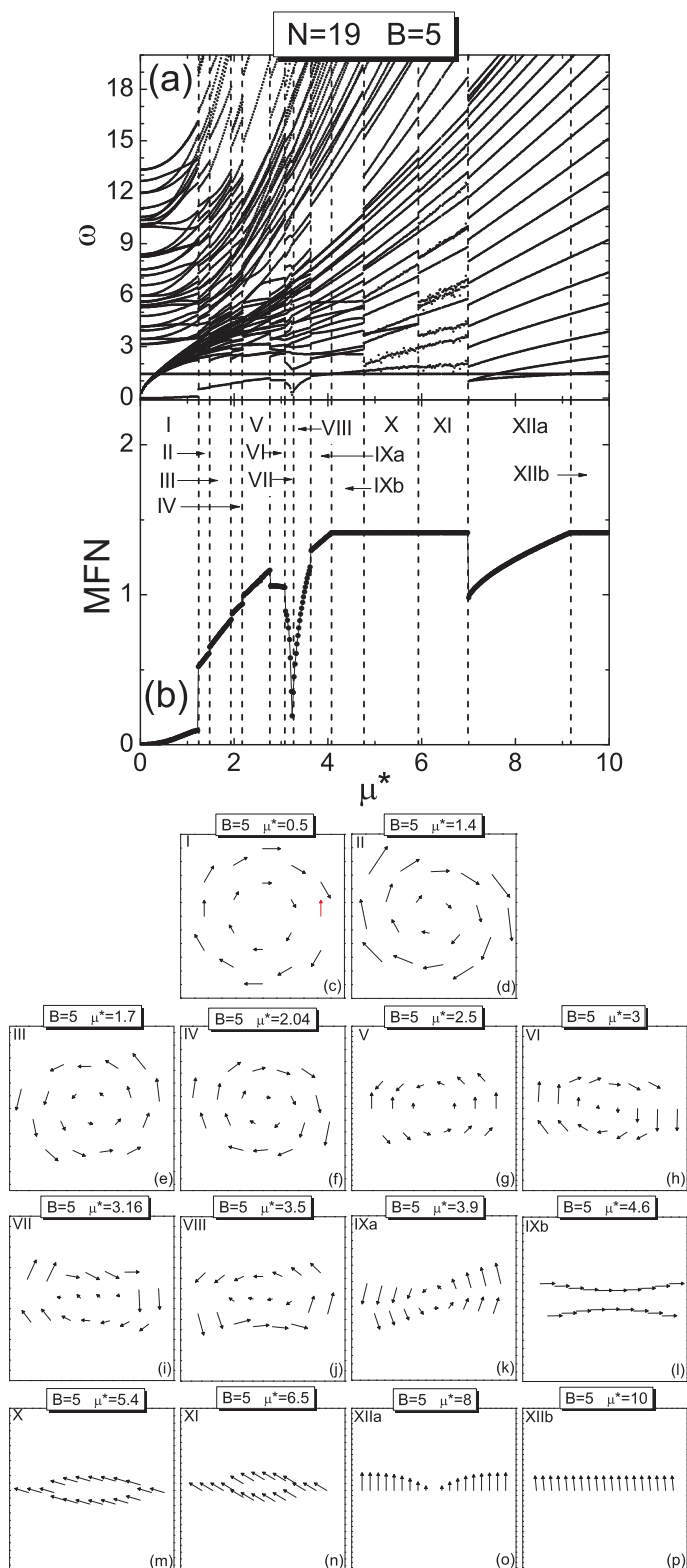


Figura 15: (a) Espectro de frequência dos modos normais e (b) a menor frequência não nula (MFN) de $N = 19$ partículas dipolares em função do momento de dipolo das partículas μ^* para $B = 5$. (c)-(p) Modos normais de vibração para cada sub-região definida em (b).

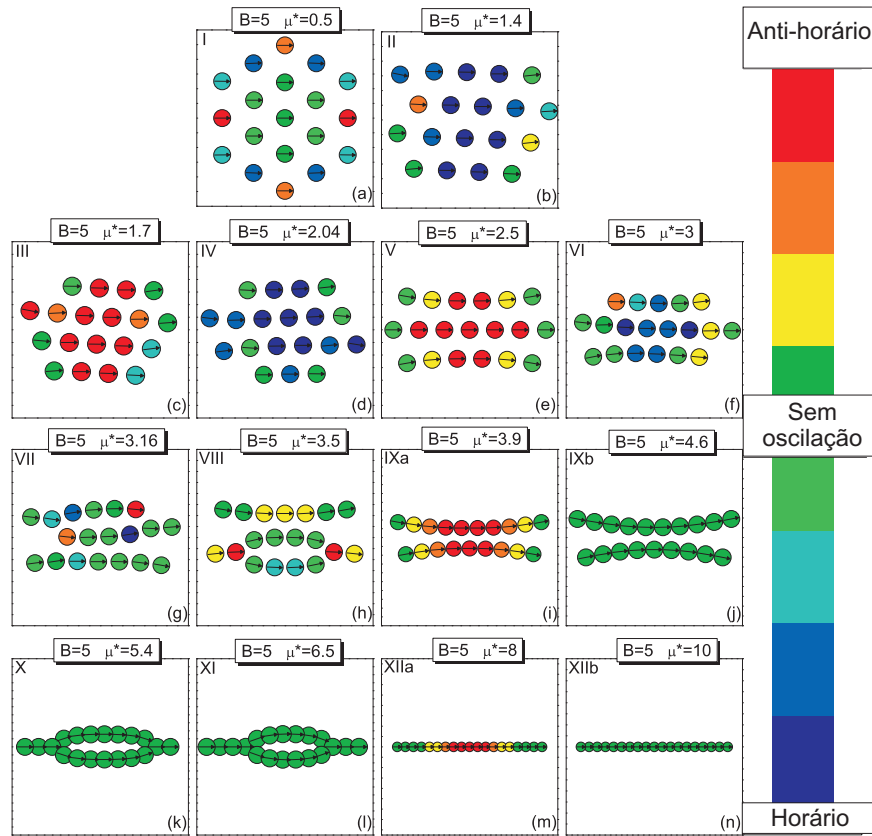


Figura 16: Modos normais de rotação para o sistema com $N = 19$ partículas e $B = 5$. Em cada figura, indica-se as sub-regiões mostradas na Figura 15(b). A escala de cor indica a amplitude e a direção de rotação das partículas.

linhas de partículas através de duas partículas dipolares. O tamanho do arranjo em forma de $2Y$ diminui até $\mu^* \approx 3,64$, quando o sistema passa para uma configuração formada por duas linhas curvadas (região IX). Em $\mu^* \approx 4,76$, o sistema volta a exibir novamente uma estrutura na forma de $2Y$, antes de organizar-se em uma configuração composta por uma linha de partículas ($\mu^* > 7$). É importante observar que o arranjo em forma de Y surge quando o número de cadeias diminui, ou seja, entre as configurações com três e duas cadeias (regiões VI e IX), e entre duas e uma cadeia (regiões X e XII). Este fato indica que o aparecimento desse tipo de configuração é devido à elevada densidade de partículas na direção do campo magnético causada pelo equilíbrio entre o potencial de confinamento e o campo magnético. Esse resultado será comentado posteriormente, no caso em que o número de partículas do sistema aumenta na presença do campo magnético, ou seja, quando a densidade aumenta na direção de B .

A Figura 15(a) mostra as frequências dos modos normais em função de μ^* , onde as linhas verticais indicam as transições estruturais tal como mostrado na Figura 14(a). Pode-se observar que a degenerescência das frequências encontradas no caso sem campo

magnético desaparece devido à direção preferencial introduzida pelo referido campo. Em geral, a maior parte das frequências aumenta com o aumento de μ^* , tal como foi encontrado no caso $B = 0$. Note-se que a frequência independente de μ^* , no caso sem campo magnético, anteriormente associada à rotação de todo o aglomerado ($\omega = 0$), atinge um valor $\omega \neq 0$ quando $\mu^* \neq 0$. Este comportamento é uma consequência da quebra da invariância rotacional introduzida pelo campo magnético. Contudo, o sistema ainda exibe uma frequência que é independente de μ^* , ou seja, aquela associada com o modo do centro de massa ($\omega = \sqrt{2}$).

A menor frequência não-nula dos modos normais em função do momento magnético das partículas μ^* para o sistema sob influência do campo magnético $B = 5$ é mostrada na Figura 15(b). Definem-se aqui, novas sub-regiões separando intervalos de μ^* onde o sistema possui a mesma configuração de mínima energia, mas exibe diferentes modos normais de vibração (sub-regiões IXa, IXb, XIIa e XIIb). É importante notar que o valor da frequência associada com a rotação de todo o sistema se torna diferente de zero para pequenos valores de μ^* . Este fato confirma que o campo magnético influencia o sistema, ainda que se tenha uma estrutura hexagonal como configuração de mínima energia. As componentes translacionais do modo MFN, para cada região da Figura 15(b) são mostradas nas Figuras 15(c) a 15(p). A Figura 15(c) mostra a componente translacional da MFN para o sistema com a estrutura hexagonal (região I). Note-se que esse modo difere daquele associado à rotação de todo o sistema pela vibração de uma partícula, indicada por uma seta vermelha. As Figuras 15(c) a 15(p) mostram que a componente vibracional dos modos é diferente para cada configuração apresentada nas Figuras 14(c) a 14(n), isto é, muda em função de μ^* . No entanto, diferentes formas de oscilação das partículas foram observadas para as configurações das regiões IX e XII da Figura 15(b). Observa-se também que o modo do centro de massa torna-se o modo MFN nas configurações das regiões IX, X, XI e XIIb, onde todas as partículas se movimentam em fase, com a mesma amplitude. Nestas regiões, as partículas não possuem direção preferencial de oscilação indicando que o campo magnético B não influencia na direção da vibração delas.

Com o objetivo de estudar a influência do campo magnético no movimento de rotação de cada partícula, mostra-se, nas Figuras 16(a) a 16(n), a componente de rotação do modo associado à MFN, em cada região mostrada na Figura 15(b). Observa-se que as partículas da configuração hexagonal apresentam um comportamento rotacional interessante (Figura 16(a)). Diferente do caso sem campo magnético, as partículas com menor amplitude de oscilação rotacional estão localizadas no centro do sistema. Além disso, observa-se que as partículas com a mesma amplitude de oscilação estão situadas simetricamente em relação

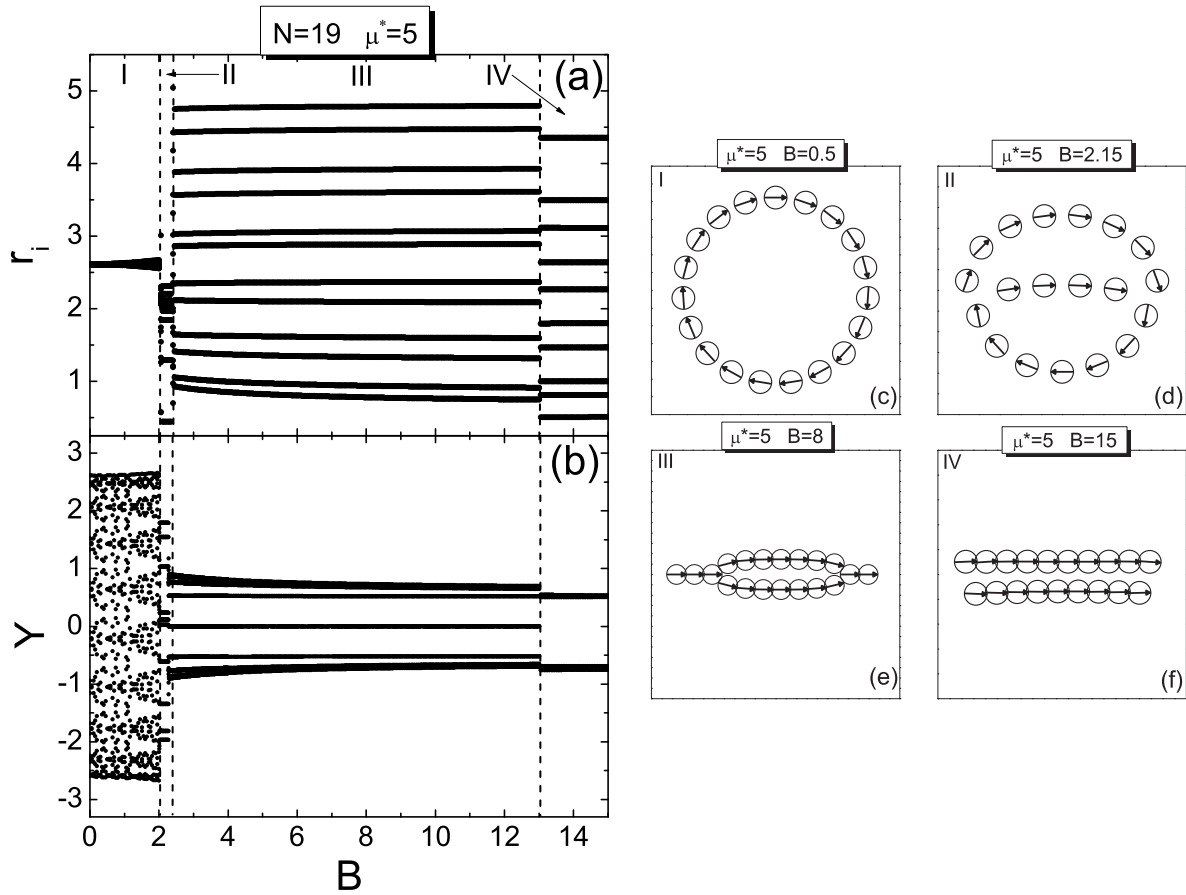


Figura 17: (a) Posição radial e (b) distancia média de cada partícula em relação ao eixo-x de $N = 19$ partículas dipolares em função do campo magnético B para um valor fixo do momento magnético ($\mu^* = 5$). (c)-(f) Configurações de mínima energia do sistema em diferentes regiões definidas em (a).

às direções paralelas e perpendiculares ao campo magnético. No caso das configurações de cadeia de partículas (regiões II-VI), as partículas com o maior amplitude de oscilação estão localizadas no centro das cadeias, ou seja, no centro do sistema. Este fato é melhor observado na configuração da região V (Figura 16(e)). Tal comportamento é devido ao fato de que as partículas localizadas no centro possuem mais vizinhos do que aquelas situadas no extremo do sistema, possuindo, com isso, uma maior instabilidade orientacional entre os momentos de dipolos. Desta forma, as partículas centrais rotacionam com amplitude maior já que precisam se alinhar com um maior número de partículas. Isso é observado nas configurações da região V (Figura 16(e)) devido à sua perfeita simetria em relação ao eixo x, o que não é observado nas configurações das Figuras 16(b) a 16(d) e 16(f). Este cenário não é observado quando o sistema apresenta uma configuração na forma de $2Y$, mostrada nas Figuras 16(g) e 16(h) (regiões VII e VIII da Figura 15(b)). Aumentando o valor de μ^* ainda mais, observa-se que as configurações das regiões IX e XII, na Figura

15(b), apresentam diferentes modos de rotação para a mesma configuração, indicando que a componente de rotação do modo MFN depende fortemente dos valores de μ^* . É importante notar que a amplitude angular das partículas é zero quando $\omega = \sqrt{2}$ (isto é, quando $\omega = \omega_0$). Este comportamento é observado no movimento de rotação do sistema nas regiões IXb, X, XI e XIIb, mostrado nas Figuras 16(j), 16(k), 16(l) e 16(n), respectivamente.

3.3.2 Campo magnético variável

Nesta Seção, investiga-se a estrutura e os modos normais do sistema com $N = 19$ partículas, cada uma com momento de dipolo constante $\mu^* = 5$, em função da intensidade do campo magnético B aplicado paralelamente ao sistema. Na Figura 17(a), apresenta-se a distância radial de cada partícula em relação ao centro do potencial de confinamento em função de B . Apesar do valor constante de μ^* , o sistema apresenta várias transições estruturais, indicadas na Figura 17(a) por linhas verticais tracejadas. Na Figura 17(b) mostra-se a distância de cada partícula em relação ao eixo-x. Como pode ser observado na Figura 17(b), a simetria da configuração em relação ao eixo x aumenta em função de B . A configuração de cada região da Figura 17(a) é mostrada nas Figuras 17(c) a 17(f). Até $B \approx 2$ (região I), as partículas são ordenadas em um único círculo (anel) (Figura 17(c)). Para $B > 2$, a estrutura do sistema muda para uma interessante configuração não-simétrica, composta por uma única cadeia não linear e um anel de partículas em torno dela (Figura 17(d)).

Para $B \approx 2,4$ (região III), observa-se uma configuração em forma de $2Y$, que também foi encontrada na Seção anterior, quando o sistema foi estudada em função de μ^* . Para $B \approx 13$ (região IV), a estrutura do aglomerado muda novamente para uma configuração de cadeias paralelas, com diferente números de partículas. Com isso, as distâncias de cada cadeia em relação ao eixo x é diferente, como pode ser observado na região IV da Figura 17(b), a fim de minimizar a energia do sistema. Na Figura 17, observa-se claramente que houve um aumento de simetria do sistema em relação ao eixo x quando o campo magnético foi aumentado. Em geral, a dependência da configuração em relação ao campo magnético é similar com relação ao momento de dipolo das partículas. Ou seja, o sistema muda de uma estrutura circular para uma composta por cadeias. No entanto, as configurações intermediárias são diferentes quando varia-se μ^* ou B . Além disso, verifica-se que a configuração final do sistema é composta de duas cadeias (Figura 17(f)) de partículas, ao invés de uma (Figura 14(n)), o que se deve ao fato da atração entre as partículas não ser

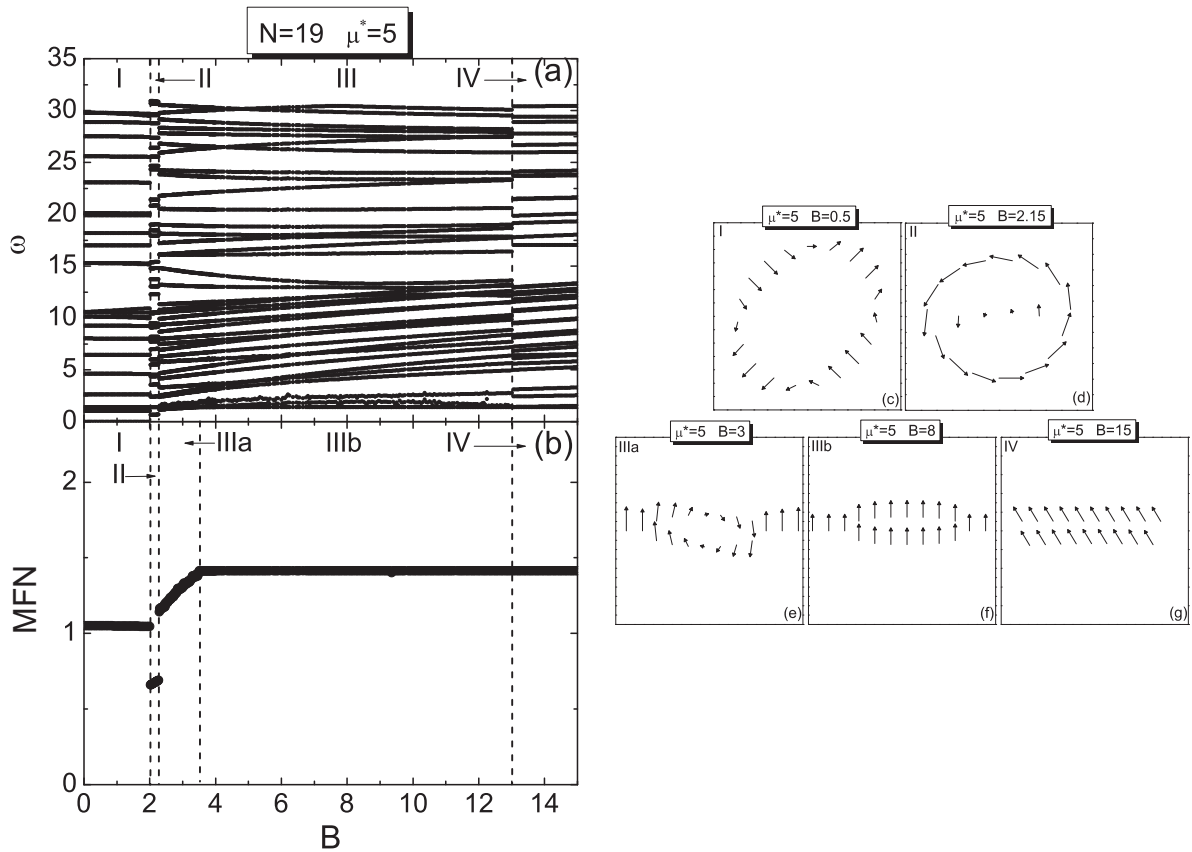


Figura 18: (a) Freqüência dos modos normais e (b) menor freqüência não-nula (MFN) de $N = 19$ partículas dipolares em função do campo magnético B e momento de dipolo fixo $\mu^* = 5$. (c)-(g) Modos normais de vibração para cada região definida em (b).

suficientemente grande para formar uma única cadeia. Portanto, pode-se concluir que o valor do campo magnético B orienta a simetria do sistema em relação à direção de B , enquanto que o momento dipolo μ^* controla o número de cadeias paralelas à esse campo.

A Figura 18(a) mostra as freqüências dos modos normais de vibração em função de B . Divide-se o gráfico nas mesmas regiões definidas anteriormente na Figura 17(a). É importante notar que o valor da maior parte das freqüências permanece quase inalteradas em função do campo magnético B . Por outro lado, a freqüência associada com o modo de rotação de todo o sistema aumenta em função de B indicando que o campo magnético também atua como um potencial de confinamento em uma direção. O comportamento desta freqüência mostra que a energia necessária para excitar o modo associado com a rotação de todo o sistema aumenta quando o campo magnético é aumentado. Isso é razoável, dado que o aumento do campo magnético diminui a simetria circular do sistema.

A Figura 18(b) apresenta a menor freqüência não-nula em função do campo magnético B . Novas sub-regiões (IIIa e IIIb) separando diferentes intervalos de B , são definidas, além daquelas regiões definidas na Figura 18(a). O movimento de vibração de cada partícula

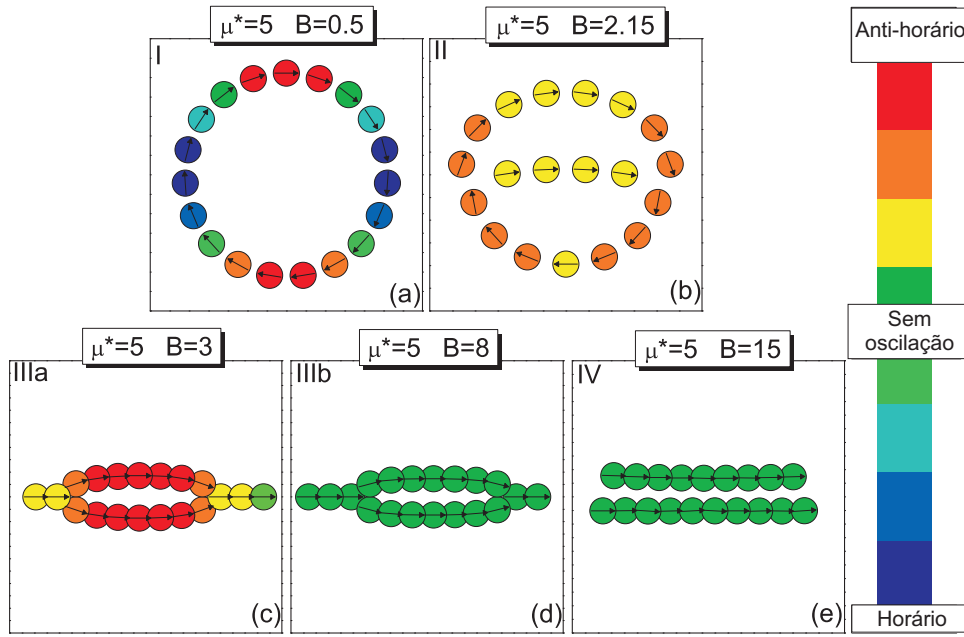


Figura 19: Modos normais de rotação para o sistema com $N = 19$ partículas e $\mu^* = 5$. As sub-regiões definidas na Figura 18(b) são indicadas em cada figura. A escala de cores informa a amplitude e a direção da oscilação rotacional das partículas.

em cada região da Figura 18(b) é mostrado nas Figuras 18(c) a 18(g). Nas regiões IIIb e IV, a MFN corresponde ao modo associado com o movimento do centro de massa do sistema. Além disso, observa-se que configurações não triviais exibem modos de vibração interessantes como, por exemplo, a configuração correspondente à sub-região IIIa (Figura 17(e)). Com o objetivo de estudar a influência do campo magnético sobre as oscilações angulares dos dipolos, apresenta-se nas Figuras 19(a) a 19(e), a componente de rotação do modo MFN, para cada região da Figura 18(b). Note que o sistema apresenta diferentes modos de rotação para cada configuração. Assim, como observado para a componente translacional dos modos normais, a componente de rotação do modo na região III pode ser alterado através do aumento do valor de B , levando o sistema a um cenário onde as partículas não oscilam em torno do seu eixo (Figura 19(d)), fato este que está associado com a frequência do modo do centro de massa (ver Figura 18(b)).

3.3.3 Variando o número de partículas

Até agora, considerou-se apenas o caso particular do aglomerado composto por $N = 19$ partículas. Cabe então questionar sobre as conclusões que se podem obter para sistemas com diferentes números de partículas. Assim, apresenta-se nesta Seção um estudo da estrutura e dos modos normais do sistema em função do número de partículas N , para

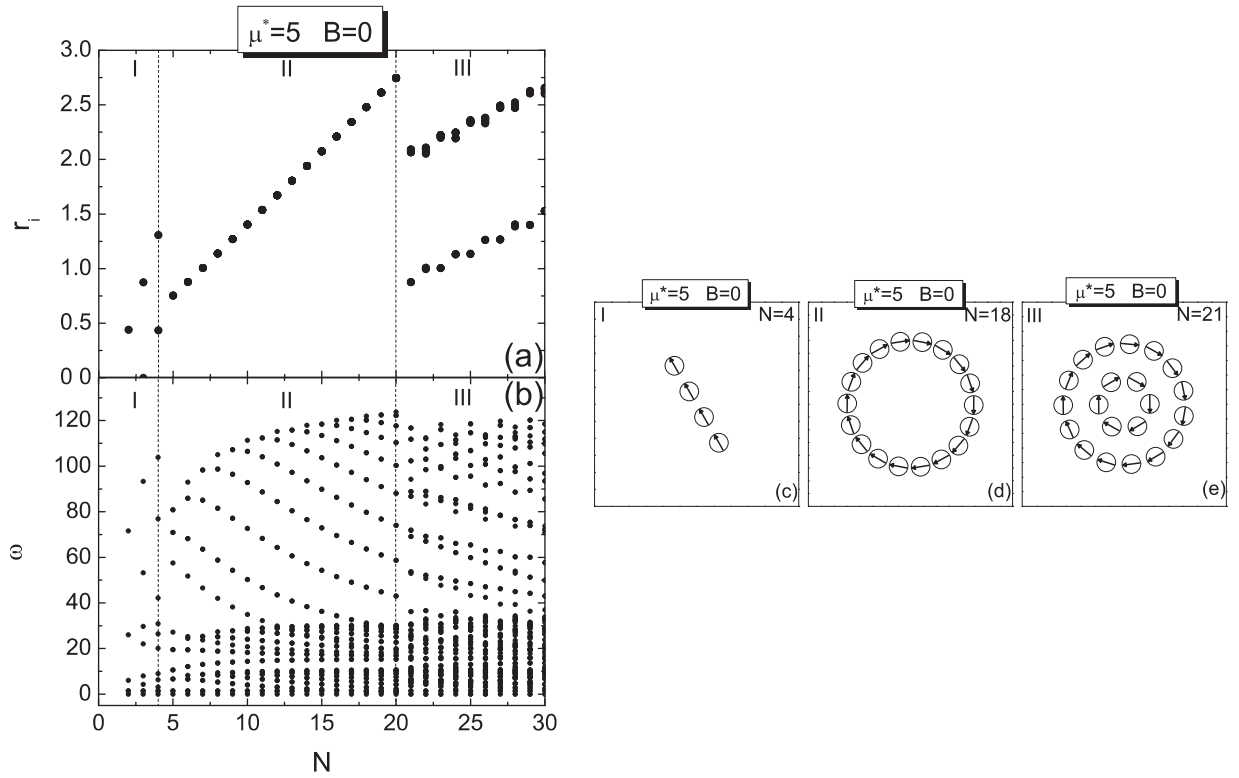


Figura 20: (a) Posição radial e (b) frequência dos modos normais em função do número de partículas N para $\mu^* = 5$ e $B = 0$. (c)-(e) Configurações de mínima energia do sistema para três regiões definidas em (a).

valores fixos do momento de dipolo μ^* e campo magnético B .

3.3.3.1 Caso $B = 0$

Com o objetivo de estudar as estruturas auto-organizadas do sistema de partículas dipolares, mostra-se, na Figura 20(a), a posição radial das partículas das configurações de menor energia para diferente número de partículas N , $\mu^* = 5$ e $B = 0$. A Figura 20(a) está dividida em regiões onde o sistema apresenta diferentes estruturas que estão apresentadas nas Figuras 20(c) a 20(e). Como pode-se observar, a região I da Figura 20(a) é caracterizada por sistemas que apresentam um tipo de configuração ferromagnética, ou seja, todas as partículas estão alinhadas na ausência de um campo magnético (Figura 20(c)). O arranjo das partículas em uma linha de partículas aparece como a configuração de menor energia para sistemas de até $N = 4$ partículas (região I). A configuração em forma de anel é observada na região II, ou seja, para $5 \leq N \leq 20$ partículas. É importante notar que o aparecimento da configuração de anel só se deu para sistemas onde $N \geq 5$, pelo fato de ser mínima a energia da interação dipolar entre duas partículas quando estas se alinham. O valor crítico $N = 5$, valor onde a estrutura em forma de anel é obtida,

aumenta com o aumento do valor de μ^* . No presente caso, a configuração em forma de linha é destruída pelo confinamento parabólico que impõe sua simetria circular às cadeias de partículas formando uma linha fechada, ou seja, configuração em forma de anel. O potencial de interação entre os dipolos também influencia a configuração em forma de anel que se torna mais estáveis do que em um sistema de partículas carregadas. De fato, verificou-se que a configuração formada por um único círculo de partículas apresenta-se como configuração de mínima energia para sistemas com até $N = 20$ partículas, ($N = 5$ partículas no caso de partículas carregadas [68]). Para $N = 21$ (região III), um segundo anel de partículas surge formando uma estrutura de dois círculos de partículas (6,15), o que significa que existem seis partículas no círculo interno e quinze partículas no círculo externo (ver Figura 20(e)).

O espectro de frequências dos modos normais é apresentado na Figura 20(b) em função de N . Como pode ser observado, as frequências mudam quando ocorrem alterações nas configuração. Além disso, observa-se também que o maior valor atingido pelas frequências é atingido por um sistema com apenas algumas partículas, e não aumenta mais com N . Assim, surgem novas frequências com valores abaixo do valor da frequência máxima. Assim, o sistema composto por partículas dipolares apresenta-se como um caso oposto ao do sistemas com partículas carregadas onde a frequência mais alta aumenta em função do número de partículas [10].

3.3.3.2 Caso $B \neq 0$

Nesta Seção, os sistemas com diferentes número de partículas N são estudados sob influência de um campo magnético $B \neq 0$. A distância radial de cada partícula em função de N é mostrado na Figura 21(a), para $\mu^* = 5$ e $B = 5$. Para $2 \leq N \leq 12$ (região I), observa-se que as partículas estão ordenadas em uma única cadeia de partículas ao longo da direção de B (Figura 21(d)). Note-se que a estrutura em forma de linha é a configuração de menor energia para aglomerados compostos por um número de partículas maior do que aqueles aglomerados encontrados no caso sem campo magnético. Isto indica que o número de partículas nesse tipo de estrutura aumenta com o campo magnético, estabilizando-os na forma de uma linha de partículas. Quando o sistema é composto por $N = 13$ partículas (região II), encontra-se a configuração na forma de 2Y que é observada com até $N = 20$ partículas. As Figuras 21(e) e 21(f) apresentam esta estrutura para o sistema com $N = 13$ e $N=15$ partículas, respectivamente. Na região III ($21 \leq N \leq 25$), o sistema passa a exibir uma estrutura de duas cadeias de partículas (ver Figura 21(g)).

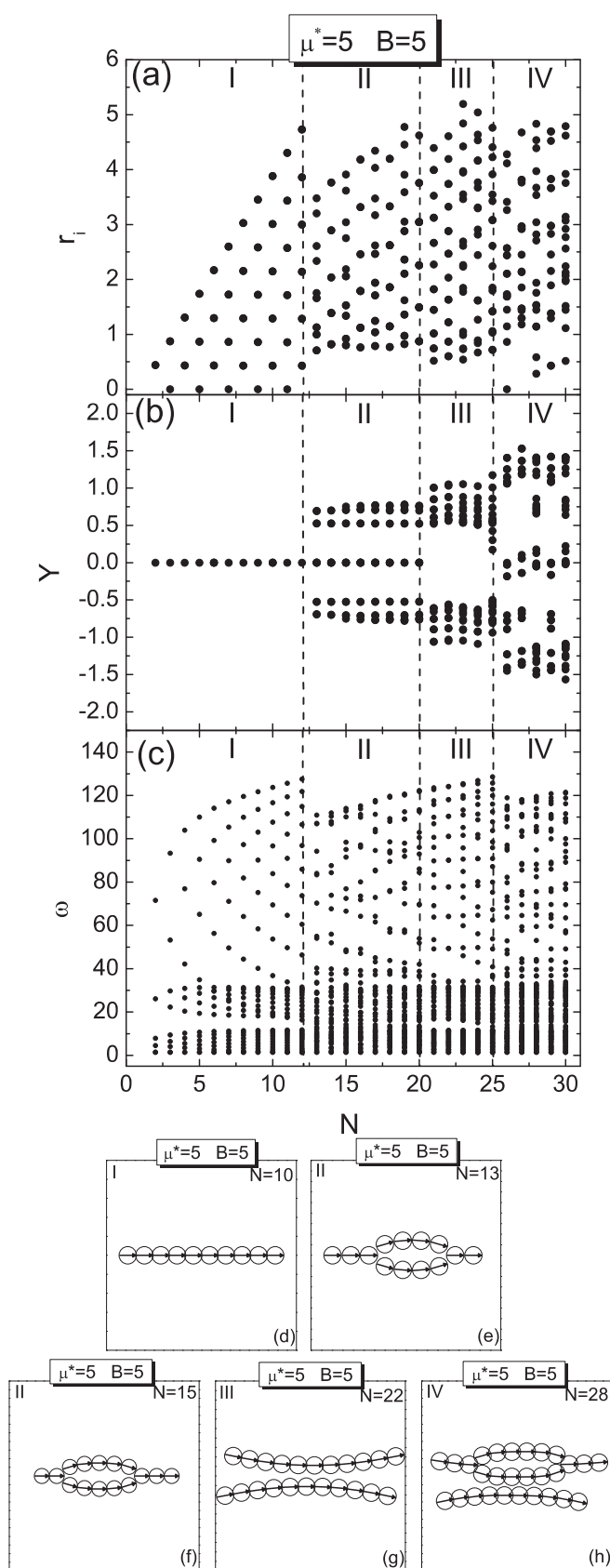


Figura 21: (a) Posição radial, (b) distância de cada partícula em relação ao eixo-x e (c) frequência dos modos normais em função do número de partículas para $\mu^* = 5$ e $B = 5$. (d)-(h) Configurações de mínima energia do sistema para cada região definida em (a).

Sistemas compostos por $25 < N \leq 30$ (região IV) partículas são constituídos por uma mistura de uma configuração em forma de uma cadeia com outra em forma 2Y, mostrada na Figura 21(h).

Apesar de o sistema ser confinado por um potencial circular, nota-se que as configurações fechadas de partículas (por exemplo, anéis) não aparecem para qualquer número de partículas com momento de dipolo $\mu^* = 5$ sob o efeito de um campo magnético. Este fato indica que, no caso mostrado aqui, o campo magnético determina a configuração do sistema, alterando a simetria circular do sistema para outra que é paralela ao eixo-x. Além disso, verificou-se que o campo magnético também influencia o aparecimento da configuração em forma de Y, observada apenas em sistemas sob a influência de um campo magnético. É importante notar ainda que, quando o número de partículas é aumentado, a configuração em forma de Y aparece logo antes do sistema exibir uma configuração com mais uma cadeia de partículas. Em outras palavras, observa-se que a configuração em forma de Y é formada, preferencialmente, antes de uma nova cadeia de partículas surgir no sistema. Portanto, pode-se concluir que a configuração em forma de Y surge devido ao aumento da densidade de partículas em uma cadeia, o qual desaparece quando é formada uma nova cadeia.

A Figura 21(c) mostra o espectro de frequências em função do número de partículas N . A dependência qualitativa das frequências em função de N , na presença de um campo magnético, é semelhante às do sistema com $B = 0$, ou seja, o valor mais elevado da frequência é atingido por um sistema com poucas partículas e as novas, que aparecem para sistemas com maior número de partículas, surgem abaixo deste valor. Observa-se na Seção anterior que a maior parte das frequências aumenta em função de μ^* e permanece praticamente inalteradas em função de B . Portanto, conclui-se que o comportamento das frequências nas Figura 20(b) e 21(c) é uma consequência do valor do momento de dipolo das partículas e, sendo assim bastante semelhantes em um sistema com ou sem a influência de um campo magnético externo.

3.4 Conclusão

Sistemas constituídos por um número finito de dipolos magnéticos foram analisados em função do momento de dipolo das partículas e da intensidade de um campo magnético externo aplicado paralelamente ao plano das partículas. O sistema de partículas dipolares sofre várias transições estruturais em função do momento de dipolo e/ou do campo

magnético. Especificamente, quando o momento de dipolo das partículas é aumentado na ausência de um campo magnético, a estrutura hexagonal, que é a configuração de menor energia de um sistema de partículas sem momento dipolares, é deformada a fim de aumentar a simetria da estrutura do sistema, ou seja, as partículas organizam-se em anéis quando o momento de dipolo das partículas aumenta. Quando um campo magnético é aplicado, várias diferentes configurações são encontradas em função do momento de dipolo das partículas como, por exemplo, configurações em forma de cadeias e na forma de Y que foram anteriormente observadas em trabalhos experimentais de sistemas infinitos de partículas.

Observou-se que quando está sob a influência de um campo magnético, o sistema muda sua simetria circular para aquela em forma de cadeia de partículas, mostrando que a interação dipolar, sob influência de campo magnético, domina sobre o potencial de confinamento. Além disso, o sistema apresenta uma configuração especial, denominada estrutura em forma de 2Y, que ocorre quando duas configurações em forma Y se conectam. O aparecimento dessa estrutura é atribuído à elevada densidade em uma direção devido ao equilíbrio entre o potencial de confinamento e o campo magnético. A influência de diversos valores do campo magnético no sistema foi estudada. Este apresentou uma interessante mistura de estruturas de cadeias e anéis de partículas para alguns valores do campo magnético.

Estudou-se também as frequências dos modos normais em função do momento do dipolo e/ou do campo magnético. As oscilações de vibração e rotação das partículas, associada com a menor frequência não-nula (MFN), foram estudadas em detalhes. No caso sem o campo magnético, todas as frequências, excetuando aquela associada com a oscilação do centro de massa e da rotação de todo o sistema, aumentam em função do momento de dipolo das partículas. Além disso, verificou-se que o comportamento da MFN também é determinado pela oscilação angular das partículas, onde a partícula central, da estrutura hexagonal, apresenta a amplitude de rotação mais elevada. Por isso, o movimento rotacional das partículas mostra-se muito importante para determinar o comportamento do modo MFN e, conseqüentemente, prever a estabilidade do sistema. Na presença de um campo magnético, verificou-se que, além da maioria das frequências, a frequência de rotação do sistema também aumenta em função do momento de dipolo das partículas. Neste caso, apenas a frequência associada ao modo normal do centro de massa permanece constante. Foi observado que o campo magnético induz uma estrutura em forma de cadeia de partículas, mas não produz qualquer efeito sobre a direção de oscilação das partículas. No entanto, na estrutura hexagonal, as partículas com a maior

amplitude de rotação estão agora localizadas na borda do sistema. Quando o campo magnético é variado, as frequências permanecem praticamente inalteradas, exceto aquela associada com a rotação de todo o sistema, que altera o seu valor em função do campo magnético devido à mudança de simetria do sistema.

A dependência da estrutura em relação ao número de partículas também foi investigada. No caso sem campo magnético, o sistema com poucas partículas ($N < 5$) exibiu a estrutura em forma de linhas de partículas como configuração de menor energia. Além disso, encontrou-se que o número máximo de partículas em um único anel nesse sistema dipolar é ($N = 20$ quando $\mu^* = 5$) maior que o número de partículas encontrado no sistema de partículas Coulombinas ($N = 5$). Sistemas com um grande número de partículas ($20 < N < 30$ para $\mu^* = 5$) mostram uma estrutura composta por dois anéis de partículas. Na presença de um campo magnético, o sistema exibe cadeias de partículas que apresentaram ser mais estáveis e, com isso, exibiram-se com um número maior de partículas ($N = 12$ para $\mu^* = 5$ e $B = 5$). Devido ao fato do campo magnético também agir como um potencial de confinamento em uma dimensão, as estruturas em forma de anel não foram observadas.

4 Estados Moleculares de dois sistemas de partículas acoplados verticalmente

4.1 Introdução

Recentemente, estudos sistemáticos sobre propriedades estruturais e dinâmicas de sistemas bidimensionais (2D) clássicos de partículas têm sido realizados [68, 10, 69, 70, 71]. Essa abordagem clássica serve como ponto de partida para cálculos em Mecânica Quântica. Em baixas temperaturas, e na presença de altos campos magnéticos, elétrons em pontos quânticos tornam-se localizados e podem ser aproximados por cargas pontuais. Neste limite, algumas propriedades estruturais e termodinâmicas do sistema quântico original podem ser obtidas através de uma aproximação clássica [72]. O sistema clássico em 2D é normalmente modelado como N cargas pontuais confinadas por um potencial externo, onde o mais frequentemente utilizado possui a forma parabólica equivalente a um espaço uniforme de cargas neutralizadas. Para um pequeno número de partículas, a simetria do potencial de confinamento é imposta sobre a estrutura triangular devido à interação repulsiva Coulombiana. Conseqüentemente, uma estrutura circular é observada como a configuração de menor energia [68, 10, 72]. No entanto, se um potencial de confinamento diferente é considerado, as correlações entre as partículas eletrostáticas torna-se mais importante especialmente no limite de um potencial de confinamento fraco [70, 73]. Nessa situação, a quebra espontânea de simetria e interessantes configurações de equilíbrio assimétricas foram observadas [70, 73, 74].

Motivado pelo grande interesse em pontos quânticos acoplados [75, 76] e pelo fato de muitas das propriedades dos sistemas quânticos já poderem ser observadas em uma abordagem clássica, estuda-se, neste Capítulo, o comportamento de um sistema clássico formado por dois planos de partículas carregadas verticalmente acoplados. Sistemas clássicos

formados por dois planos de partículas carregadas foram recentemente estudados, tanto no caso do acoplamento horizontal como no caso vertical [77, 78], onde as partículas foram confinadas por um potencial parabólico. Neste trabalho, a atenção é concentrada nos efeitos que um potencial de confinamento não parabólico pode causar na estrutura e na dinâmica das partículas situadas em planos acoplados verticalmente.

A próxima Seção descreve o modelo do sistema indicando os parâmetros de ajustes do potencial de interação entre as partículas, além de informar as técnicas utilizadas para se obter as configurações de mínima energia. Após isso, apresentam-se os resultados e as discussões das nossas simulações numéricas. Por fim, apresentam-se as conclusões desse trabalho.

4.2 Modelo

O sistema proposto neste Capítulo é constituído por $2N$ partículas carregadas negativamente, chamados aqui de elétrons, distribuídas uniformemente em dois planos separados por uma distância d . Os elétrons de cada plano são mantidos juntos por duas partículas positivas (cada uma igual a Z), localizadas entre os planos. Uma ilustração desse sistema é mostrada na Figura 22. Cada carga positiva está localizada a uma distância $a = 1$ de cada plano. Define-se esse sistema como uma molécula Coulombiana confinada (CCM). A energia potencial desse sistema é dada por

$$H = -\frac{Ze^2}{\epsilon} \left(\sum_{\substack{i=1 \\ (I,II)}}^N \frac{1}{\sqrt{r^2 + a^2}} + \sum_{\substack{i=1 \\ (I,II)}}^N \frac{1}{\sqrt{r^2 + (a-d)^2}} \right) + \frac{e^2}{\epsilon} \left(\sum_{\substack{i>j=1 \\ (I,II)}}^N \frac{1}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} + \sum_{\substack{i=1 \\ (I)}}^N \sum_{\substack{j=1 \\ (II)}}^N \frac{1}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j + d|} \right) \quad (4.1)$$

onde (I, II) representa a soma sobre as partículas dos seus respectivos planos. O símbolo ϵ representa a constante dielétrica do meio, $\vec{r} = x, y$ é a posição radial das partículas em relação ao centro do plano dos elétrons, e $|\vec{r}_i - \vec{r}_j + d|$ representa a distância entre os elétrons de planos diferentes. Introduzindo $E_0 = e^2/\epsilon a$ como unidade de energia e a como

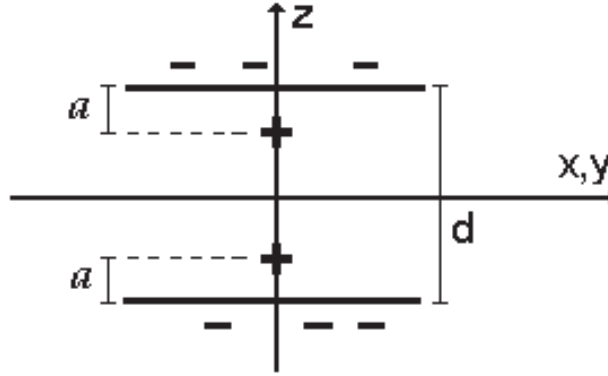


Figura 22: Ilustração do modelo onde a carga positiva está localizada na parte interna do sistema, ou seja, na região entre os planos de partículas.

unidade de distância, pode-se reescrever a Eq. (5.4) na forma adimensional

$$H = - \sum_{\substack{i=1 \\ (I,II)}}^N \frac{Z}{\sqrt{r^2 + 1}} - \sum_{\substack{i=1 \\ (I,II)}}^N \frac{Z}{\sqrt{r^2 + (d-1)^2}} + \sum_{\substack{i>j=1 \\ (I,II)}}^N \frac{1}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} + \sum_{\substack{i=1 \\ (I)}}^N \sum_{\substack{j=1 \\ (II)}}^N \frac{1}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j + d|} \quad (4.2)$$

As configurações de mínima energia do sistema foram obtidas através do algoritmo Metropolis (em $T = 0$), combinado com o método de Newton modificado (introduzidos no Capítulo 2), a fim de aumentar a precisão das energias obtidas na simulação. O procedimento numérico considerado nesse trabalho permite-nos obter diferentes números de estados estáveis, dependentes de N e Z . De todos os estados estáveis obtidos, aquele com a menor energia foi considerado como a configuração de menor energia. Para verificar se uma configuração é estável, calculam-se, utilizando a técnica de diagonalização de Houserholder, os autovalores da matriz dinâmica (Seção A),

$$H_{\alpha\beta,ij} = \frac{\partial^2 H}{\partial r_{\alpha,i} \partial r_{\beta,j}}, \quad (4.3)$$

onde obtém-se o quadrado das freqüência dos modos normais do sistema (onde $\alpha, \beta = x, y$ e i, j indica a partícula). A configuração final foi considerada aquela que possui todas as freqüências dos modos normais positivas. Em trabalhos anteriores [70, 71], mostrou-se que as propriedades estruturais e dinâmicas de um sistema, composto por um único plano de partículas confinadas por um potencial Coulombiano, tornam-se iguais àquelas de um sistema confinado por um potencial parabólico [68], quando $N \ll Z$. Mostrou-se também que a unidade de freqüência é proporcional à raiz quadrada da carga que confina o sistema, ou seja, $\omega_0 = \sqrt{e^2/m\epsilon a^3} \sqrt{Z/2}$ [71]. Esse parâmetro ω_0 é utilizado como unidade de freqüência dos modos normais estudado neste trabalho.

4.3 Resultados

Nessa Seção será apresentado um estudo da estrutura e do espectro de frequências dos modos normais do sistema, em função da distância entre as cargas positivas do sistema ($d - 2$) e da intensidade do potencial de confinamento (Z). Como mencionado anteriormente, no limite de $Z \gg N$, o sistema composto por um plano de elétrons confinados por um potencial Coulombiano se comporta da mesma maneira que os sistemas confinados por um potencial parabólico [68, 71]. No sistema estudado nesse trabalho, observa-se também esse comportamento para o mesmo limite no caso em que as partículas carregadas positivamente se localizam na região externa dos planos de elétrons. O sistema acoplado verticalmente confinado por um potencial parabólico, foi estudado anteriormente por Par-
toens *et al* [77].

Estudaremos aqui o caso apresentado na Figura 22, nos casos neutro ($Z = N$) e com confinamento fraco ($Z < N$). Nestes limites, os efeitos da correlação eletrônica são mais acentuados e dominam as propriedades físicas do sistema. As principais características deste modelo podem ser observadas se considerarmos um pequeno sistema, mas não trivial, composto por $2N = 6$ partículas. Os resultados para aglomerados com números diferentes de partículas também serão apresentados, estudando-se esse sistema completamente.

Para observar o modo como a configuração de mínima energia é afetada pela mudança da distância entre os planos, ou, mais precisamente, entre as duas moléculas (plano de elétrons + partícula positiva), investiga-se a distância de cada partícula em relação ao eixo z (r_i) em função de $(d - 2)$.

Observar o modo como a configuração de mínima energia é afetada pela mudança da distância entre os planos, ou, mais precisamente, entre as duas moléculas (plano de elétrons + partícula positiva), investiga-se a distância de cada partícula em relação ao eixo z (r_i) em função de $(d - 2)$. A Figura 23 mostra a distância de cada partícula (r_i) em função de $(d - 2)$ para um sistema com $2N = 6$ partículas e $2Z = 6$, ou seja, caso neutro. Note que todas as partículas de ambos os planos possuem o mesmo valor de r_i que muda o seu valor em função de $(d - 2)$. A configuração de mínima energia corresponde a um triângulo equilátero em cada plano onde as duas estruturas, em forma de triângulos, estão rotacionadas em relação uma da outra, a fim de maximizar a distância das partículas entre os planos. Note-se que o tamanho da estrutura triangular aumenta com o aumento do valor de $(d - 2)$, uma consequência da interação fraca entre a partícula positiva (Ze) de um plano em relação às partículas do outro plano. O comportamento de

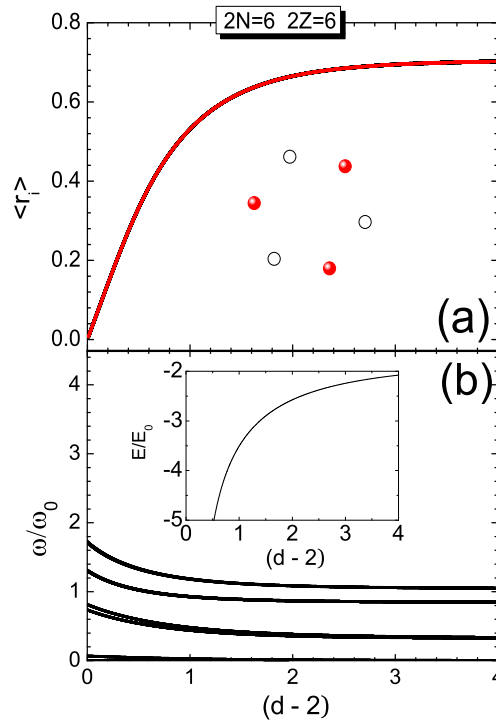


Figura 23: (a) Distância média de cada partícula em relação ao eixo-z em função da separação entre as cargas positivas $(d-2)$, para o sistema com $2N = 6$ partículas e $2Z = 6$. (b) Freqüência dos modos normais em função de $(d-2)$. Energia da configuração de mínima energia em função de $(d-2)$ é mostrada no interior de (b). Um exemplo do configuração de mínima energia é apresentado no interior de (a). Círculos abertos e fechados representam partículas de diferentes planos.

r_i mostrado na Figura 23(a) indica, que para um grande valor de $(d-2)$, as distâncias de todas as partículas ao eixo z atingem um valor constante. A natureza da interação de longo alcance do potencial Coulombiano sugere que o sistema nunca será independente. Contudo, para um valor suficientemente grande de d , o valor da contribuição da interação entre as partículas em distintos planos será pequeno o suficiente para não influenciar a configuração e a energia dos planos de partículas. Por exemplo, para o caso mostrado na Figura 23(a), observou-se que para $(d-2) \gtrsim 3, 5$, a distância de cada partícula em relação ao eixo z é $r_i = 0,707$, a mesma distância observada no sistema composto por um único plano de partículas com $N = 3$ e $Z = 3$ [70, 71, 73].

A energia em função de $(d-2)$ é mostrada no interior da Figura 23(b). Nenhuma transição estrutural é observada quando d é alterado e, conseqüentemente, a primeira e segunda derivadas da energia em relação $(d-2)$ são contínuas. Dessa maneira, o sistema transita continuamente do comportamento de uma molécula, onde há uma forte ligação entre as partículas de planos diferentes, para o comportamento de um átomo, onde a contribuição da interação Coulombiana entre partículas de planos diferentes é

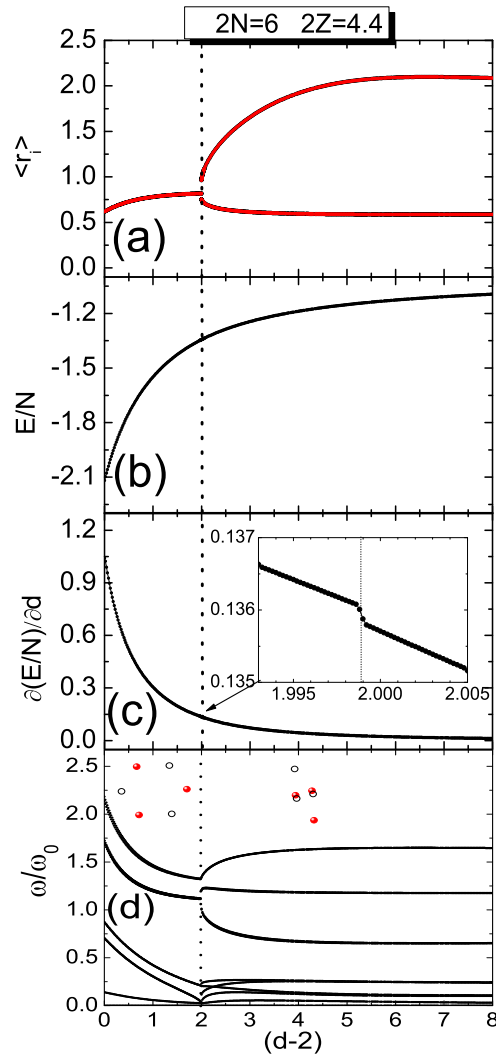


Figura 24: (a) Distância média de cada partícula em relação ao eixo-z, (b) energia, (c) primeira derivada da energia com respeito a $(d - 2)$ e (d) frequência dos modos normais em função de $(d - 2)$ para o sistema com $2N = 6$ partículas e $2Z = 4.4$. Configurações de mínima energia são apresentadas no interior de (d). Círculos abertos e fechados representam partículas de planos diferentes.

muito pequena.

O espectro de frequências dos modos normais em função de $(d - 2)$, para o aglomerado de partículas, é mostrado na Figura 23(b). Para grandes valores de $(d - 2)$, a frequência dos modos normais apresenta o mesmo valor daqueles mostrados por um sistema com um plano de partículas composto por $N = 3$ partículas e $Z = 3$. Para uma pequena separação entre os planos, algumas das frequências possuem diferentes valores, quebrando a degenerescência das curvas. O comportamento do espectro dos modos normais contribui com a idéia de que os planos de partículas comportam-se como sistemas independentes para grandes valores de $(d - 2)$. A localização das partículas positivas, mostrada na Figura 22 blinda a interação entre partículas de planos distintos. Dessa maneira, a interação

torna-se forte o suficiente, para modificar o sistema, somente para pequenos valores de $(d - 2)$. De acordo com a Ref. [73], o sistema composto por um único plano é estável apenas quando a condição $Z > N - 1$ é satisfeita. Se essa exigência não for cumprida, um ou mais elétrons se desconectam do sistema, isto é, se deslocam ao infinito. A situação $N > Z > N - 1$ é chamada de caso sobrecarregado (em inglês *overscreened*).

A estrutura apresentada na Figura 22 sugere que os elétrons de cada plano estão confinadas pelas duas cargas positivas para qualquer distância d . No entanto, a interação efetiva entre os elétrons e as cargas positivas de confinamento depende de d . Pode-se supor que os elétrons em cada plano são confinados por uma carga de $2Z$ apenas quando $(d - 2) = 0$. Se $d > 2$, a interação Coulombiana entre os elétrons de um plano e a partícula positiva do outro plano é menor do que a interação entre esses elétrons e sua própria carga de confinamento, a fim de que a carga efetiva de confinamento dos elétrons em cada plano seja menor do que $2Z$, porém ainda maior do que Z . Note que quando $d \rightarrow \infty$, a carga de confinamento efetiva para os elétrons em cada plano torna-se Z , uma vez que a interação Coulombiana entre os elétrons de um plano com a carga positiva do outro torna-se insignificante. Assim, para valores finitos de d , a carga de confinamento é efetivamente maior que Z .

É importante enfatizar que o arranjo do sistema apresentado na Figura 22 sugere ser possível obter configurações estáveis de mínima energia quando considera-se, por exemplo, um sistema com $2N = 6$ elétrons e $2Z = 4, 4$. Neste caso, a carga de confinamento efetiva para os elétrons em cada plano é $Z_{eff} > 2, 2$, o que, em princípio, se mostra de acordo com a condição sugerida na Ref. [73]. No entanto, se for considerado que tal critério deve se levar em conta todas as cargas do sistema, como realizado na Ref. [73], observa-se que a condição $2Z > 2N - 1$ não é obedecida.

Com a intenção de analisar com mais detalhe o caso citado anteriormente, apresenta-se na Figura 24(a) a distância de cada elétron (r_i) em relação ao eixo z , em função da separação entre as cargas de confinamento $(d - 2)$ para o caso com $2N = 6$ elétrons e $2Z = 4, 4$. Como pode ser observado para $(d - 2) \lesssim 1, 999$, as partículas negativas de ambos os planos permanecem na mesma distância ao eixo z , formando um triângulo equilátero (ver interior da Figura 24(d)). Para $(d - 2) \approx 1, 999$, uma alteração estrutural repentina é observada no sistema. Essa alteração é associada a uma transição estrutural de primeira ordem, confirmada pela Figura 24(c), onde uma descontinuidade da curva da derivada primeira da energia em função de $(d - 2)$ é observada em $(d - 2) \approx 1, 999$. A energia é contínua para todos os valores de $(d - 2)$. Note-se que todas as partículas são

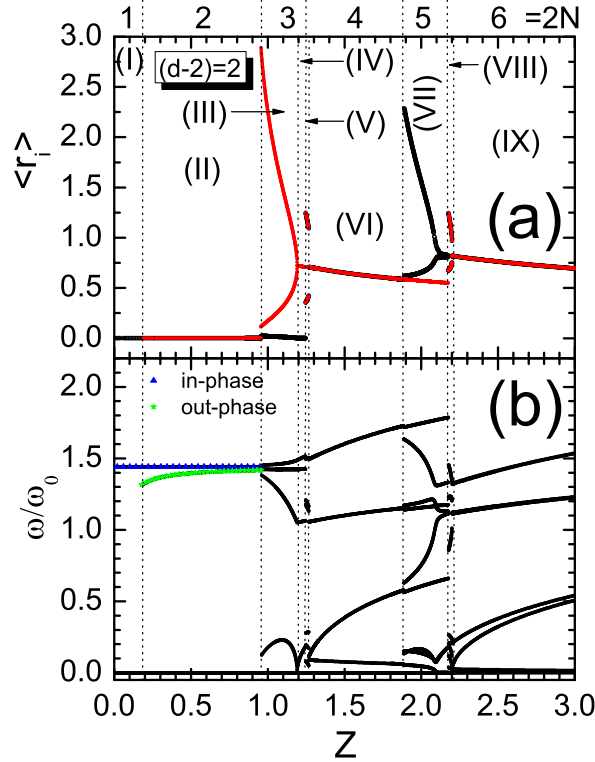


Figura 25: (a) Distância média de cada partícula ao eixo-z em função de Z para o sistema com $2N \leq 6$ partículas e $(d-2) = 2$. As curvas em vermelho e preto representam a posição das partículas em planos diferentes. O número de partículas confinadas é mostrado na parte de cima do gráfico. (b) Freqüência dos modos normais em função de Z . Freqüências de vibração em fase (círculos azuis) e fora de fase (estrelas verdes) das partículas de cada plano ao redor do centro do sistema (eixo-z), Eqs. (4.5) e (4.6), respectivamente, são mostradas também.

aprisionadas, ou seja, confinadas para todos os valores de $(d-2)$. O excesso de carga negativa (sobrecarga) no sistema é $\Delta q = 1, 6$, o que é maior do que a sobrecarga permitida no sistema composto por um plano [73]. A sobrecarga é devida a blindagem, das cargas positivas, na interação entre os elétrons de planos distintos. Quando as cargas positivas estão localizadas na região externa dos planos de elétrons, não se observa blindagem na interação entre os elétrons de planos distintos e a sobrecarga é sempre $\Delta q < 1$, como no sistema com apenas um plano. Note-se que os elétrons de planos diferentes poderiam ser visto como contra-íons (em inglês *counterions*) adsorvidos na superfície de uma grande partícula colóidais. O atual modelo já mostrou sobrecarga anteriormente [79], que aqui é uma conseqüência da blindagem na interação entre os contra-íons (elétrons).

Uma outra interessante e não trivial característica do modelo discutido aqui foi observada quando estudou-se o sistema em função da carga de confinamento Z para uma distância d fixa. Em geral, observou-se que configurações de equilíbrio assimétricas e quebra espontânea de equilíbrio surgem em função de (d, Z) . Quando o valor de Z é

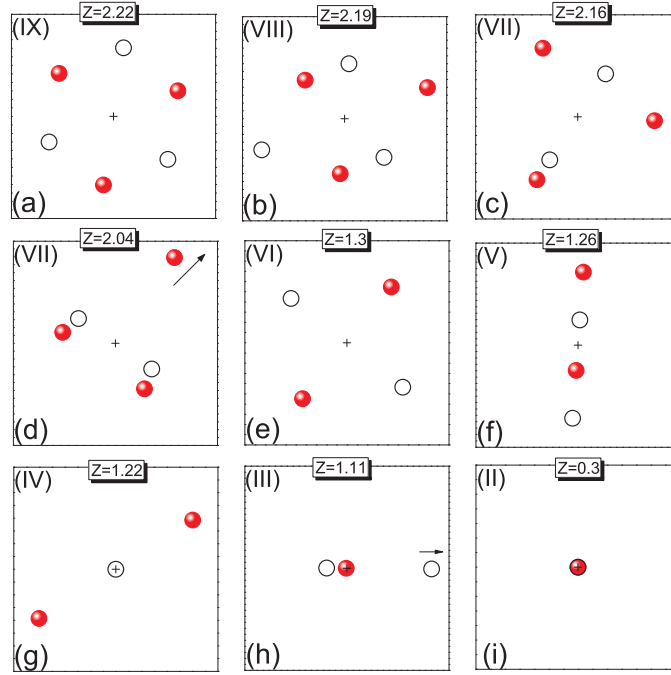


Figura 26: Configurações de mínima energia do sistema com $2N \leq 6$ e $(d-2) = 2$ para as diferentes regiões da Figura 25. Partículas de diferentes planos estão representadas por diferentes símbolos (círculos abertos e esferas vermelhas).

suficientemente reduzido para confinar um certo número de partículas, um elétron pode subitamente deixar o sistema indo ao infinito. Esse processo de desprendimento ou "evaporação" de partículas é caracterizado por uma transição estrutural de fase de primeira ordem. Com a intenção de observar a mudança de estrutura do sistema, a distância média de cada partícula ao eixo z (r_i) e as frequências dos modos normais em função de Z são apresentadas na Figura 25 para o sistema com $2N \leq 6$ partículas. A distância entre as cargas positivas é fixada em $(d-2) = 2$. Definiram-se na Figura 25 nove diferentes regiões associadas a diferentes configurações de mínima energia, separadas umas das outras por uma transição estrutural de fase de primeira ou segunda ordem.

Em função de Z , a simulação é iniciada na região (IX) $Z \geq 2,201$ onde as partículas de cada plano estão localizadas nos vértices de um triângulo equilátero. Examinando a estrutura mostrada na Figura 26(a), observa-se que os triângulos equiláteros estão orientados um em relação ao outro, formando um hexágono indicando uma correlação entre partículas de planos diferentes. Quando $Z = 2,201$, o sistema sofre uma transição de fase estrutural de primeira ordem para a região (VIII) $2,175 \lesssim Z < 2,201$. Essa transição é caracterizada por uma alteração abrupta das posições das partículas em função do Z . A nova configuração de menor energia é mostrada na Figura 26(b). As partículas em cada plano estão agora localizadas nos vértices de um triângulo isósceles, orientados em

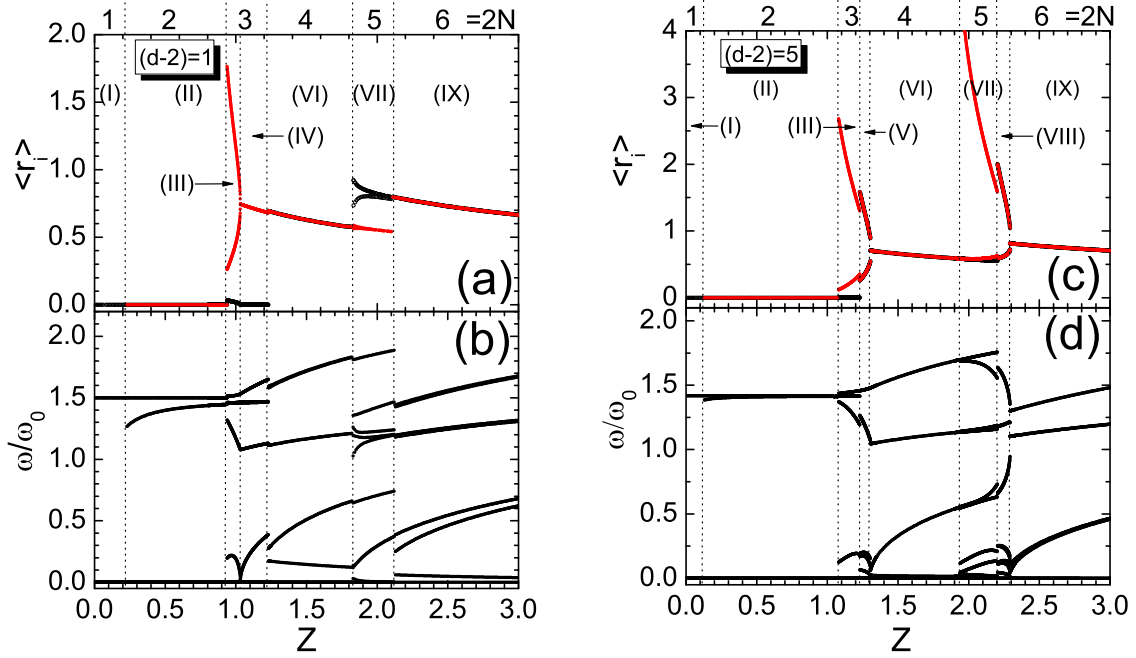


Figura 27: Distância média de cada partícula ao eixo- z e frequência dos modos normais em função de Z para o sistema com $2N \leq 6$ partículas e $(d-2) = 1$ (a,b, respectivamente) e $(d-2) = 5$ (a,b, respectivamente).

direções opostas. Essa configuração se deve a intensidade do potencial de confinamento que não é suficiente grande para manter todas as partículas na mesma distância, significando que a correlação eletrostática entre os elétrons começa a dominar a estrutura do sistema, visto que a simetria circular do potencial de confinamento deixou de ser exibida pela configuração de equilíbrio.

Em $Z = 2,175$, outra transição estrutural abrupta é observada levando o sistema para a região (VII) ($1,857 \lesssim Z < 2,175$), onde agora as configurações de cada plano são diferentes Figura 26(c). A transição da região (VIII) para a região (VII) é caracterizada pelo desprendimento de uma única partícula, ou seja, uma partícula de apenas um plano. Tal assimetria no processo de evaporação resulta em uma quebra espontânea de simetria da configuração de equilíbrio de todo o sistema. A configuração de mínima energia da região (VII) também é observada nas regiões (IX) e (VIII), mas como um estado meta-estável do sistema. Como exemplo, para $Z = 2,22$ (região (IX)) a configuração de mínima energia (Figura 26(a)) é observada com a energia $E_{estavel} = -1,365853$, enquanto que a configuração meta-estável mostrada na Figura 26(c) possui energia $E_{meta} = -1,359902$. Note-se que a configuração do estado fundamental é determinada pela competição entre o potencial de confinamento atrativo e o potencial de interação repulsiva entre as partículas negativas. Neste caso, a evaporação de uma partícula resulta numa energia de confinamento maior para as partículas remanescentes, resultando em uma energia maior de todo

o sistema.

Quando o valor de Z é reduzido na região (VII), a configuração do sistema se altera continuamente a fim de alcançar um arranjo de partículas mais simétrico. Como conseqüência, um elétron do plano com $N = 3$ se distancia do centro do sistema até $Z = 1,857$ (Figura 26(d)) onde torna-se subitamente desvinculado do sistema. Neste momento, o sistema está na região (VI) ($1,268 \lesssim Z < 1,857$) apresentando um configuração bem simétrica onde há duas partículas em cada plano (Figura 26(e)). A evaporação de duas partículas torna novamente o potencial de confinamento dominante impondo, assim, a simetria circular na estrutura do sistema.

Em $Z = 1,268$, uma nova transição de fase estrutural de primeira ordem ocorre levando o sistema a uma pequena região (V) ($1,247 \lesssim Z < 1,268$), onde uma estrutura não trivial é apresentada pelo sistema (Figura 26(f)). É interessante notar que, apesar do número de partículas ser distribuído uniformemente entre os planos, a configuração é assimétrica, ou seja, as partículas de cada plano estão localizadas em diferentes distâncias do eixo z . A configuração simétrica observada na região (VI) é também obtida como uma configuração estável na região (V), mas com uma energia maior. Por exemplo, em $Z = 1,26$ a configuração de mínima energia (Figura 26(f)) tem energia $E_{estavel} = -0,561026$, enquanto a configuração simétrica similar à aquela observada na Região (VI) apresenta-se com uma configuração meta-estável com energia $E_{meta} = -0,560911$.

Em $Z = 1,247$, o sistema atinge a região (IV) ($1,192 \lesssim Z < 1,247$) através de uma nova transição de fase estrutural de primeira ordem, associada com a desvinculação de mais uma partícula. O sistema apresenta agora um número diferente de partículas em cada plano (Figura 26(g)). Essa estrutura com diferentes números de partículas em cada plano, observada na região (IV), ocorre apenas num curto intervalo de Z . Para $Z = 1,192$, a configuração de menor energia muda rapidamente, de modo contínuo, caracterizando uma transição de fase estrutural de segunda ordem. Essa transição é também caracterizada pela diminuição do valor de uma das freqüências dos modos normais (Figura 25(b)), ou seja, uma das freqüências torna-se zero no ponto de transição.

Agora, o sistema está na região (III) ($0,956 \lesssim Z < 1,192$), onde uma outra partícula começa a se distanciar do centro do sistema, tornando-se totalmente desvinculado em $Z = 0,956$ através de uma nova transição de fase estrutural de primeira ordem para a região (II) ($0,190 \lesssim Z < 0,956$), onde ambas as partículas estão localizadas no topo de suas respectivas carga positivas. Uma nova redução da carga de confinamento leva o sistema a outra transição de fase estrutural para a região (I), em que apenas uma partícula

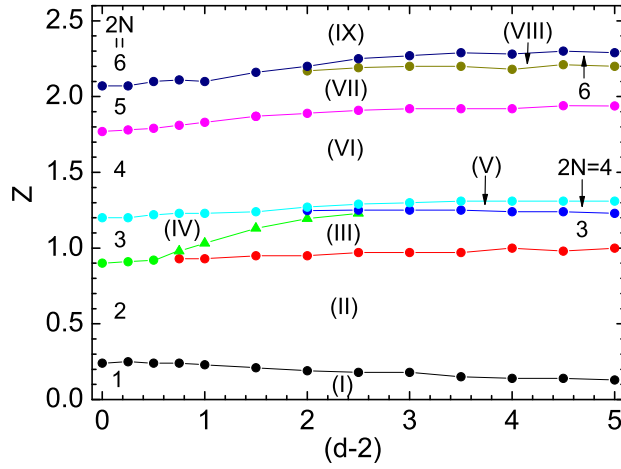


Figura 28: Diagrama de fase $Z \times (d - 2)$ da configuração de menor energia do sistema com $2N \leq 6$. O número de partículas $2N$ em cada região é apresentado também. Transições estruturais de fase de primeira e segunda ordem são representados por círculos e triângulos, respectivamente.

permanece no topo da sua carga positiva. Essa transição ocorre quando $Z = 0,190$. Em geral, verificou-se que o valor de Z correspondente a essa transição é dado pela expressão

$$Z = \frac{d - 1}{d^2}, \quad (4.4)$$

que é obtida fazendo com que a energia do sistema com duas partículas seja igual à energia do sistema com apenas uma partícula.

As frequências dos modos normais das configurações discutidas anteriormente são apresentadas na Figura 25(b). Em geral, as frequências dos modos normais são mais degeneradas quando a configuração de equilíbrio é simétrica. Observa-se também que esses modos são muito sensíveis às transições estruturais de primeira e segunda ordem. Para as transições de primeira-ordem, as frequências exibem mudanças de valor abruptamente nos pontos de transição, enquanto que para transições de segunda ordem existe uma diminuição gradual dos valores das frequências [76].

Para todos os valores de Z , existe um modo $\omega = 0$ que é associado com a rotação de todo o sistema em torno do eixo z . As frequências dos modo normais dependem da intensidade do potencial de confinamento. Há uma exceção na região (II), onde o modo não nulo com frequência constante é observado. Este é o modo associado com vibração em fase das partículas em torno do centro do potencial de confinamento, ou seja, o modo do centro de massa (c.m.). Note-se que na região (II) há outro modo que diminui com a redução do valor de Z , associado com a vibração fora de fase das partículas, ou seja, as

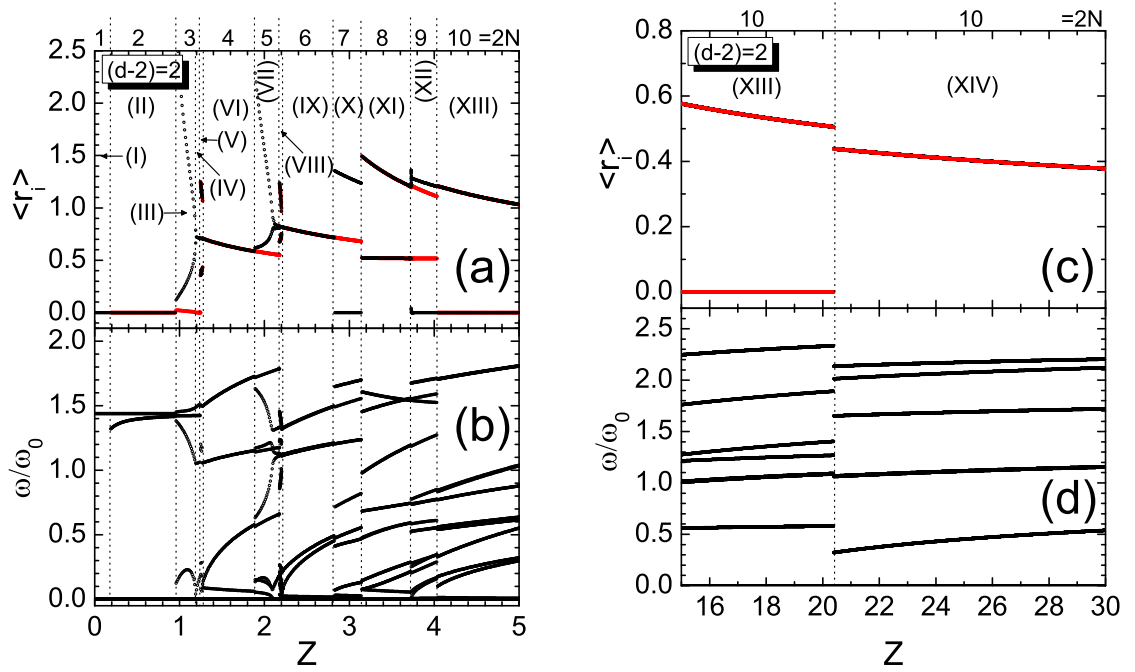


Figura 29: (a)(c) Distância média de cada partícula em relação ao centro do eixo-z com uma função de Z para o aglomerado com $2N \leq 10$, e distância entre as cargas de confinamento $(d-2) = 2$. Curvas em preto e vermelho representam posições das partículas de planos diferentes. O número de partículas confinadas é dado logo acima da Figura. (b)(d) Frequência dos modos normais de vibração em função de Z .

partículas de planos distintos oscilam na direção oposta. Paralelamente, foram calculadas as expressões para os modos normais de vibração, em fase e fora de fase, do modo do centro de massa.

$$\omega_{emfase} \approx \sqrt{Z + \frac{Z}{(d-1)^3}} \quad (4.5)$$

$$\omega_{forafase} \approx \sqrt{Z + \frac{Z}{(d-1)^3} - \frac{2N}{d^3}} \quad (4.6)$$

As frequências obtidas a partir das Eqs. 4.5 e 4.6 são, respectivamente, mostradas na Figura 25(b) como triângulos azuis (vibração em fase) e estrelas verdes (vibração fora de fase). Devido à natureza do potencial de confinamento, que é associado com uma distribuição de carga não homogênea, nem sempre há um modo do centro de massa para qualquer número de partículas do sistema, em contraste com o caso em que o sistema é confinado por um potencial parabólico. Na região I, existe apenas uma partícula e seu modo é igual ao modo do centro de massa.

Tal como sugerido pela Eq. (4.2), as propriedades físicas do sistema também são regidas pela distância entre os planos d . Para observar esse fenômeno, mostram-se, na

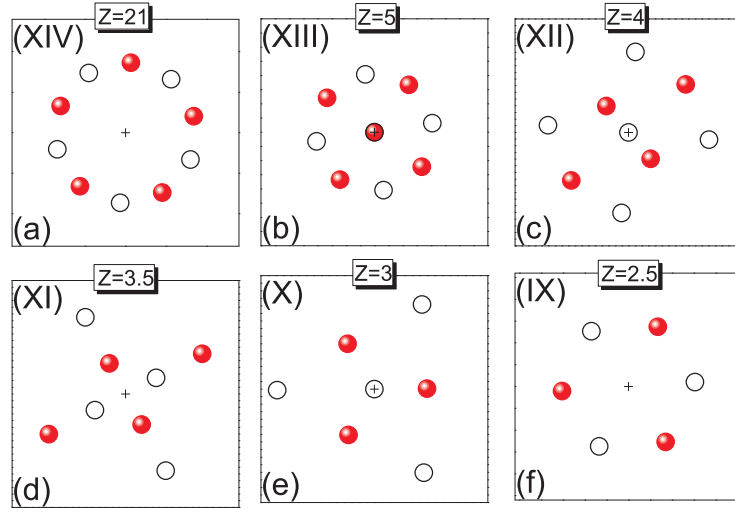


Figura 30: Configurações de mínima energia do sistema com $2N \leq 10$ e $(d-2) = 2$ para diferentes regiões da Figura 29. Partículas de planos diferentes são representadas por símbolos diferente (círculos abertos e esferas vermelhas).

Figura 27, resultados para diferentes distâncias entre as cargas de confinamento, ou seja, $(d-2) = 1$ e $(d-2) = 5$. As regiões definidas aqui correspondem às mesmas configurações mostradas na Figura 26. Como pode ser visto nas Figuras 27(a) e 27(c), algumas configurações observadas para $(d-2) = 2$ (Figura 25) estão agora ausentes. Por exemplo, para $(d-2) = 1$, as configurações associadas com as regiões (VIII) e (V) não são observadas na Figura 27. A configuração do sistema se altera diretamente da região (IX) (Figura 27(a)) para a região (VII) (Figura 27(c)), e da região (VI) (Figura 27(e)) para a região (IV) (Figura 27(d)). Em ambos os casos, há evaporação de um elétron que conduz o sistema a um desequilíbrio na distribuição de cargas sobre os planos. O mesmo fenômeno é observado para $(d-2) = 5$, mas agora a desvinculação de uma partícula conduz o sistema diretamente da região (V) (Figura 27(f)) para a região (III) (Figura 27(h)).

Observou-se também que a distância entre os planos influencia o espectro dos modos normais. Em geral, aglomerados com grandes distância entre os planos apresentam um espectro dos modos normais mais degenerados devido à pequena interação entre as cargas de planos diferentes. Este fato pode ser visto, como exemplo, nas Figura 27(b) e 27(d). Note-se que, na região II, a vibração fora de fase do modo do centro de massa, no caso $(d-2) = 5$, é muito menos sensível a Z do que do mesmo modo no caso de $(d-2) = 1$, onde a interação entre as partículas de planos diferentes é mais forte.

A influência dos parâmetros Z e $(d-2)$ sobre a configuração de mínima energia do sistema com um número máximo de cargas confinadas $2N \leq 6$ é resumida em um diagrama

Z x $(d - 2)$, apresentado na Figura 28. As regiões de estabilidade das configurações depende dos parâmetros $(Z, (d - 2))$. Por exemplo, a configuração associada à região (VIII) da Figura 27 é observada apenas para $Z \gtrsim 2$. As configurações (III), (IV) e (V) são obtidas apenas para específicos valores de $(Z, (d-2))$. As transições entre as diferentes regiões, ou seja, entre diferentes configurações, ocorre mais freqüentemente através de transições estruturais de primeira ordem. O caso específico da mudança de estrutura induzida pela evaporação de uma ou mais partículas é sempre caracterizado por uma transição estrutural de primeira ordem. Transições estruturais de segunda ordem também foram obtidas, mas apenas entre as configurações (III) e (IV) (Figura 28).

As principais características apresentadas pelo aglomerado $2N \lesssim 6$ foram também observadas em outros aglomerados com um número maior de partículas. Diferentes configurações de mínima energia aparecem quando o número de partículas aumenta, mas o comportamento geral dos sistemas mostrados nesse trabalho é o mesmo observado na Figura 29 do aglomerado com $2N \leq 10$ e $((d-2) = 2)$ em função de Z . Um grande número de regiões foi definido, e as configurações associadas com essas novas regiões são apresentadas na Figura 30. As outras regiões ((I), (II),..., (VIII)) são as mesmas apresentadas na Figura 27.

4.4 Conclusão

Neste trabalho, estudou-se numericamente as diferentes configurações e espectros dos modos normais de vibração de um sistema verticalmente acoplado $2D$ de partículas clássicas, confinadas por uma distribuição de cargas não uniforme. Como exemplo, as cargas foram consideradas pontuais. As propriedades foram analisadas em função da separação entre os planos de cargas (d) e da intensidade do potencial de confinamento (Z) . Os resultados foram mostrados para o sistema molecular $2N \leq 6$ e $2N \leq 10$. O diagrama de fase (d, Z) exibiu uma rica variedade de transições estruturais de primeira e segunda ordem, delimitando regiões em que o sistema apresenta configurações simétricas e assimétricas, algumas delas associadas à desvinculação (evaporação) de uma partícula.

Em comparação com o sistema vertical confinado por um potencial parabólico estudado anteriormente por Partoens *et al.* [77], novas configurações assimétricas de mínima energia foram observadas assim como evaporação de partículas. A competição entre o potencial de confinamento atrativo e o potencial de interação repulsivo entre as partículas negativas resulta em um rico e não trivial conjunto de configurações. A evaporação de

uma partícula leva o sistema a uma distribuição de carga desequilibrada sobre os planos apresentando assim uma configuração de mínima energia assimétrica. Essas alterações na configuração do sistema são sempre caracterizadas por uma transição estrutural de primeira ordem.

No sistema estudado nesse trabalho, calculou-se também sua sobrecarga, que se mostrou maior do que aquela encontrada por Farias e Peeters [73] no caso de um único plano de partículas confinados por um potencial Coulombiano. A blindagem da interação entre as partículas de planos distintos é a causa da estabilidade do estado iônico, aqui definido por um excesso de cargas confinadas no sistema.

Observou-se que o espectro das frequências dos modos normais é muito sensível à simetria da configuração de mínima energia, e às transições estruturais sofridas pelo sistema. Em geral, as frequências dos modos normais se tornaram mais degeneradas na presença de configurações de equilíbrio assimétricas. Além disso, observou-se também que o espectro de frequências apresenta comportamento específico de acordo com o tipo de transição estrutural sofrida pelo sistema. Para transições estruturais de primeira ordem, há uma alteração repentina no comportamento do espectro dos modos normais, enquanto que para uma transição estrutural de segunda ordem há uma redução contínua do valor de algumas frequências do espectro.

5 Transição Sólido-Líquido (Melting)

5.1 Introdução

Problemas associados com transições de fase em sistemas de interação das partículas são de interesse significativo em vários campos da ciência e da tecnologia. O estudo de transições sólido-líquido em sistemas bidimensionais (2D) é de interesse teórico e prático, além de ser qualitativamente diferente da fusão de sistemas em três dimensões (3D). Um aspecto importante, que surge em uma estrutura cristalina bidimensional quando ocorre um aumento de temperatura, é o aparecimento de uma transição indicando que o cristal está passando de um estado sólido para um estado líquido. Essa transição ocorre da seguinte maneira: quando o cristal está em baixas temperaturas, com suas partículas em posição de equilíbrio, elas exibem oscilações harmônicas; mas quando a temperatura é aumentada, as oscilações das partículas tornam-se cada vez maiores, até começarem a se mover livremente comportando-se como um líquido. Contudo, o comportamento microscópico do cristal 2D durante essa transição sólido-líquido, ainda continua em aberto e provocando controvérsias. A incerteza está em se o cristal 2D sofre uma transição de primeira ordem¹, ou seja, abruptamente, ou uma transição contínua, em dois passos, na qual o cristal passa inicialmente por uma fase “hexática”, possuindo nesse instante uma ordenação de “quasi” longo alcance, só então transitando para um estado de fluido isotrópico. A transição caracterizada pelo processo em dois passos é proposta na teoria de Kosterlitz-Thouless-Halperin-Nelson-Young [80, 81, 82] e confirmada em diversos sistemas com diferentes potenciais de interação entre as partículas como, por exemplo, no caso de elétrons na superfície de hélio [83], em polímeros colidais [12, 84] e em aglomerados magnéticos em filmes finos [85, 86].

¹Utiliza-se aqui a classificação de Ehrenfest que denomina transição de primeira ordem àquela em que a derivada primeira da energia do sistema em relação a uma variável termodinâmica, no caso a temperatura, é descontínua. Transição de segunda ordem, atualmente conhecida como transição contínua, é aquela que possui descontinuidade na derivada segunda da energia.

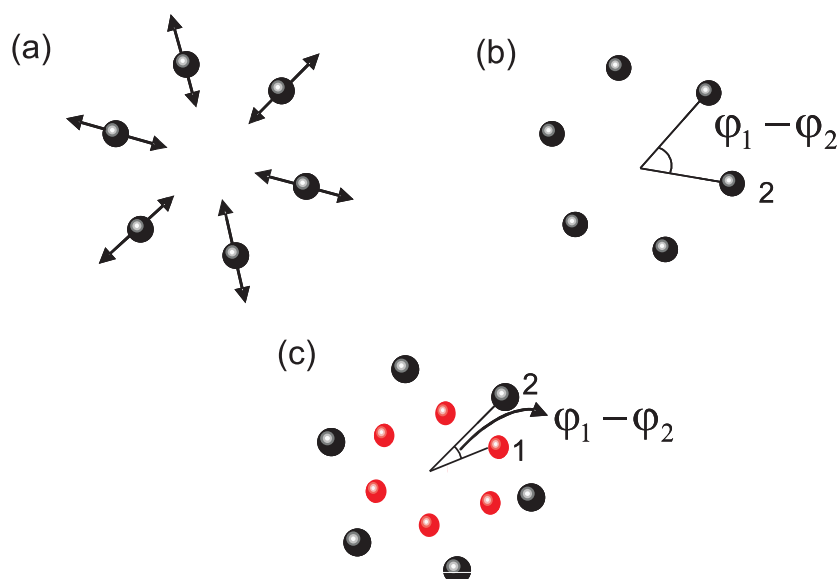


Figura 31: Ilustração das oscilações consideradas no cálculo do (a) deslocamento radial médio, (b) deslocamento angular médio das partículas da mesma camada e (c) deslocamento angular entre as camadas. Nas representações de (b) e (c), o vizinho mais próximo da partícula 1 é a partícula 2.

No entanto, sistemas 2D com pequeno número de partículas mostram que não há temperatura² definida para a transição sólido-líquido, mas uma região onde essa transição ocorre. Com isso, diversos métodos foram desenvolvidos com o objetivo de identificar a temperatura de fusão de sistemas bidimensionais. Um deles foi definido por Lindermann, em 1910 [87], desenvolvendo um critério que define um parâmetro universal (Y), com o valor correspondente ao deslocamento entre duas partículas vizinhas de um sistema finito, para a determinação da transição sólido-líquido de cristais bidimensionais. Através de cálculos de fônons anarmônicos [88] e simulações de dinâmica-molecular [89], observou-se que esse valor concorda com $Y = 0.1$, ou 0.05 para cada coordenada da partícula.

Em 1994, Bedanov e Peeters [68] introduziram importantes propriedades no cálculo do deslocamento das partículas em sistemas finitos organizados em camadas³(Figura 31). Essas propriedades caracterizam o comportamento de sistemas bidimensionais na transição sólido-líquido utilizando o cálculo das oscilações das partículas. Os autores introduziram o cálculo do desvio radial, desvio angular das partículas da mesma camada e o desvio angular entre as camadas. Com o objetivo de entender o cálculo dessas propriedades,

²Nesses sistemas com poucas partículas a temperatura é calculada através da Eq. 2.10, a qual é definida através do teorema de equi-partição.

³Consideram-se partículas da mesma camada aquelas que estão localizadas a igual distância do centro de confinamento.

uma breve descrição delas é dada a seguir. O desvio radial das partículas é definido como

$$\langle u_R^2 \rangle = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (\langle r_i^2 \rangle - \langle r_i \rangle^2) / \rho^2, \quad (5.1)$$

onde $\rho = 2R/\sqrt{N}$ é a distância médias entre as partículas em $T = 0$. Um esboço do tipo de oscilação que é considerada nessa propriedade é mostrado na Figura 31(a).

Estuda-se a fusão angular das partículas de um sistema através do cálculo do deslocamento médio angular entre as partículas da mesma camada. Esse deslocamento médio é dado por

$$\langle u_{a1}^2 \rangle = \frac{1}{N_s} \sum_{i=1}^{N_s} (\langle (\varphi_i - \varphi_{i1})^2 \rangle - \langle (\varphi_i - \varphi_{i1}) \rangle^2) / (\varphi_0^s)^2, \quad (5.2)$$

onde N_s é o número de partículas da camada, $i1$ indica o vizinho mais próximo da partícula i na mesma camada e $\varphi_0^s = 2\pi/N_s$ indica a distância angular média das partículas em $T = 0$. Esse desvio é calculado através da média do ângulo entre duas partículas vizinhas (Figura 31(b)).

Estuda-se também o deslocamento de uma camada em relação a outra através do cálculo do deslocamento angular entre partículas de camadas vizinhas. Esse deslocamento angular é obtido através da média do ângulo $(\varphi_1 - \varphi_2)$ entre partículas vizinhas de camadas adjacentes. O deslocamento intercamadas, como será aqui chamado, é obtido como

$$\langle u_{a2}^2 \rangle = \frac{1}{N_s} \sum_{i=1}^{N_s} (\langle (\varphi_i - \varphi_{i2})^2 \rangle - \langle (\varphi_i - \varphi_{i2}) \rangle^2) / (\varphi_0^s)^2, \quad (5.3)$$

onde $i2$ indica o vizinho mais próximo na camada adjacente. Uma representação do ângulo considerado nesse cálculo é mostrada na Figura 31(c).

A partir dessas propriedades é possível observar o comportamento do sistema em função da temperatura e analisar a forma como ele se desorganiza. Esse método é utilizado tanto teórica como experimentalmente. Por exemplo, Coupier *et al.* [90] analisaram experimentalmente Ilhas de Wigner que são constituídas por esferas de aço (de diâmetro $d=0.8$ mm e peso de $m = 2.15$ mg) localizadas num capacitor plano horizontal. Esse trabalho foi desenvolvido comparando alguns critério utilizados na observação da transição sólido-líquido nesse sistema. Dentre eles, o critérios de Lindermann [87] mostrou-se eficiente na determinação da região de transição. Portanto, o cálculo do deslocamento das partículas, bem como com o critério de Lindermann, mostram ser um método eficaz para detectar e caracterizar o comportamento das partículas de um sistema 2D na transição

sólido-líquido.

5.2 Transição sólido-líquido de um sistema com dois tipos de partículas

Nesta Seção, investiga-se o fenômeno de fusão em um sistema contendo dois tipos de partículas confinadas por um potencial parabólico. O objetivo deste trabalho é compreender melhor como a presença de impurezas, representadas aqui por partículas com diferentes cargas e/ou massas, influencia na temperatura da transição sólido-líquido de sistemas bi-dimensionais [91, 35, 92]. Para estudar esta influência, as propriedades térmicas do sistema são analisadas em função da relação entre as cargas (α) e massas (β) dos dois tipos de partícula.

Este sistema, composto por diferentes cargas e/ou massas (binário), já foi analisado anteriormente em $T = 0$ [93]. Neste trabalho, estudou-se o espectro de frequência dos modos normais das partículas e suas configurações, em função da relação entre as cargas (α) e/ou massas (β) das partículas deste sistema. Observou-se que os dois tipos de partículas segregavam-se espontaneamente, para valores específicos de α e β , e que esses parâmetros exercem grande influência nos modos normais de vibração das partículas. O estudo da transição sólido-líquido no sistema binário já foi realizado anteriormente [94, 95] para valores bem específicos das relações entre as cargas e massas das partículas, $\alpha = 2$, $\beta = 1$ e $\alpha = 8$, $\beta = 1$, respectivamente. Contudo, o objetivo do estudo mostrado nesta Seção é apresentar uma análise mais completa sobre a influência dos parâmetros α e β na temperatura de fusão deste sistema. Dessa maneira, estuda-se o comportamento deste sistema em função da temperatura para diversos valores de α e β , oferecendo, assim, um panorama mais completo sobre a estabilidade do sistema.

Na próxima Seção, descreve-se o modelo do sistema indicando os tipos de partículas, informando as técnicas utilizadas e apresentando os parâmetros empregados para caracterizar a transição sólido-líquido neste sistema. Após isso, apresentam-se os resultados da transição sólido-líquido do sistema composto por partículas com diferentes cargas e massas. Por fim, apresentam-se as conclusões deste trabalho.

5.2.1 Modelo

O sistema consiste de dois tipos de partículas (binário) que podem-se mover em duas dimensões, onde N_f partículas possuem carga q_f e massa m_f , e N_v partículas possuem carga q_v e massa m_v . Todas as partículas carregadas interagem através de um potencial Coulombiano repulsivo puro ($1/r$) e são confinadas por um potencial parabólico. O

Hamiltoniano do sistema é dado por

$$\begin{aligned}
H = & \sum_{i=1}^{N_f} \frac{1}{2} m_f \omega_0^2 r_i^2 + \sum_{i=1}^{N_v} \frac{1}{2} m_v \omega_0^2 r_i^2 + \frac{q_f^2}{\epsilon} \sum_{i>j=1}^{N_f} \frac{1}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} \\
& + \frac{q_v^2}{\epsilon} \sum_{k>l=1}^{N_v} \frac{1}{|\vec{r}_k - \vec{r}_l|} + \frac{q_f q_v}{\epsilon} \sum_{m=1}^{N_f} \sum_{n=1}^{N_v} \frac{1}{|\vec{r}_m - \vec{r}_n|},
\end{aligned} \tag{5.4}$$

onde ϵ é a constante dielétrica do meio, ω_0 é a intensidade da frequência de confinamento e $r \equiv |\vec{r}_i|$ é a distância de cada partícula ao centro do potencial de confinamento. Com a finalidade de revelar os parâmetros importantes do sistema é conveniente definir $\alpha = q_v/q_f$ e $\beta = m_v/m_f$ e escrever a energia e as distâncias em termos de $E_0 = (m_f \omega_0^2 q_f^4 / 2\epsilon^2)^{1/3}$ e $r_0 = (2q_f^2 / m_f \epsilon \omega_0^2)^{1/3}$, respectivamente. Isso permite escrever a Eq. (5.4) na seguinte forma adimensional:

$$H = \sum_{i=1}^{N_f} r_i^2 + \beta \sum_{i=1}^{N_v} r_i^2 + \sum_{i>j=1}^{N_f} \frac{1}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} + \sum_{k>l=1}^{N_v} \frac{\alpha^2}{|\vec{r}_k - \vec{r}_l|} + \sum_{m=1}^{N_f} \sum_{n=1}^{N_v} \frac{\alpha}{|\vec{r}_m - \vec{r}_n|}. \tag{5.5}$$

A Eq. (5.5) mostra que o sistema depende do número de partículas dos dois tipos (N_f e N_v) e dos parâmetros α e β , diferenciando-se assim, do sistema com apenas um tipo de carga [68, 10] que depende apenas do número total de partículas. Note-se que as variáveis q_f e m_f são a carga e a massa de referência (fixas), respectivamente. Considerando as dimensões das quantidades definidas acima, a temperatura é calculada em unidades de $T_0 = E_0/k_B$, onde k_B é a constante de Boltzmann.

A configuração do estado fundamental ($T = 0$) desse sistema de partículas foi obtida com o método de simulação de Monte Carlo e o método Newton modificado, comentados nas Seções 2.2 e 2.2.1, respectivamente. De início, posições aleatórias são dadas às partículas carregadas negativamente, atualizando-se depois a posição das partículas até o sistema adquirir uma configuração estável. Simultaneamente, calculam-se as frequências dos modos normais de vibração utilizando a técnica de diagonalização de Householder [10]. Por fim, considera-se configuração final aquela que possui todas as frequências dos modos normais positivas e menor energia. Vale ressaltar que foi tomado todo o cuidado para não se utilizar uma configuração de estado meta-estável.

Com o propósito de estudar a transição sólido-líquido, a temperatura do sistema foi aumentada por um fator δT , tipicamente 10^{-3} , onde a cada passo o sistema é equilibrado em uma nova temperatura durante aproximadamente 2×10^5 passos de Monte Carlo.

Após o sistema atingir o estado de equilíbrio, calculam-se as propriedades utilizadas na caracterização da fusão do sistema, definidas na introdução, onde as médias foram calculadas sobre aproximadamente $10^6 - 10^7$ passos de Monte Carlo. O deslocamento radial médio quadrático é definido como

$$\langle u_R^2 \rangle = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (\langle r_i^2 \rangle - \langle r_i \rangle^2) / \rho^2, \quad (5.6)$$

onde ρ é a distância média entre as partículas na temperatura zero. O símbolo $\langle \rangle$ refere-se à média calculada sobre aproximadamente $10^6 - 10^7$ passos de Monte Carlo após o equilíbrio do sistema.

5.2.2 Transição Sólido-Líquido (Melting)

Apresenta-se nesta Seção a dependência da média quadrática do deslocamento radial das partículas ($\langle u_R^2 \rangle$) em relação à temperatura. Os resultados são apresentados para o caso particular de um sistema constituído por $N_f = 7$ partículas com cargas fixas ($\alpha = 1$) e $N_v = 6$ partículas com cargas variáveis ($\alpha \neq 1$). Esta escolha permite comparar configurações comensuráveis e não-comensuráveis simplesmente mudando o valor da razão α entre as cargas dos dois tipos de partículas [93]. Observa-se que este sistema apresenta diversas configurações comensuráveis e não-comensuráveis. Configuração comensurável ocorre quando os números de partículas das camadas são múltiplos. Caso contrário, a configuração é chamada de não-comensurável. Por exemplo, um sistema com 13 partículas arranjadas em camadas (círculos) como (1,6,6), ou seja, uma partícula no centro, seis partículas na primeira camada e seis partículas na camada mais externa, apresenta uma configuração comensurável. Por outro lado, um aglomerado com partículas arranjadas da forma (1,5,7), possui uma configuração não-comensurável. Além da comensurabilidade do sistema de partículas, Ferreira *et al.* [93] mostraram que o menor modo normal diferente de zero em $T = 0$ depende da razão entre as cargas α . Isso é um fator importante, pois, como será mostrado, a forma desse modo é determinante no comportamento do sistema em função da temperatura.

5.2.2.1 Partículas com cargas diferentes

Nesta Seção, apresentam-se os resultados para o caso em que o sistema, descrito pela Eq. 5.5, consiste de partículas com mesma massa, ou seja, $\beta = 1$. Com isso, efeitos da interação eletrostática entre as partículas podem ser enfatizados no processo da transição

sólido-líquido.

Na Figura 32(a), mostra-se o deslocamento radial médio ($\langle u_R^2 \rangle$) para o aglomerado com ($N_f = 7, N_v = 6$) partículas, ou seja, o sistema possui 7 partículas com carga fixa $q_f = 1$ e 6 partículas com cargas que podem variar, q_v . No caso da Figura 32(a), a razão entre as cargas é $\alpha = 3.0$. Para esses valores específicos dos parâmetros (α, β), as partículas arranjam-se, no estado fundamental, em uma configuração comensurável (1,6,6) como mostrado no interior da Figura 32(a). Observa-se que, quando as partículas estão arranjadas em uma estrutura de camadas (círculos), as partículas com maiores cargas localizam-se na camada mais externa do sistema, que está de acordo com a Ref. [93]. O processo de transição sólido-líquido para esse sistema apresenta um interessante aspecto anisotrópico em relação aos diferentes tipos de partículas do sistema, ou seja, em relação às partículas com diferentes cargas. Como pode ser observado na Figura 32(a), partículas com menores cargas possuem temperatura da transição radial (T_r) menor do que a das partículas com maiores cargas. Em geral, para qualquer valor de α , observa-se que as partículas da camada mais interna sempre possuem a menor temperatura de fusão radial.

Estuda-se a desordem angular de uma camada através do deslocamento angular médio das partículas dessa camada ($\langle u_{a1}^2 \rangle$). Devido ao arranjo comensurável desse sistema com ($N_f = 7, N_v = 6$) partículas, a temperatura da fusão angular T_{a1} das partículas da camada mais interna é ligeiramente menor do que a temperatura de fusão radial T_r [32(b)]. Observa-se que o rápido aumento do valor de ($\langle u_{a1}^2 \rangle$) ocorre na mesma temperatura que o valor de ($\langle u_R^2 \rangle$) também aumenta, mas o valor 0,05 é alcançado em temperaturas diferentes, ou seja, $T_{a1} \approx 0,022$ e $T_r \approx 0,024$. Esse fato é devido ao intenso empacotamento das partículas, que gera uma barreira de potencial elevada o bastante para não permitir que a desordem angular ocorra em temperatura menor do que a da desordem radial. Contudo, foi observado que essa característica não é geral no sistema binário e depende fortemente da interação entre as partículas e, conseqüentemente, do parâmetro α .

Na Figura 32(c), apresenta-se o deslocamento angular médio das partículas de camadas diferentes ($\langle u_{a2}^2 \rangle$) e observa-se que a fusão angular entre as camadas ocorre numa temperatura menor ($T_{a2} \approx 0,012$) do que a temperatura da fusão radial das partículas, ou seja, $T_{a2} < T_r$ e $T_{a2} < T_{a1}$. Esse efeito, conhecido como rotação entre camadas termicamente ativada, também foi observado tanto experimental [90] como numericamente [68, 10] em aglomerados com apenas um tipo de partícula. No entanto, como será mostrado, a rotação entre camadas termicamente ativadas nem sempre é observada em sistemas binários de partículas.

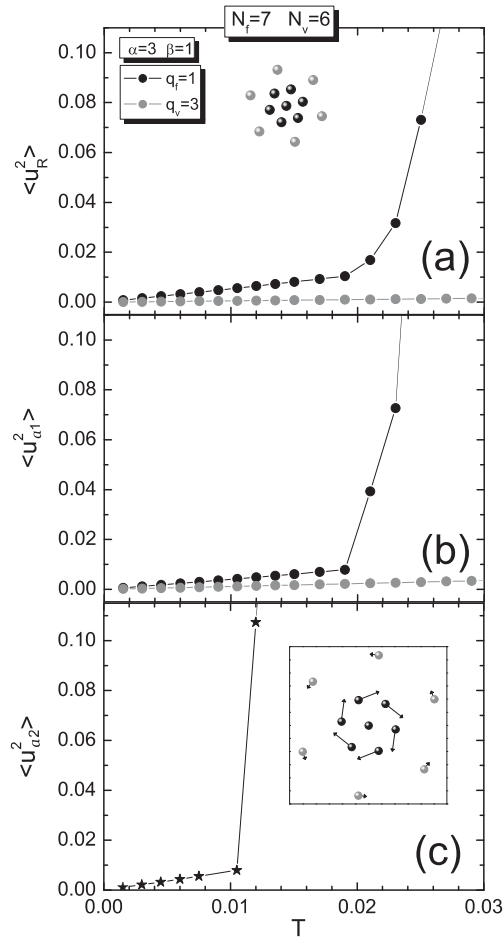


Figura 32: (a) Deslocamento radial médio ($\langle u_R^2 \rangle$), (b) deslocamento angular médio das partículas da mesma camada ($\langle u_{a1}^2 \rangle$) e (c) deslocamento angular entre as camadas ($\langle u_{a2}^2 \rangle$) para o sistema com $N_f = 7, N_v = 6$ partículas. A configuração do estado fundamental é mostrada no interior de (a). Partículas de referência ($q_f = 1$) estão representadas por esferas pretas, enquanto partículas com carga $q_v = 3$ estão representadas por esferas cinzas. O modo normal com a menor frequência não-nula está indicado no interior de (c).

Recentemente, Drocco *et al.* [94] observaram que, num sistema binário, a relação entre o número de partículas das camadas internas e externa influencia a temperatura da fusão angular na mesma camada e entre camadas. No entanto, os autores discutiram essa influência considerando apenas o efeito do número de partículas de cada camada. Como será mostrado, esse efeito também é uma consequência do potencial efetivo causado pelas partículas de cada camada, pois esse potencial não depende apenas do número de partículas mas também do valor da carga e massa delas. Recentemente, observou-se que, além do número de partículas, a razão entre as cargas e/ou massas dos dois tipos de partículas é um parâmetro importante para a ativação de alguns modos normais específicos em $T = 0$ [93]. Partindo da tese que as frequências dos modos normais, especialmente a frequência do menor modo normal diferente de zero, está relacionada diretamente com a

estabilidade e a deformação da configuração do sistema, é de grande relevância para esse trabalho considerar a influência desses modos na obtenção da temperatura de fusão desse sistema. De fato, como mostrado por Schweigert e Peeters [10], a temperatura de fusão pode ser escrita como uma função das frequências dos modos normais em $T = 0$. Em geral, identificou-se que o modo normal com menor frequência não-nula é determinante no processo da transição sólido-líquido em sistemas binários. Especificamente, observa-se que a temperatura de fusão radial (T_r) possui uma dependência em relação ao parâmetro α quando o sistema apresenta um determinado modo em $T = 0$. Além disso, observa-se que a rotação entre camadas termicamente ativadas mantém dependência em relação ao parâmetro α . Para analisar todas as características comentadas anteriormente, mostraram-se resultados para o sistema com $N_f = 7, N_v = 6$ partículas para diversos valores de α .

Para analisar melhor a influência da frequência dos modos normais na transição sólido-líquido, a frequência do menor modo diferente de zero é mostrada na Figura 33(a) para o sistema com $N_f = 7, N_v = 6$ partículas em função de α . Como discutido no parágrafo acima, e mostrado na Ref. [93], observa-se que a menor frequência diferente de zero (em $T = 0$) desse sistema é sensível à razão entre as cargas dos dois tipos de partículas. As regiões I,II,III,IV definem os intervalos de α onde a configuração do estado fundamental tem diferentes simetrias. Algumas configurações são mostradas no interior da Figura 33(a) e observa-se que, na região II, as partículas estão arranjadas em uma configuração não-comensurável (1,5,7), ou seja, uma partícula com carga q_v localiza-se no centro, cinco partículas com carga q_v na primeira camada e sete partículas com carga q_f na camada mais externa do sistema. Pode-se observar que as partículas com carga de referência ($q_f = 1$) localizam-se na camada mais externa, pois possuem cargas maiores do que as partículas com carga q_v . Na região IV o sistema possui uma configuração comensurável (1,6,6). Nesse caso, as partículas de referência $q_f = 1$ localizam-se na parte interna do sistema.

Sabendo-se que a fusão radial é anisotrópica em relação aos diferentes tipos de partículas, a partir de agora concentra-se a atenção nas partículas internas, as quais possuem as menores temperaturas de fusão. Para melhor entendimento divide-se a região IV em sub-regiões IVa($1,307 \lesssim \alpha \lesssim 1,431$), IVb($1,431 \lesssim \alpha \lesssim 2,384$), IVc($\alpha \gtrsim 2,384$) onde o sistema tem mesma configuração, mas diferentes modos normais. Na região II e nas sub-regiões IVa, IVb e IVc, os menores modos diferentes de zero são mostrados no interior da Figura 33(a). Especificamente, pode-se notar que as sub-regiões IVb e IVc possuem a mesma configuração, porém modos normais consistindo do tipo par vortex-antivortex e

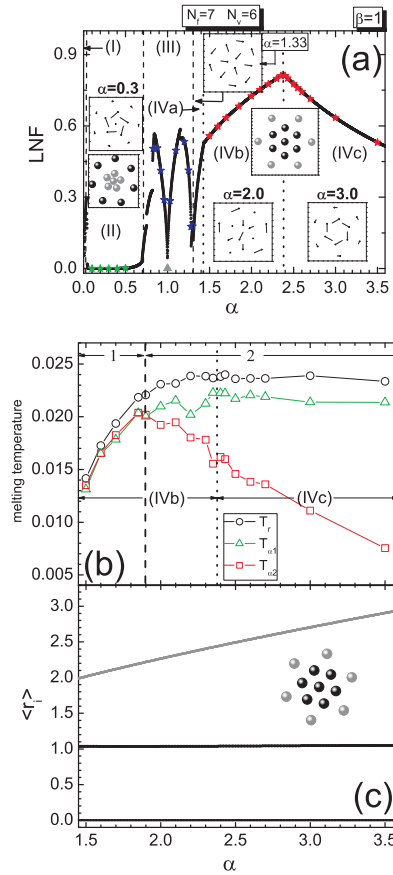


Figura 33: (a) Menor frequência não-nula em função de α para o aglomerado com $N_f = 7, N_v = 6$ partículas. Algumas configurações do estado fundamental são exibidas no interior de (a) (símbolos pretos representam partículas com carga $q_f = 1$, enquanto símbolos cinzas representam partículas com carga $q_v = \alpha$). (b) Temperatura radial média T_r , temperatura de fusão angular das partículas da camada mais interna T_{a1} temperatura de fusão entre as camadas T_{a2} em função de α . (c) Distância de cada partícula em relação ao centro de confinamento em função de α . Curvas de cor preta e cinza são associadas com as partículas que possuem carga $q_f = 1$ e $q_f = \alpha$, respectivamente.

rotação entre camadas, respectivamente.

As diferentes temperaturas de fusão (T_r, T_{a1}, T_{a2}) para as partículas internas do sistema em função de α são mostradas na Figura 33(b) para o aglomerado com $N_f = 7, N_v = 6$ partículas. Para investigar a influência dos tipos de modos normais com menor frequência não-nula no processo da transição sólido-líquido, escolhem-se os valores de α na região IV da Figura 33(a), onde o sistema possui a mesma configuração, mas diferentes modos normais com menor frequência não-nula. A linha pontilhada vertical na Figura 33(b) separa as sub-regiões IVb e IVc de acordo com a separação na Figura 33(a).

Como regra geral, o processo de fusão em sistemas binários é caracterizado pela perda da ordem das partículas entre as camadas (rotação entre camadas termicamente ativadas),

pela perda da ordem das partículas da mesma camada e pela difusão das partículas entre as camadas (fusão radial). Observa-se, na Figura 33(b), que os dois últimos tipos de desordem ocorrem para qualquer valor de α na região IV, ao contrário da rotação entre camadas termicamente ativadas que nem sempre é observada. Essa característica é percebida claramente na região I da Figura 33(b) ($\alpha \lesssim 1,9$), onde a temperatura de transição da desordem angular das partículas na mesma camada (curva verde com triângulos abertos) é ligeiramente menor do que a temperatura da rotação entre camadas termicamente ativadas (curva vermelha com símbolos quadrados), ou seja, $T_{a1} \lesssim T_{a2}$. Esse efeito mostra que a desordem orientacional entre as camadas é observada apenas como consequência da desordem angular da camada interna.

Na Figura 33(b), a desordem angular entre as camadas ocorre antes da desordem angular das partículas da mesma camada apenas na região $\alpha \gtrsim 1,9$, ou seja, a rotação entre camadas termicamente ativadas ocorre apenas nessa região, pois $T_{a1} > T_{a2}$. Nesta região, T_{a2} diminui continuamente com o aumento do valor do parâmetro α indicando que a rotação entre camadas termicamente ativadas é independente do modo normal com menor frequência não-nula, pois não há mudança do comportamento da curva T_{a2} quando o sistema muda o modo de par vortex-antivortex para o modo de rotação entre camadas. Por outro lado, observa-se que T_{a2} tem uma dependência em relação ao parâmetro α já que a rotação entre camadas termicamente ativadas torna-se mais fácil com o aumento de α . Esse comportamento é facilmente entendido quando se analisa a distância média das partículas ao centro de confinamento ($\langle r_i \rangle$) em função de α , mostrado na Figura 33(c). O raio da camada mais interna (partículas com $q_f = 1$) é praticamente constante, enquanto que o raio da camada mais externa (partículas com carga $q_v = \alpha$) aumenta com o aumento do parâmetro α , comportamento que se deve ao fato da repulsão eletrostática entre as partículas com carga q_v também aumentar com o aumento de α . O aumento da separação entre as camadas diminui o acoplamento entre elas, tornando a rotação entre as camadas mais fácil.

Com o objetivo de observar a influência do modo normal com menor frequência não-nula no processo de fusão do sistema, analisam-se agora a desordem radial e a desordem angular entre as partículas da mesma camada na região IV da Figura 33(a). Vale lembrar que os resultados para as temperaturas de fusão T_r e T_{a1} são associados às partículas internas que sofrem fusão primeiro. O comportamento das curvas de temperaturas T_r e T_{a1} em função de α na Figura 33(b) sugere que essas temperaturas sofrem alguma influência do modo normal com frequência não-nula. Na região IVb da Figura 33(b), onde o modo normal com frequência não-nula do sistema em $T = 0$ é o par vortex-

antivortex, ambas as temperaturas (T_r e T_{a1}) são claramente afetadas pelo parâmetro α . Especificamente, T_r e T_{a1} aumentam com o aumento de α até $T_r \approx 0,024$ e $T_{a1} \approx 0,022$ em $\alpha \approx 2,38$ [região IVb], respectivamente. Quando $\alpha \gtrsim 2,38$, onde o modo normal do sistema em $T = 0$ muda para rotação entre camadas, as temperaturas T_r e T_{a1} diminuem suavemente com o aumento de α [região IVc].

Os resultados discutidos nos parágrafos acima sugerem que a forma do modo normal com frequência não-nula do sistema em $T = 0$ determina seu comportamento térmico e, além disso, mostram que a transição sólido-líquido em dois passos, observada em outros trabalhos [68] em sistemas com apenas um tipo de partícula, nem sempre é encontrada num sistema binário. Até o presente trabalho, essa dependência entre a temperatura de fusão e o menor modo normal com frequência não-nula, não havia sido encontrada em pequenos aglomerados de partículas carregadas.

Os resultados mostrados até aqui relacionados à temperatura de fusão (Figura 33(b)) foram restringidos a valores de α na região IV da Figura 33(a), onde a configuração do estado fundamental é um estado comensurável. Analisa-se a partir de agora o comportamento térmico do sistema na região II ($0,053 \lesssim \alpha \lesssim 0,694$), onde o sistema encontra-se numa configuração não-comensurável (1,5,7) a qual pode ser observada no interior da Figura 33(a). Nessa configuração observa-se que as partículas com carga $q_f = 1$ (esferas pretas) estão agora localizadas na camada mais externa do sistema.

Como mostrado por Schweigert e Peeters [10], para um sistema com apenas um tipo de partícula, e por Ferreira *et al.* [93], para o sistema binário mostrado neste trabalho, a configuração não-comensurável é altamente instável em relação ao fenômeno de rotação entre camadas, ou seja, a energia necessária para ativar o modo de rotação entre camadas é muito menor numa configuração não-comensurável do que numa configuração comensurável. Como sugerido por Ferreira *et al.*, espera-se que essa instabilidade causada pela configuração das partículas influencie nas temperaturas de fusão T_r e T_{a1} . Recentemente, Drocco *et al.* [94] mostrou que a temperatura de fusão angular entre as camadas (T_{a2}) em uma configuração não-comensurável é menor do que essa temperatura de fusão numa configuração comensurável. Entretanto, os resultados apresentados por Drocco *et al.* [94] foram restritos ao caso $\alpha = 2$. Neste trabalho, mostra-se que esses resultados da Ref. [94] são válidos também para valores diferentes do parâmetro α . Além disso, apresenta-se a dependência da temperatura de fusão T_r e T_{a1} em relação à razão entre as cargas dos dois tipos de partículas (α) para a configuração não-comensurável.

Na Figura 34, são mostradas as temperaturas de fusão T_r e T_{a1} em função de α para

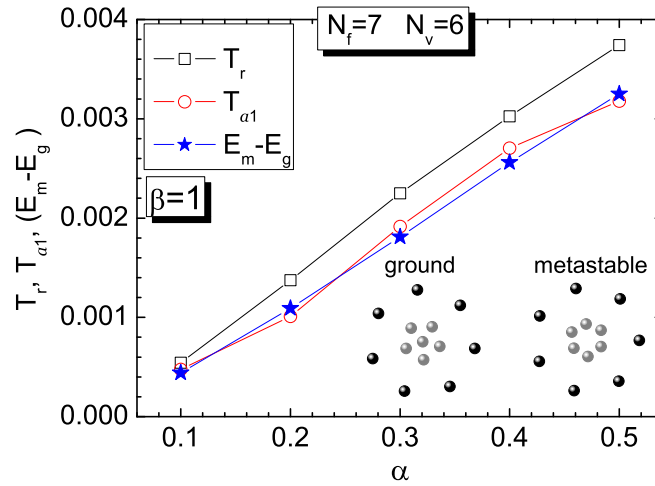


Figura 34: Temperatura de fusão radial T_r e temperatura de fusão angular das partículas da camada interna do sistema e a diferença entre a energia da configuração do primeiro estado meta-estável e da energia do estado fundamental ($E_m - E_g$) em função de α para o sistema com $N_f = 7, N_v = 6$ partículas. As configurações do estado fundamental e do estado meta-estável estão indicadas no interior da figura.

o caso da configuração não-comensurável (1,5,7). Observa-se nesta figura que T_r e T_{a1} são uma ordem de grandeza menor do que a temperatura de fusão encontrada no caso da configuração comensurável [Figura 33(b)]. Esse resultado mostra que a configuração não-comensurável facilita não apenas a rotação entre camadas termicamente ativadas, mas também as desordens angulares das partículas da mesma camada T_{a1} , e a desordem radial T_r , de cada partícula. Tais resultados são válidos para diferentes valores do parâmetro α . Observa-se também na Figura 34 que T_r e T_{a1} aumentam com o aumento do valor de α . Esse comportamento deve ser associado com o acoplamento entre os dois tipos de partículas, que é aumentado quando α aumenta, e com a diferença de energia entre a configuração fundamental e a meta-estável. Essa diferença entre a energia do estado meta-estável E_m (configuração (6,7)) e do estado fundamental E_g (configuração (1,5,7)) e suas configurações são mostrados na Figura 34, onde observa-se que o aumento da temperatura de fusão em função de α segue o aumento do valor de $(E_m - E_g)$. É importante deixar claro que nenhuma configuração meta-estável influenciou a temperatura de fusão na Figura 33(b), pois apenas um estado estável, o estado fundamental, foi encontrado para aqueles valores de α .

Até agora este trabalho limitou-se a apresentar resultados para um sistema particular com $N_f = 7$ e $N_v = 6$ partículas, mas os efeitos de comensurabilidade na transição sólido-líquido em sistemas binários também foram observados em sistemas com diferentes números de partículas. Como um exemplo, apresenta-se na Figura 35 a de-

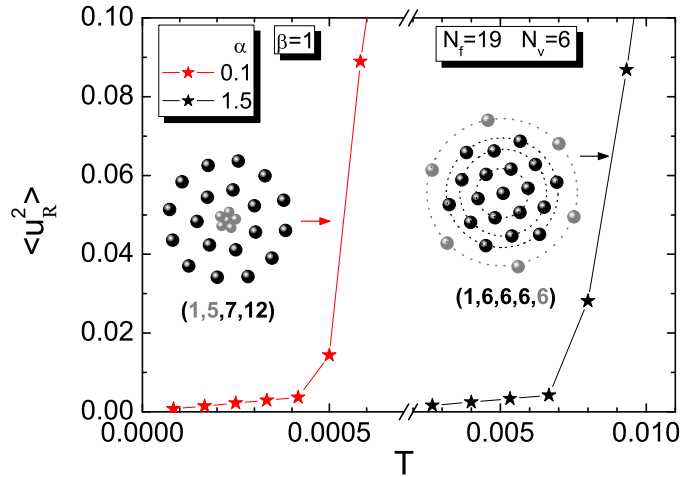


Figura 35: Deslocamento radial médio ($\langle u_R^2 \rangle$) para as configurações comensuráveis e não-comensuráveis para o sistema com $N_f = 19, N_v = 6$ partícula em função da temperatura. Configuração $T = 0$ está indicada no interior da figura, onde esferas pretas representam as partículas de referência $q_f = 1$, enquanto esferas cinzas representam partículas com carga variável $q_v = 0.1$ ou $q_v = 1.5$.

pendência do deslocamento médio radial das partículas em função de α para o sistema com $N_f = 19$ e $N_v = 6$ partículas. No interior da Figura 35 pode-se ver que, dependendo do valor do parâmetro α , esse sistema pode apresentar configuração tanto comensurável como não-comensurável. Observa-se nesta figura que a temperatura de fusão para a configuração não-comensurável ($\alpha = 0, 1$) é uma ordem de magnitude menor do que a da configuração comensurável ($\alpha = 1, 5$). Para a configuração não-comensurável $(1,5,7,12)$, consideram-se partículas internas apenas aquelas com carga variável (esferas cinzas) as quais sofrem primeiro a transição sólido-líquido. Para a configuração comensurável $(1,6,6,6,6)$, consideram-se partículas internas aquelas que possuem cargas fixas (esferas pretas), as quais são distribuídas em três camadas circulares. A razão para essa escolha é a anisotropia no processo de transição em relação aos diferentes tipos de partículas, comentada anteriormente e mostrada na Figura 32. Observa-se na Figura 36(a), para a configuração comensurável, e na Figura 36(b), para configuração não-comensurável, que o deslocamento radial médio para as partículas externas é muito menor do que o deslocamento médio para as partículas internas. Além disso, observa-se na Figura 36(a) que a temperatura de fusão é menor para a camada mais interna do sistema.

5.2.2.2 Partículas com massas diferentes

Nesta Seção apresentam-se os resultados para o caso na qual as partículas possuem diferentes massas, ou seja, $\beta \neq 1$, e utiliza-se novamente o sistema $N_f = 7$ e $N_v = 6$

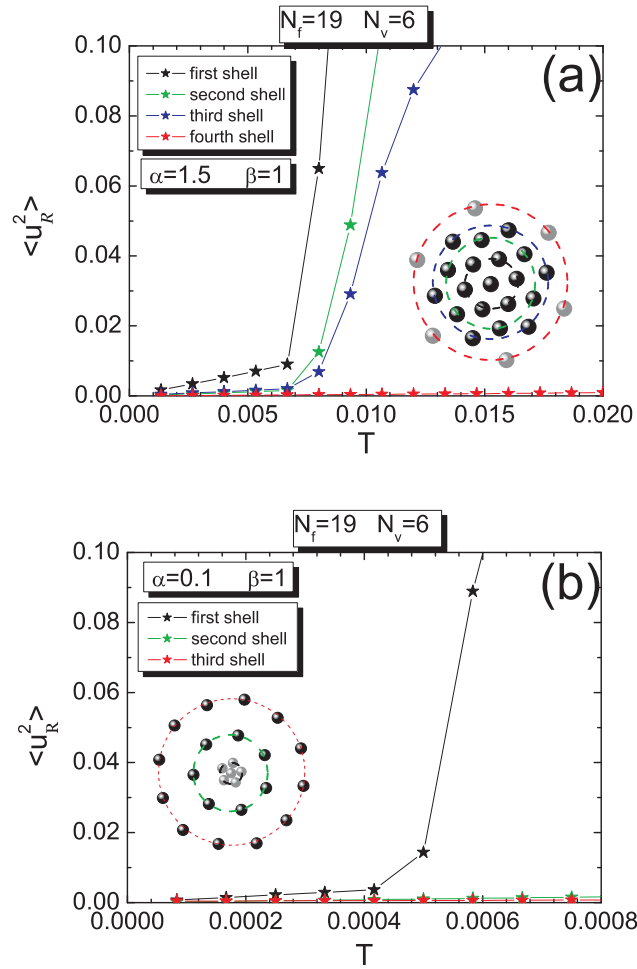


Figura 36: Deslocamento radial médio ($\langle u_R^2 \rangle$) em função da temperatura para cada camada da configuração (a) comensurável e (b) não-comensuráveis para o sistema com $N_f = 19$, $N_v = 6$ partícula. Configuração em $T = 0$ é apresentada no interior da figura. Esferas pretas representam as partículas de referência $q_f = 1$, enquanto esferas cinzas representam partículas com carga variável $q_v = 1.5$ em (a) e $q_v = 0.1$ em (b)

partículas, o qual possui agora novas configurações comensuráveis e não-comensuráveis. Além disso, consideram-se casos com $\alpha \neq 1$ e $\alpha = 1$ a fim de observar a influência da característica inercial das partículas no sistema.

Na Figura 37(a), (b) e (c) apresenta-se o deslocamento radial médio ($\langle u_R^2 \rangle$), o deslocamento angular médio das partículas da mesma camada ($\langle u_{a1}^2 \rangle$) e o deslocamento angular médio das camadas ($\langle u_{a2}^2 \rangle$), respectivamente. Essas propriedades estão apresentadas em função da temperatura para o caso $\beta = 0, 1$ onde um tipo de partícula (com massa m_f) é dez vezes mais pesada do que o outro tipo de partícula (com massa m_v). Com o propósito de enfatizar o efeito inercial nas propriedades térmicas do sistema, considera-se, neste caso, partículas com a mesma carga, ou seja, $\alpha = 1$. Pode-se observar no interior da Figura 37(a) que a configuração comensurável (1,6,6) é a configuração do estado funda-

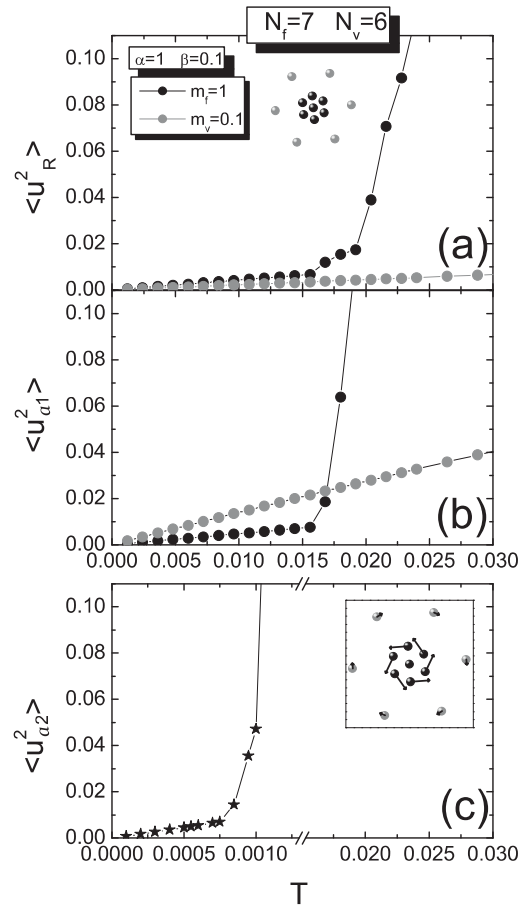


Figura 37: (a) Deslocamento radial médio ($\langle u_R^2 \rangle$), (b) deslocamento angular médio das partículas da mesma camada ($\langle u_{a1}^2 \rangle$) e (c) deslocamento angular entre as camadas ($\langle u_{a2}^2 \rangle$) para o sistema com $N_f = 7, N_v = 6$ partículas. A configuração do estado fundamental é mostrada no interior de (a). Partículas de referência ($m_f = 1$) estão representadas por esferas pretas, enquanto partículas com carga $m_v = 0.1$ estão representadas por esferas cinzas. O modo normal com a menor frequência não-nula está indicado no interior de (c).

mental do sistema. Em geral, as partículas com maior massa localizam-se na camada mais interna do sistema. Semelhante ao caso das partículas com diferentes cargas, a anisotropia da temperatura de fusão também é observada para partículas com diferentes massas, onde as partículas com maior massa, ou seja, partículas da camada mais interna, possuem uma temperatura de fusão menor do que a temperatura de fusão do outro tipo de partícula. Esse resultado é inesperado, pois se pode pensar que as partículas com maior massa necessitam de uma energia maior do que as outras partículas, ou seja, para destruir o ordenamento das partículas com maior massa seria necessário uma temperatura maior. O resultado apresentado nas Figuras 37(a) e 37(b) pode ser uma indicação que as propriedades inerciais do sistema não são importantes quando comparadas com a interação eletrostática do sistema. De fato, observa-se neste trabalho que a interação eletrostática

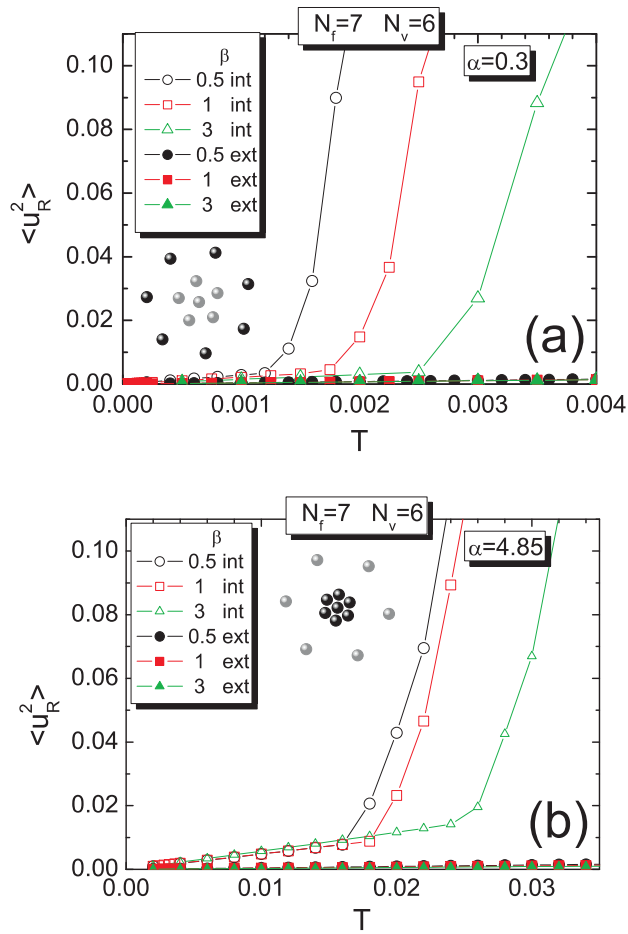


Figura 38: Deslocamento radial médio ($\langle u_R^2 \rangle$) em função da temperatura para o sistema com $N_f = 7, N_v = 6$ partículas para diferentes valores de β no caso onde (a) $\alpha = 0.3$ e (b) $\alpha = 4.85$. A configuração do estado fundamental para cada valor de α é mostrada no interior das figuras. Esferas pretas representam as partículas de referência ($q_f = 1$), enquanto esferas cinzas representam as partículas de massa $m_v = \beta$.

supera qualquer dependência inercial do processo de fusão.

Com o objetivo de verificar a importância do efeito da interação eletrostática frente ao efeito inercial das partículas, apresenta-se na Figura 38 o deslocamento radial médio $\langle u_R^2 \rangle$, para a camada interna e externa, em função da temperatura do sistema com $N_f = 7$ e $N_v = 6$ partículas, para o caso onde as partículas também têm diferentes cargas, ou seja, $\alpha \neq 1$. Como considerado anteriormente, as partículas de referência possuem cargas $q_f = 1$ e massa $m_f = 1$, e são sempre representadas por esferas pretas. O outro tipo de partícula possui carga $q_v = \alpha$ e massa $m_v = \beta$ é representado por esferas cinzas. Como regra geral, observa-se para os sistemas com $\alpha \neq 1$, os quais possuem estrutura de camadas como estado fundamental, que suas partículas com menor carga sempre se localizam na camada interna do sistema e sofrem o processo de fusão primeiro, independente da razão

entre as massas. Esse comportamento pode ser observado nas Figuras 38(a) e 38(b) para $\alpha = 0,3$ e $\alpha = 4,85$, respectivamente, para três diferentes valores do parâmetro β . Por exemplo, observa-se, no caso ($\alpha = 0,3, \beta = 0,5$) que as partículas com menor massa e menor carga sofrem fusão primeiro. Esse comportamento é esperado, pois a correlação eletrostática e o efeito inercial são menos importantes para essas partículas do que para as partículas de referência [Figura 38(a)]. Entretanto, o caso ($\alpha = 0,3, \beta = 3$) mostra que a fusão radial das partículas é principalmente determinada pelo efeito de correlação eletrostática, porque as partículas com menor carga ($q_v = \alpha$) sofrem fusão primeiro, mesmo quando possuem a maior massa. O elevado valor da carga das partículas de referência torna a interação das partículas mais forte e, com isso, torna a estrutura mais estável e mais elevada temperatura de fusão. Essa conclusão também pode ser obtida para caso $\alpha = 4,85$ [Figura 38(b)].

O efeito inercial torna-se importante apenas quando se comparam as temperaturas de fusão radial das partículas internas do sistema com a mesma razão entre as cargas (α). Pode-se observar, nas Figuras 38(a) e 38(b) para os casos $\alpha = 0,3$ e $\alpha = 4,85$, respectivamente, que a temperatura de fusão radial das partículas internas aumenta de acordo com a massa que elas possuem, ou seja, quanto maior o valor de β maior será a temperatura de fusão radial. Esse comportamento é encontrado em configurações comensuráveis [Figura 38(b)] e não-comensuráveis [Figura 38(a)]. O comportamento observado para a temperatura de fusão radial também é observado para a temperatura de fusão angular das partículas da mesma camada T_{a1} e para a temperatura de fusão angular entre as partículas de camadas diferentes T_{a2} .

5.2.3 Transição de fase estrutural termicamente induzida

Além dos comportamentos das partículas no processo de fusão discutidos até aqui, recentemente uma nova característica no processo de transição sólido-líquido foi observada para sistemas com um tipo de partícula. Nesses sistemas, nota-se uma transição de fase estrutural local em temperaturas menores do que as temperaturas de fusão do sistema [90, 74, 96]. Como mostrado nas Refs. [74, 96], essa transição depende da configuração do estado fundamental do sistema, o qual é mudado para outra com simetria maior em uma temperatura inferior à temperatura de fusão. Mostra-se nesta Seção que essa transição estrutural também é observada num sistema binário de partículas através da segregação dos dois tipos de partículas.

Como o objetivo de apresentar o efeito da transição de fase estrutural termicamente

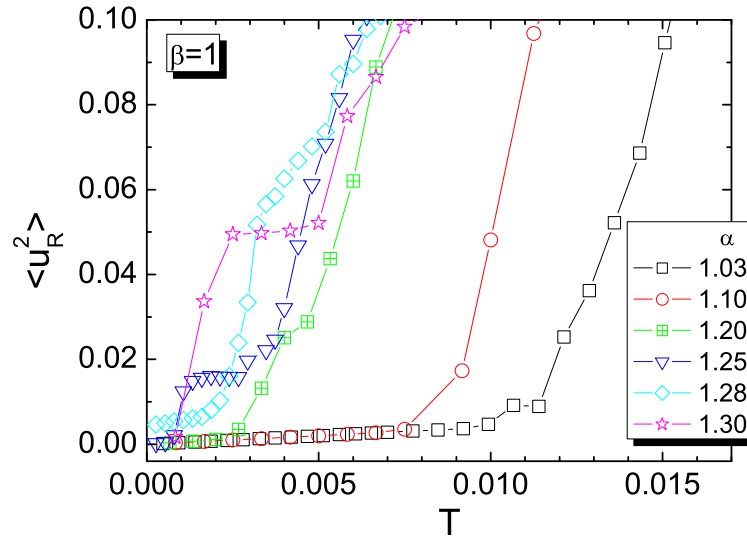


Figura 39: Deslocamento radial médio ($\langle u_R^2 \rangle$) em função da temperatura para o sistema com $N_f = 7, N_v = 6$ partículas para diferentes valores de α . Todas as partículas possuem a mesma massa ($\beta = 1$).

induzida, considera-se um sistema com $\beta = 1$ e valores de α pertencente à região III da Figura 33(a) (valores indicados por estrelas azuis) onde as partículas de cada tipo estão arranjadas de forma assimétrica no seu estado fundamental. Por esse efeito de transição ser observado facilmente em sistemas assimétricos, os valores de α e β são ideais para o estudo desse fenômeno.

Na Figura 39, o deslocamento radial médio $\langle u_R^2 \rangle$ das partículas de referência com carga ($q_f = 1$) é mostrado para $\alpha = 1, 03, 1, 1, 1, 2, 1, 25, 1, 28, 1, 3$. Os deslocamentos radiais médios do outro tipo de partícula (com $q_v = \alpha$) não são mostrados, pois os valores de $\langle u_R^2 \rangle$ para ele são uma ou duas ordens de grandeza menores do que os valores de $\langle u_R^2 \rangle$ para as partículas com cargas de referência (mostradas na Figura 39). As temperaturas de fusão radial T_r observadas na Figura 39 são comparáveis àquelas do sistema com configuração de camadas não-comensuráveis [Figura 34] indicando que em ambos os casos o sistema não é muito estável.

Nota-se, na Figura 39, o aparecimento de platôs para $\alpha = 1, 25, 1, 28, 1, 3$. Como mostrados na Refs. [74, 96] para sistemas com um tipo de partícula, esses platôs são características típicas de uma transição de fase estrutural termicamente induzida. Com o objetivo de confirmar esse resultado no sistema binário aqui apresentado, mostra-se, na Figura 40, a distância média de cada tipo de partícula em relação ao centro de confinamento $\langle r_i \rangle$ para o sistema com $\alpha = 1, 03, 1, 1, 1, 25, 1, 3$. Para $\alpha = 1, 03$ [Figura 40(a)] e $\alpha = 1, 1$ [Figura 40(b)] observa-se que a configuração é mudada apenas na temperatura de

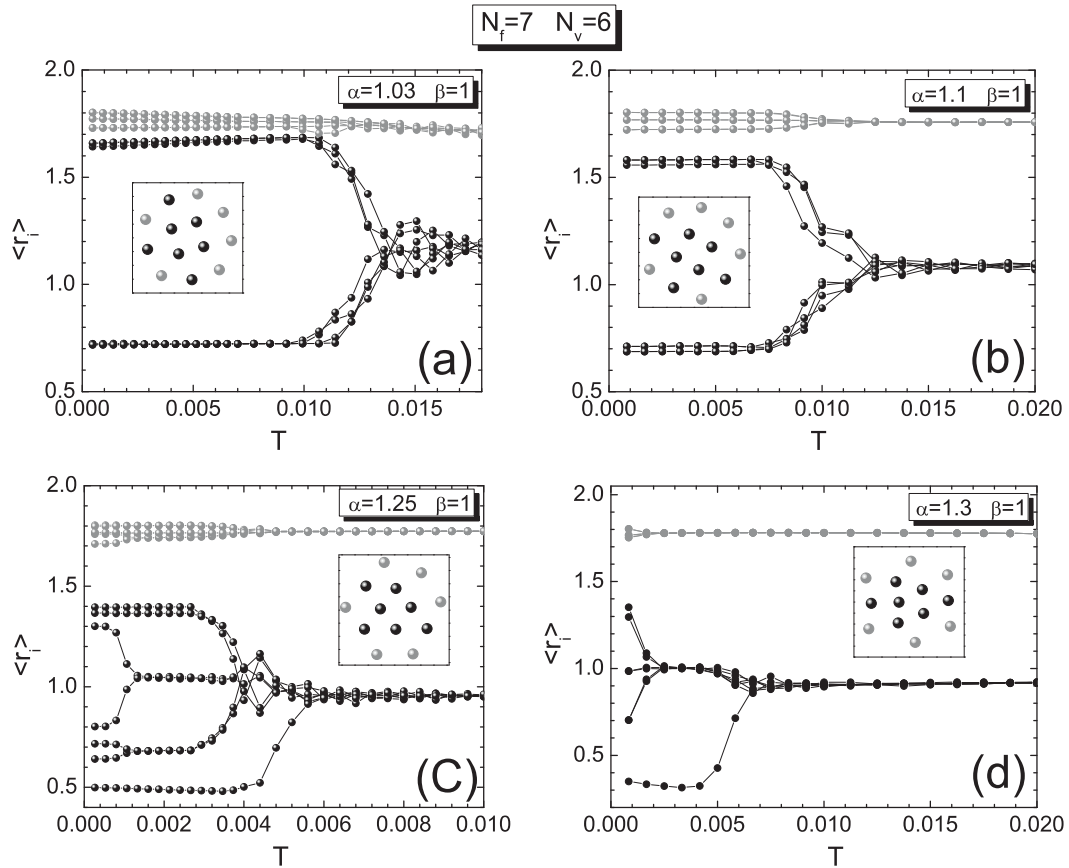


Figura 40: Distância média de cada partícula ao centro do potencial de confinamento em função da temperatura para o sistema com $N_f = 7, N_v = 6$ partículas e (a) $\alpha = 1.03$, (b) $\alpha = 1.1$, (c) $\alpha = 1.25$ e (d) $\alpha = 1.3$. Todas as partículas possuem a mesma massa ($\beta = 1$).

fusão ($T \approx 0,01$ para $\alpha = 1,03$ e $T \approx 0,009$ para $\alpha = 1,1$). No entanto, observa-se para $\alpha = 1,25$ [Figura 40(c)] e $\alpha = 1,3$ [Figura 40(d)], que a transição de fase termicamente induzida ocorre em baixas temperaturas, nas quais os valores do deslocamento radial médio $\langle u_R^2 \rangle$ são muito baixos. Esse resultado indica que as oscilações das partículas não são suficientemente grandes para destruir a ordem da estrutura da configuração delas. Observa-se, quando as Figuras 39 e 40 são comparadas, que o rápido aumento de $\langle u_R^2 \rangle$, para a formação do platô, é relacionado à modificação estrutural das partículas do sistema para uma configuração mais simétrica do que a configuração em ($T = 0$). Por exemplo, na Figura 40(c) a transição de fase estrutural termicamente induzida ocorre em $T \approx 0,001$ que coincide com o começo da formação do platô na Figura 39.

Os resultados da Figura 40 revelam outra característica interessante, que é o aumento da distância dos dois tipos de partículas com o aumento da temperatura, ou seja, partículas com menores cargas tornam-se mais confinadas na região interna do sistema enquanto as partículas com maiores cargas continuam localizadas na parte externa do

Tabela 1: Número de estados meta-estáveis (N_{meta}) para diversos valores da razão entre as cargas (α) dos dois tipos de partículas do sistemas com $N_f = 7$, $N_v = 6$ partículas.

α	N_{meta}
0.83	72
0.88	109
0.92	108
0.96	109
1.03	112
1.10	115
1.20	84
1.25	40
1.28	34
1.30	18

sistema e a igual distância do centro de confinamento. Esse efeito de “segregação termicamente induzida” é observado para todos os valores de α na região III da Figura 33(a), onde são encontradas configurações, no estado fundamental, de mistura entre os dois tipos de partículas. Esse efeito de segregação induzida é encontrado mesmo quando a diferença entre as cargas dos dois tipos de partículas (α) é muito pequena, por exemplo, para $\alpha = 1.03$ [Figura 40(a)] observa-se que após a temperatura de fusão ($T \approx 0.0135$) a distância média das partículas de referências em relação ao centro é $\langle r_i \approx 1,2 \rangle$ enquanto para as partículas do outro tipo é $\langle r_i \approx 1,7 \rangle$. Pode-se observar também que, para temperaturas menores que a temperatura de fusão, os dois tipos de partículas estão aproximadamente na mesma distância do centro do potencial de confinamento, o que indica que o sistema está em um estado de mistura, como definido na Ref. [93].

A região III da Figura 33(a) possui algumas características especiais como: (a) grande número de estados meta-estáveis quando $\alpha \approx 1$ (veja Tabela 1) e (b) configuração do estado fundamental de mistura entre as partículas dos dois tipos e caracterizado por uma distribuição assimétrica dos diferentes tipos de partículas. A partir de agora, pretende-se mostrar que apenas a característica (b) exerce alguma influência no processo de fusão.

Na Figura 41 mostra-se a temperatura de fusão radial T_r para o sistema $N_f = 7$, $N_v = 6$ partículas em função de α para valores próximos de $\alpha = 1$. Observa-se que nesse sistema a temperatura de fusão radial diminui com o aumento do valor de $|\alpha - 1|$, ou seja, quando a diferença entre as cargas de ambos os tipos de partículas aumenta. Para $\alpha \approx 1$ os dois tipos de partículas possuem quase a mesma carga. Conseqüentemente, o sistema se transforma em um sistema com $N_f + N_v = 13$ partículas quase idênticas, distribuídas em uma estrutura de camadas [68]. Essa estrutura de camadas é destruída quando $|\alpha - 1|$ aumenta. Com isso, ocorre uma quebra de simetria que reduz a estabilidade da flutuação

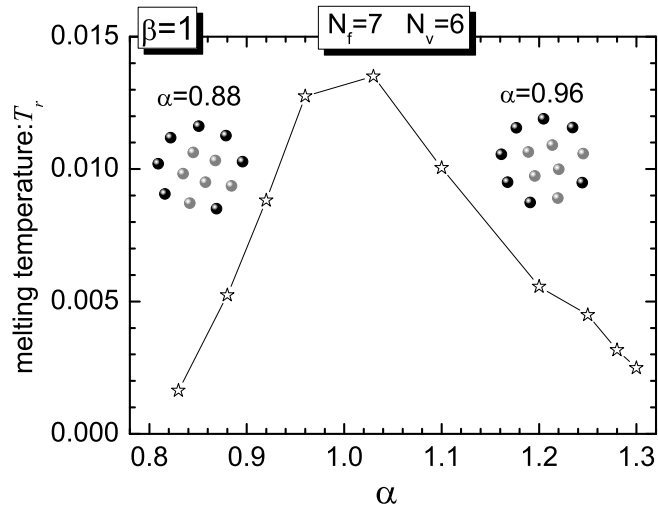


Figura 41: Temperatura de fusão radial T_r em função de α para o sistema com $N_f = 7$, $N_v = 6$ partículas. Configurações do estado fundamental estão indicadas no interior da figura.

radial do sistema completo, reduzindo, conseqüentemente, a temperatura da fusão radial.

Na Figura 41, apesar de saber que a estabilidade do sistema de partículas é relacionada com a menor frequência não nula, observa-se que o comportamento de T_r em função de α não é influenciado pela menor frequência não nula do sistema na região III da Figura 33(a). Esse aparente paradoxo pode ser esclarecido lembrando que para, $\alpha \approx 1$, o sistema possui uma estrutura de camadas não-comensurável (4,9) e um modo normal de rotação entre camadas, o qual não influencia em nada na temperatura de fusão radial do sistema. Essa estrutura de camadas não-comensurável é altamente instável em relação ao movimento de rotação entre camadas devido à pequena frequência de ativação desse modo, que é normalmente duas ordens de grandeza menor do que as frequências dos outros modos [10]. Neste trabalho, o modo de rotação entre camadas tem uma frequência de ativação $w = 6.002 \times 10^{-4}$ para $\alpha = 1$. Quando o valor de α é um pouco diferente de um, a configuração do estado fundamental continua sendo a mesma da configuração para $\alpha = 1$ [interior da Figura 41], e o menor modo normal diferente de zero continua sendo o da rotação entre camadas, porém agora com frequência duas ordens de grandeza maior do que aquela para o caso $\alpha = 1$. Essa dependência do menor modo normal diferente de zero com relação a α , na região III da Figura 33(a), influencia a temperatura de fusão entre as camadas T_{a2} . Com o objetivo de observar esse efeito, apresenta-se, na Figura 42, a dependência de T_{a2} em função de α para o aglomerado com $N_f = 7$, $N_v = 6$ partículas. Nota-se na Figura 42 que T_{a2} é muito influenciado pela dependência do menor modo normal diferente de zero em relação a α no limite $|\alpha - 1| \rightarrow 0$. Quando $\alpha \neq 1$, o acoplamento entre as camadas é aumentado em relação ao aglomerado com $\alpha = 1$ por

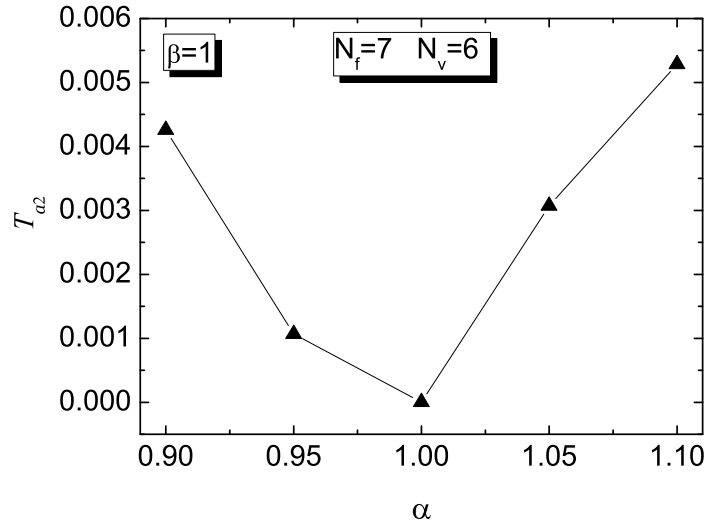


Figura 42: Temperatura de fusão angular entre as camadas T_{a2} em função de α para o sistema com $N_f = 7, N_v = 6$ partículas no limite $|\alpha - 1| \rightarrow 0$ na região III da Figura 33(a).

possuir partículas com as maiores cargas em ambas as camadas. Com isso, a rotação entre camadas termicamente induzidas necessita de mais energia, ou seja, maior temperatura para ser ativado.

5.2.4 Conclusões

Estudou-se a transição sólido-líquido em um sistema binário de partículas carregadas, as quais possuem diferentes cargas e/ou massas, confinadas por um potencial parabólico. Esse sistema apresenta diversos parâmetros, temperatura, carga e massa, os quais exercem grande influência nas propriedades da transição sólido-líquido. De modo geral, o sistema binário de partículas apresenta uma anisotropia com respeito aos diferentes tipos de partículas no processo de fusão, ou seja, partículas com menor carga sofrem fusão primeiro, independente da massa de ambos os tipos de partículas. A influência do efeito inercial no processo de fusão torna-se importante apenas quando comparamos sistemas nos quais as partículas possuem a mesma carga. Nesse caso, partículas com maior massa possuem temperaturas de fusão maiores.

A dependência das temperaturas de fusão radial (T_r), angular das partículas da mesma camada (T_{a1}) e angular entre camadas (T_{a2}), foi estudada em relação à forma do menor modo normal diferente de zero em $T = 0$, para configurações comensuráveis e não-comensuráveis. Encontra-se que (T_r) e (T_{a1}) possuem comportamentos diferentes para cada forma do modo normal. Além disso, observa-se que a rotação entre camadas termicamente ativada é observada apenas para alguns valores de α , significando que o

processo de fusão em dois passos não é universal em pequenos aglomerados de partículas carregadas.

6 Transição sólido-líquido de um sistema auto-organizado de partículas clássicas

O estudo das propriedades de sistemas auto-organizados tem sido um tema importante de pesquisa nos últimos anos. O interesse provém da possibilidade de controlar a formação de padrões, o que representa um importante impacto sobre aplicações que utilizam sistemas auto-organizados em grande escala para criar padrões específicos morfológicos. Este tipo de estrutura é observado em diversas áreas como, por exemplo, em sistemas químicos [97] e biológicos [5]. Na física, postulou-se que sistemas enquadrados nessa categoria morfológica são gerados pela competição entre potenciais de atração de curto alcance e repulsão de longo alcance [98]. Esta interação competitiva é observada em muitos sistemas, tais como em materiais magnéticos [99, 100], colóides [101, 102] e sistemas de elétron bidimensionais [103, 104]. Experimentalmente, sistemas coloidais são um dos mais estudados e a combinação com estudos teóricos pode levar ao desenvolvimento de novos materiais e ao entendimento de materiais como vidros e gels [32]. Há pouco tempo, observou-se que um tipo padrão pode surgir também em sistemas coloidais super-leves possuindo um potencial de interação repulsivo [105]. Além de apresentar uma rica variedade de estruturas e de mostrar um excelente modelo em aplicações tecnológicas, os sistemas coloidais têm a vantagem de suas interações serem facilmente controladas e poderem ser filmadas em tempo real, através de video-câmeras acopladas a um microscópio.

Motivados pelo interesse crescente no comportamento de sistemas de partículas que interagem através de um potencial competitivo de atração de curto alcance e de repulsão de longo alcance, analisa-se aqui a fusão de um sistema composto por um número finito de partículas clássicas interagindo através de um potencial composto por um termo repulsivo Coulombiano e um termo atrativo exponencial. As partículas deslocam-se em um plano 2D e são confinadas por um potencial parabólico. As configurações de mínima energia desse

sistema foram estudadas recentemente por Nelissen *et al.* [106]. Os autores observaram diferentes configurações topológicas como, por exemplo, estrutura de anéis (círculos), linhas e pequenos aglomerados de partículas. Com a observação dessas estruturas, surge o interesse no estudo da estabilidade de diferentes configurações. Dessa maneira, estuda-se nesta Seção o fenômeno de fusão dessas configurações auto-organizadas, analisando-se o efeito da interação de curto e longo alcance na estabilidade do sistema, afim de contribuir para o conhecimento de sistemas auto-organizados.

A próxima Seção descreve o modelo do sistema, indicando os parâmetros de ajustes do potencial de interação entre as partículas, além de informar as técnicas utilizadas para se obter as configurações de mínima energia. Após isso, apresentam-se os resultados indicando as temperaturas de fusão do sistema para diferentes tipos de potenciais de interação, apresentando efeitos interessantes observados nesse sistema, como efeitos de reentrância e de histerese em função da temperatura do sistema. Por fim, apresentam-se as conclusões desse trabalho.

6.1 Modelo

Estuda-se nesse Capítulo um sistema bidimensional composto por partículas clássicas interagindo através de um potencial composto por um termo Coulombiano (repulsivo) e outro termo exponencial (atrativo), confinadas por um potencial parabólico centrado na origem. O Hamiltoniano adimensional desse sistema é dado por:

$$H = \sum_{i=1}^N r_i^2 + \sum_{i>j=1}^N \left(\frac{1}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} - B e^{-\kappa|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} \right), \quad (6.1)$$

onde $r_i \equiv |\mathbf{r}_i|$ é a distância da partícula i em relação ao centro do confinamento parabólico, ou seja, é a distância de cada partícula em relação ao centro do sistema. Energia e as distâncias utilizadas nesse trabalho estão em unidades de $E_0 = (m\omega_0^2 r_0^2/2)$ e $r_0 = (2q^2/m\epsilon\omega_0^2)^{1/2}$, respectivamente. Note que o parâmetro B determina a contribuição exponencial no Hamiltoniano, responsável pela intensidade da parte atrativa do potencial de atração entre as partículas (terceiro termo na Eq. (6.1)). Assim, pode-se modelar partículas com diversas intensidades de atração, que juntamente com o potencial Coulombiano (repulsivo) fazem com que as partículas apresentem diversas estruturas. Esse sistema de partículas é estudado em função da temperatura, expressa em unidades de $T_0 = E_0/k_B$, onde k_B é a constante de Boltzmann.

As configurações de mínima energia ($T = 0$) do sistema foram obtidas através de

simulações utilizando o método de Monte-Carlo (MC) (algoritmo de Metropolis [53] juntamente com o método de Newton otimizado [10], que foram apresentados no Capítulo 2. Começando a simulação a partir de diferentes posições aleatórias, as partículas puderam atingir o estado estacionário após 10^5 passos de Monte Carlo. Simultaneamente, calculamos as frequências dos modos normais de vibração do sistema resolvendo a matriz dinâmica do sistema [10]. A configuração final é obtida quando todas as frequências dos modos normais forem positivas e suas energias não diminuam mais.

Para compreender corretamente o comportamento de cada partícula em diferentes temperaturas, estuda-se a fusão do sistema utilizando a técnica de simulação Dinâmica Molecular (MD). Com essa técnica, a temperatura do sistema foi aumentada a partir de $T = 0$, ou seja, a temperatura da configuração de menor energia foi aumentada com incrementos sucessivos δT . Em cada incremento, o sistema foi equilibrado durante 10^6 passos de simulação utilizando uma variação temporal de $\Delta t = 0,001$. Após este equilíbrio, a energia média foi calculada juntamente com a média do deslocamento radial médio quadrático das partículas (discutido na Introdução),

$$\langle u_R^2 \rangle \equiv \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (\langle r_i^2 \rangle - \langle r_i \rangle^2) / \rho^2, \quad (6.2)$$

onde ρ é a distância média entre as partículas em $T = 0$. O símbolo $\langle \rangle$ corresponde a uma média típica de $10^6 - 10^7$ passos de dinâmica molecular após o equilíbrio do sistema.

O presente sistema exibe diversas configurações complexas [106] como, por exemplo, a configuração apresentada no interior da Figura 43 que mostra aglomerados pequenos de partículas. Com a intenção de compreender a fusão localizada nesses pequenos aglomerados, analisa-se também a média do deslocamento radial e angular das partículas dos aglomerados pequenos em função da temperatura. Especificamente, calcula-se as desordem radial e angular de cada partícula em relação ao centro de massa dos pequenos aglomerados aos quais a partícula pertence. A média quadrática do deslocamento radial das partículas em relação ao centro de massa do aglomerado pequeno que a ela pertence é definida como

$$\langle u_{R(B)}^2 \rangle \equiv \frac{1}{N_c} \frac{1}{N_{sc}} \sum_{j=1}^{N_c} \sum_{i=1}^{N_{sc}} [(\langle r_j^{cm} - r_i \rangle^2) - \langle (r_j^{cm} - r_i) \rangle^2] / \rho_B^2, \quad (6.3)$$

onde N_c e N_{sc} é o número de aglomerados pequenos e o número de partículas em cada um, respectivamente. r_j^{cm} é a distância do centro de massa dos aglomerados pequenos ao centro do confinamento do sistema e ρ_B é a distância média entre as partículas do mesmo

aglomerado em $T = 0$. Dessa maneira, a diferença $\langle (r_j^{cm} - r_i)^2 \rangle$ dá a distância de cada partícula em relação ao centro de massa do seu aglomerado pequeno. Com isso, pode-se calcular o comportamento de cada partícula em relação ao “seu” aglomerado em função da temperatura, permitindo assim calcular a estabilidade local do sistema.

Estuda-se também a desordem angular de um aglomerado pequeno utilizando-se o deslocamento angular calculado localmente. Esta propriedade havia sido usada para calcular a desordem angular em todo o sistema [68, 63], mas aqui irá-se calcular a desordem angular em cada aglomerado pequeno, isto é, em relação ao centro de massa dos pequenos aglomerados de partículas, definido como

$$\langle u_{\theta(B)}^2 \rangle \equiv \frac{1}{N_c} \frac{1}{N_{sc}} \sum_{j=1}^{N_c} \sum_{i=1}^{N_{sc}} [\langle (\varphi_i - \varphi_{i1})^2 \rangle - \langle (\varphi_i - \varphi_{i1}) \rangle^2] / (\varphi_0^s)^2, \quad (6.4)$$

onde i_1 indica o vizinho mais próximo no mesmo aglomerado e $\varphi_0^s = 2\pi/N_{sc}$ é a densidade média de partículas em cada aglomerado em $T = 0$.

Devido à rotação dos pequenos aglomerados de partículas com relação ao centro do potencial de confinamento, o centro de massa de cada pequenos aglomerado é calculado em cada passo de Dinâmica Molecular, ou seja, a cada passo de simulação o centro de massa dos aglomerados pequenos é atualizado. Simultaneamente, calcula-se a desordem angular do centro de massa de cada pequeno aglomerado em relação ao centro de confinamento, que é definida como

$$\langle u_{\theta(CM)}^2 \rangle \equiv \frac{1}{N_c} \sum_{i=1}^{N_c} [\langle (\varphi_i - \varphi_{i2})^2 \rangle - \langle (\varphi_i - \varphi_{i2}) \rangle^2] / (\varphi_0^c)^2, \quad (6.5)$$

i_2 onde indica o centro de massa mais próximo e $\varphi_0^c = 2\pi/N_c$ é a densidade média de pequenos aglomerados em $T = 0$.

6.2 Transição sólido-líquido

Em primeiro lugar, analisa-se a estabilidade do comportamento dos aglomerados de partículas em função da temperatura. Para isso, consideraremos um sistema composto por $N = 20$ partículas e parâmetro $B = 8,5$ e $\kappa = 4$, que é caracterizado por pequenos aglomerados compostos por diferentes número de partículas, ou seja, dois pequenos aglomerados com quatro partículas e dois outros com seis partículas (ver no interior da Figura 43). Os aglomerados compostos por quatro partículas possuem a forma de losangos, enquanto aquele composto por seis partículas apresenta a forma de um anel de partículas.

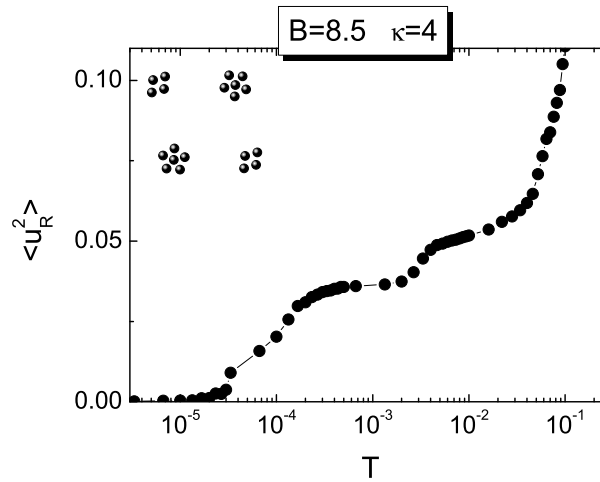


Figura 43: Média do deslocamento radial das partículas para um sistema com $N = 20$, $B = 8.5$ e $\kappa = 4$ em função da temperatura dada na escala logarítmica. No interior, apresenta-se a configuração de menor energia desse sistema.

Na Figura 43, a média do deslocamento radial $\langle u_R^2 \rangle$ das partículas em relação ao centro de confinamento é apresentada como uma função da temperatura. Como se pode observar, $\langle u_R^2 \rangle$ aumenta gradualmente com o aumento da temperatura, exibindo platôs em alguns intervalos. Estes platôs geralmente são uma indicação da presença de transições estruturais termicamente induzidas antes da fusão de todo o sistema [74]. Assim, utilizam-se as propriedades definidas na Seção 6.1 com o objetivo de estudar mais profundamente as transições estruturais e o comportamento geral do sistema antes de sua fusão.

A Figura 44 mostra a distância radial média de cada partícula em relação ao centro do potencial de confinamento $\langle r_i \rangle$ em função da temperatura (Figura 44(a)), o deslocamento radial médio das partículas em relação ao centro de massa dos aglomerados a qual pertencem $\langle u_{R(B)}^2 \rangle$ e a distância radial média das partículas em relação ao centro de massa dos aglomerados aos quais pertencem $\langle r_{i(B)} \rangle$ [Figuras 44(b) e 44(c), respectivamente]. O deslocamento médio angular das partículas em relação ao centro de massa dos aglomerados aos quais pertencem $\langle u_{\theta(B)}^2 \rangle$ e o deslocamento médio angular do centro de massa dos aglomerados de partículas em relação ao centro do potencial de confinamento $\langle u_{\theta(CM)}^2 \rangle$ em função da temperatura também são mostrados nas Figuras 44(d) e 44(e), respectivamente. Estas propriedades referem-se ao sistema com $N = 20$ partículas, $B=8,5$ e $\kappa = 4$. Nas Figuras 44(a) e 44(c), a configuração é mostrada por círculos brancos e pretos que representam as posições das partículas dos aglomerados com quatro e seis partículas, respectivamente.

Para temperaturas muito baixas ($T \lesssim 5 \times 10^{-5}$), observa-se na Figura 44(c) que as

partículas localizadas na borda dos aglomerados de seis partículas não estão na mesma distância do centro desses aglomerados, uma consequência das correlações com as outras partículas do sistema. Quando $T \approx 2 \times 10^{-4}$, a Figura 44(a) indica que a distância destas partículas ao centro do potencial de confinamento passa a ser a mesma, enquanto a Figura 44(c) sugere que a configuração em forma de anel, composta de seis partículas, permanece inalterada. Observe-se que, para $T \approx 2 \times 10^{-4}$ [primeira linha vertical pontilhada - da esquerda para a direita], partículas localizadas na borda dos aglomerados de seis partículas são re-arranjadas a fim de formar um anel circular perfeito (Figura 44(c)). Os resultados, aparentemente conflitantes, das Figuras 44(a) e 44(c) pode ser entendido devido ao fato de estarmos considerando o valor médio das distâncias das partículas ao centro do confinamento. Dessa maneira, a junção das curvas no gráfico 44(a) é uma consequência da rotação das partículas do aglomerado de seis partículas em torno do centro do aglomerado, mantendo inalterada a ordem angular dentro de cada um deles (Figura 44(d)). A rotação dos aglomerados de seis partículas torna-se possível devido a um aumento de sua simetria em relação ao seu centro.

O mesmo comportamento dos aglomerados pequenos compostos por seis partículas também é observado naqueles com quatro, porém numa temperatura maior. Quando $T \approx 3.3 \times 10^{-3}$ (segunda linha pontilhada vertical), as partículas do aglomerado com quatro partículas se arranjam num perfeito anel circular de partículas (Figuras 44(c)). Nesta temperatura, conclui-se que a ordem angular interna desse aglomerado pequeno é mantido desde $\langle u_{\theta(B)}^2 \rangle \approx 0$. Repare-se que, para $T < 3.3 \times 10^{-3}$, a estrutura em forma de losango permanece inalterada (Figura 44(c)).

Um novo aumento de temperatura provoca drástica transição estrutural nos aglomerados com seis partículas, o que pode ser observado na Figura 44(c) em $T \approx 0,01$ (terceira linha pontilhada). Neste valor de temperatura, esse gráfico mostra uma partícula do aglomerado de seis partículas movendo-se do centro para a borda deste aglomerado, enquanto a Figura 44(d) mostra que a ordem angular deste aglomerado é destruída. Contudo, a Figura 44(a) indica que a posição das partículas em relação ao centro do potencial de confinamento permanece inalterada em $T \approx 0,01$. Com estes resultados, tem-se que, após uma transição estrutural termicamente induzida, o sistema sofre uma fusão angular localizada, ou seja, uma perda da ordem angular das partículas nos aglomerados compostos por seis partículas. Este tipo de transição pode também ser identificado por um platô na curva do parâmetro $\langle u_{R(B)}^2 \rangle$ para $T > 0,01$, o que pode ser observado na Figura 44(b). Comportamentos semelhantes do parâmetro $\langle u_{R(B)}^2 \rangle$ foram detectados na Seção 5.2 desta tese e em outros trabalhos anteriores [74], mas, no caso estudado aqui, esse com-

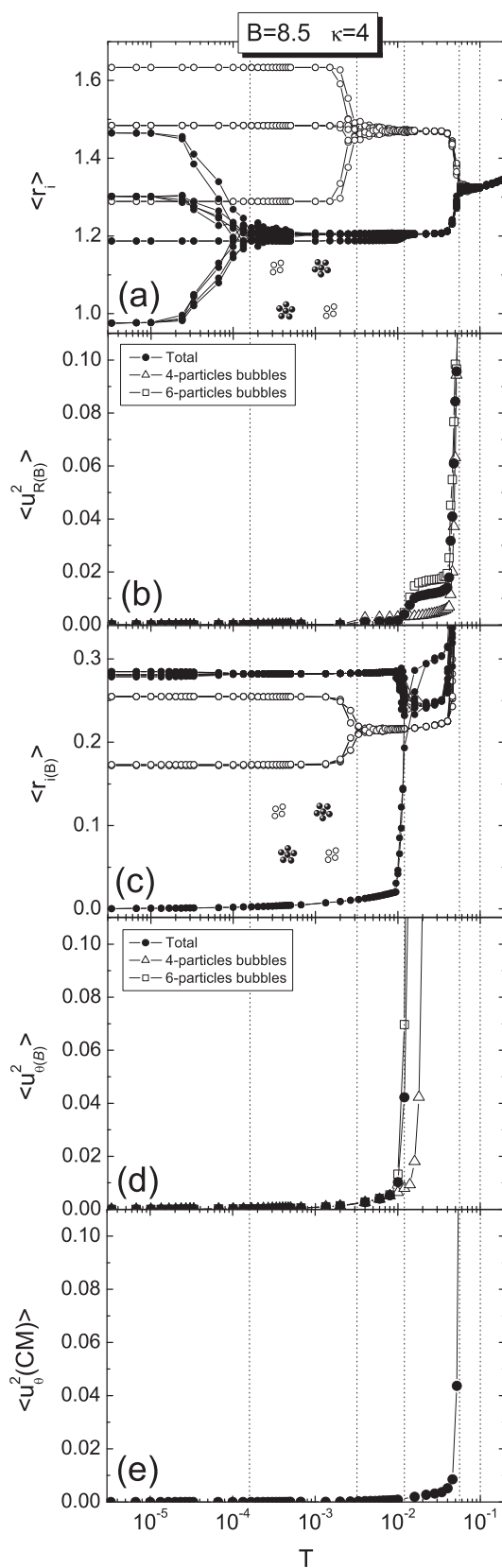


Figura 44: Influência da temperatura no (a) deslocamento radial médio de cada partícula com respeito ao centro do potencial de confinamento. (b) deslocamento radial médio, (c) distância média e (d) deslocamento angular médio na mesma camada de cada partícula em relação ao centro de massa de cada aglomerado pequeno. (e) deslocamento angular médio do centro de massa de cada pequeno aglomerado em relação ao centro do potencial de confinamento. Os símbolos em forma de círculos abertos e fechados em (a) e (c) representam as posições das partículas dos aglomerados com quatro e seis partículas, respectivamente. A temperatura é dada na escala logarítmica.

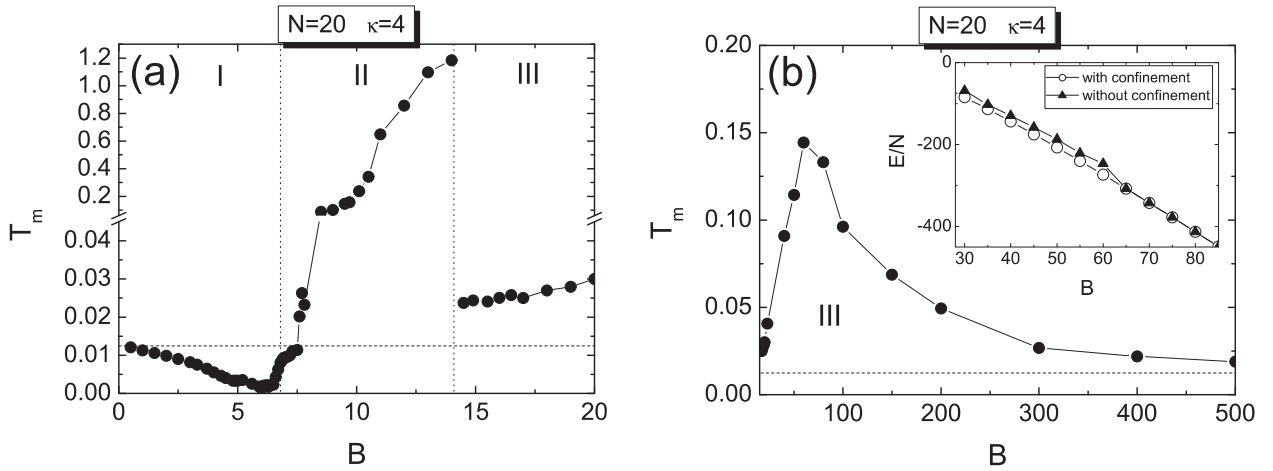


Figura 45: Temperatura da fusão total do sistema (T_m) (transição sólido-líquido) em função do parâmetro B para um sistema com $N = 20$ partículas e $\kappa = 4$. (a) para pequeno e (b) para altos valores de B . A linha horizontal pontilhada indica a temperatura de um sistema Coulombiano com $N = 20$ partículas. A energia por partícula desse sistema com e sem potencial de confinamento é mostrado no interior de (b).

portamento é consequência de uma transição estrutural em apenas uma parte de todo o sistema, ou seja, nos aglomerados de seis partículas.

Observando a Figura 44(b), pode-se concluir que os pequenos aglomerados sofrem uma transição sólido-líquido quando $T \approx 0.06$ (quarta linha pontilhada), perdendo assim toda a sua ordem angular em relação ao centro do potencial de confinamento (Figura 44(e)) e, conseqüentemente, mudando a configuração de todo o sistema (Figura 44(a)). Para $T > 0,06$, o valor do deslocamento médio quadrático aumenta rapidamente. De acordo com o critério de Lindermann, atinge o valor crítico ($\langle u_R^2 \rangle = 0,1$) em $T \approx 0.1$, demonstrando que o sistema perdeu completamente sua ordem estrutural (quinta linha pontilhada). É importante mencionar que os pequenos aglomerados perdem todo o seu ordenamento angular antes da transição sólido-líquido do sistema, indicando que a fusão deste sistema ocorre através de um processo de dois passos localizados nos pequenos aglomerados. Além disso, observou-se que a temperatura de fusão deste sistema é aproximadamente cinco vezes maior do que aquela de um sistema Coulombiano puro, composto por $N = 20$ partículas idênticas ($T_m = 0,012$). Este fato mostra que o sistema composto de pequenos aglomerados é mais estável do que um sistema Coulombiano puro.

Com o objetivo de observar a influência da configuração na temperatura de fusão do sistema, mostra-se na Figura 45 a temperatura de fusão total do sistema em função do parâmetro B de um sistema com $N = 20$ e $\kappa = 4$. A Figura 45 é dividida em três regiões diferentes associadas com a configuração em forma de anel (I e III) e outros tipos de

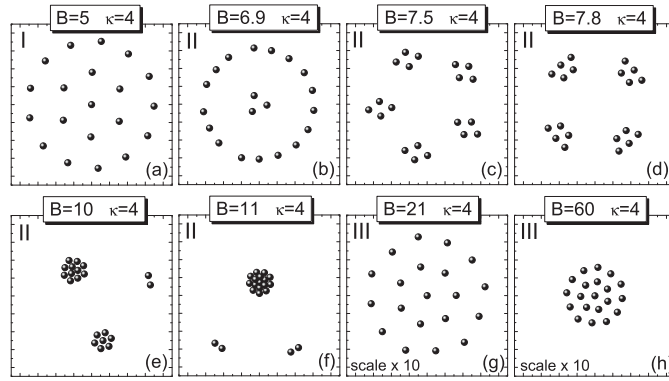


Figura 46: Configurações de mínima energia para um sistema com $N = 20$ partículas, $\kappa = 4$ e diferentes valores de B .

configurações (II), mostradas na Figura 46. Através das Figuras 45 e 46, observa-se que o sistema apresenta a forma de anel para baixos valores de B (região I), formas de pequenos aglomerados na região II, voltando a apresentar uma configuração em forma de anel na região III. A linha pontilhada horizontal na Figura 45 indica a temperatura de fusão de um sistema Coulombiano puro com $N = 20$ partículas.

A Figura 45(a) mostra que a temperatura de fusão na região I decresce com o aumento do valor de B , indicando que o sistema se torna menos estável. Esse comportamento é inesperado visto que B é a intensidade do potencial de atração de curto alcance (ver Eq. (6.1)) e poderíamos esperar que, quanto maior fosse a força de atração entre as partículas, menor seria o espaço entre elas (espaço que as partículas oscilam), sendo com isso maior sua temperatura de fusão. Este comportamento inesperado é uma consequência do fato de que o potencial de interação entre as partículas é puramente repulsivo na região I. Portanto, nesta região, quando o valor de B aumenta, diminui a contribuição repulsiva do potencial (ver Eq. (6.1)) e também da força de acoplamento entre as partículas, levando a um abrandamento dos modos normais e da temperatura de fusão.

Na região I, a temperatura de fusão diminui até $T_m \approx 0.0013$ quando $B = 6,0$, ou seja, uma ordem de magnitude menor do que a temperatura de fusão de um sistema Coulombiano puro ($T_m = 0,012$). Quando $B > 6,0$, a atração entre as partículas começa a influenciar o comportamento do sistema. Conseqüentemente, a temperatura de fusão aumenta devido ao aumento do acoplamento entre as partículas. Em $B = 6,8$, a atração domina o potencial de interação entre partículas mudando a configuração de anéis para a configuração de pequenos aglomerados (linha pontilhada entre as regiões I e II).

A região II é composta por vários tipos de configurações, algumas estão apresentadas nas Figuras 46(b-f). É importante notar que o número de pequenos aglomerados na

região II diminui com o aumento de B . Isto é consequência do fato de a repulsão entre as partículas diminuir em função desse parâmetro (ver Eq. (6.1)), aumentando assim o número de partículas que podem ocupar um pequeno aglomerado de partículas, diminuindo o número de aglomerados e, por conseguinte, aumentando a distância entre eles em função de B . Como consequência, a energia necessária para uma partícula ultrapassar a barreira de potencial entre os aglomerados aumenta em função de B , aumentando assim a temperatura de fusão do sistema tal como mostrado na região II da Figura 45 (a). A temperatura de fusão na região II continua aumentando em função de B até $B = 14$ (linha pontilhada entre as regiões II e III). Para esse valor de B , a temperatura de fusão do sistema é $T_m = 1,18$, ou seja, duas ordens de grandeza mais elevada do que a temperatura de fusão do sistema Coulombiano puro, confirmando, assim, que o sistema composto por pequenos aglomerados são mais estáveis do que um sistema Coulombiano. Em $B = 14$, o sistema muda de estrutura e volta a exibir uma configuração circular, indicando que a força de atração entre as partículas é suficientemente grande para todas as partículas se localizarem em apenas um aglomerado. Uma vez que não existem pequenos aglomerados presentes, e, portanto, nenhuma barreira de potencial para as partículas superarem, a temperatura de fusão diminui drasticamente, ao mesmo tempo que o sistema muda sua configuração, como mostrado na Figura 45(a).

Na região III, um interessante comportamento da curva da temperatura de fusão pode ser observada. As Figuras 45(a-b) mostram que a temperatura de fusão aumenta gradualmente em função de B até $B = 60$ quando ela começa a diminuir assintoticamente. É importante observar que esse comportamento da temperatura de fusão ocorre quando o sistema apresenta uma estrutura em forma de anel, ou seja, quando a temperatura de fusão do sistema mostra uma grande variação de comportamento para uma mesma estrutura. Como observado na região II, a temperatura de fusão aumenta na região III pela diminuição da repulsão entre as partículas, diminuindo assim o seu tamanho devido à influência do potencial de confinamento. Pode-se observar a influência do parâmetro B no tamanho do sistema observando as Figuras 46(g) e (h) que revelam duas configurações da região III na mesma escala. Quando $B = 60$, o tamanho do sistema é tão pequeno que o potencial de confinamento não é mais tão relevante, ou seja, é relativamente fraco para comprimir o sistema. Dessa maneira, o sistema torna-se internamente estabilizado unicamente devido ao potencial entre as partículas. A barreira de potencial, que impede o salto das partículas entre os anéis de partículas, diminui com o aumento do parâmetro B , diminuindo a temperatura fusão do sistema. A fim de confirmar que o potencial de confinamento não influencia o sistema quando $B > 60$, mostra-se no interior da Figura

45(b), a menor energia por partícula para o sistema descrito pela Eq. (6.1) com e sem a influencia do potencial de confinamento para $N = 20$ e $\kappa = 4$. Como pode ser observado, a energia desses dois sistemas, com e sem potencial de confinamento, torna-se a mesma em torno de $B = 60$, confirmando que o sistema de partículas não é mais influenciado pelo potencial de confinamento em $B > 60$.

Foi verificado que o comportamento geral da temperatura de fusão total do sistema (T_m), mostrado na Figura 45 (a e b) para o sistema com $N = 20$ partículas, também foi observado para $N = 10, 30, 40$ e 50 partículas, para diferentes valores do parâmetro B .

6.3 Estabilidade das estruturas

Recentemente, sistemas de partículas coloidais exibiram vários comportamentos novos e interessantes, tais como comportamento re-entrante da estrutura do sistema [95, 101, 107, 60] e o fenômeno de histerese [108]. Nesta Seção, mostra-se que, para uma específica interação de curto alcance, o sistema estudado aqui exibe comportamentos re-entrantes e fenômeno de histereses como uma função da temperatura.

6.3.1 Fenômeno Reentrante

Nesta Subseção, analisa-se o comportamento detalhado de um sistema contendo $N = 20$ partículas com parâmetros $B = 7$ e $\kappa = 4$ em função da temperatura. A Figura 47(a) mostra a influencia da temperatura do sistema no deslocamento médio quadrático radial $\langle u_R^2 \rangle$ das partículas. Quando a temperatura aumenta de $T = 0$ para $T = 0,003$, o valor de $\langle u_R^2 \rangle$ aumenta consideravelmente até que se estabiliza em um certo valor e permanece praticamente constante até $T = 0.0053$ (linha tracejada). Para $T > 0.0053$, observa-se que o valor de $\langle u_R^2 \rangle$ diminui rapidamente antes de aumentar drasticamente, indicando a fusão do sistema. Este comportamento re-entrante foi observado tanto em estudos experimentais [101, 107] como em estudos teóricos [60, 95], o que se deve, no sistema estudado aqui, a um aumento da estabilidade de todo o sistema, causado por um aumento da simetria da configuração do sistema. Em outras palavras, o valor do deslocamento médio radial diminui após $T = 0.0053$ como um resultado da mudança na configuração do sistema.

Com a finalidade de confirmar que o comportamento re-entrante observado anteriormente é causado por uma mudança na configuração do sistema, mostra-se, na Figura 47(b), a posição das partículas em relação ao centro do potencial de confinamento poten-

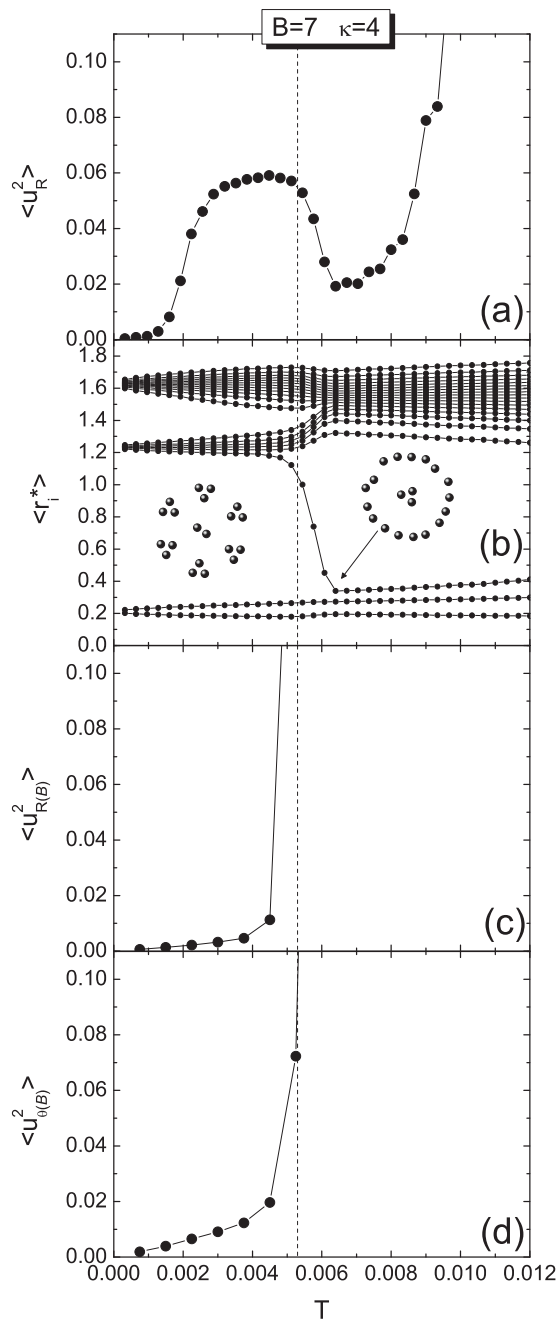


Figura 47: (a) Deslocamento médio radial das partículas ($\langle u_R^2 \rangle$), (b) média da distância de cada partícula ao centro do sistema, (c) deslocamento radial médio e (d) deslocamento angular médio com respeito ao centro de massa dos aglomerados pequenos para os sistemas com $N = 20$, $B = 7$ e $\kappa = 4$.

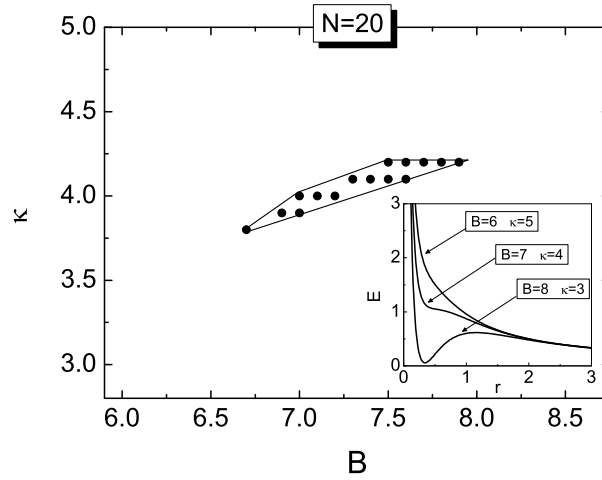


Figura 48: Diagrama de fase dos parâmetros (B, κ) mostrando os valores onde o comportamento re-entrante foi observado para o sistema com $N = 20$ partículas. O perfil do potencial de interação para alguns valores relevantes de (B, κ) é mostrado no interior.

cial em função da temperatura do sistema. Especificamente, em cada passo de simulação do método de Dinâmica Molecular (MD), organiza-se a distância de cada partícula de tal forma que $r_1, r_2, r_3, \dots, r_N$ correspondam à primeira, segunda, terceira, ..., n-ésima partícula mais próxima do centro do sistema, respectivamente. Após isso, calcula-se a média de cada distância $\langle r_i^* \rangle$ para cada temperatura, e apresenta-se em função da temperatura na Figura 47 (b). Como se pode ver, o sistema permanece com a configuração de pequenos aglomerados de $T = 0$ até $T = 0.0053$. Nomeando essa configuração como $(2, 6(3)^B)$, significa que há um anel com 2 partículas e 6 pequenos aglomerados com 3 partículas cada um (ver a configuração no interior esquerdo da Figura 47(b)). Em $T > 0.0053$, uma partícula deixa a borda e move-se para o centro do sistema. Dessa maneira, a configuração muda de $(2, 6(3)^B)$ para uma estrutura em forma de anel $(3, 17)$, significando que há um círculo contendo 3 partículas e outro com 17 partículas. Observe, a partir das Figuras 47(a) e 47(b), que o valor do deslocamento médio radial das partículas diminui quando ocorre mudança de configuração de $(2, 6(3)^B)$ para $(3, 17)$, e aumenta rapidamente quando a temperatura aproxima-se da temperatura de fusão da configuração em forma de anel. Portanto, pode-se concluir que a mudança de configuração é uma transição estrutural que estabiliza o sistema. Esta transição ocorre antes da fusão total do sistema considerando assim ser ela uma transição de fase termicamente induzida. Este interessante fenômeno foi observado em diversos estudos anteriores [96, 90, 74]. Porém, no caso estudado aqui, é resultado do aumento da desordem nos pequenos aglomerado do sistema quando a temperatura aproxima-se $T = 0.0053$.

A fim de compreender melhor a desordem local das partículas, apresenta-se, nas Fig-

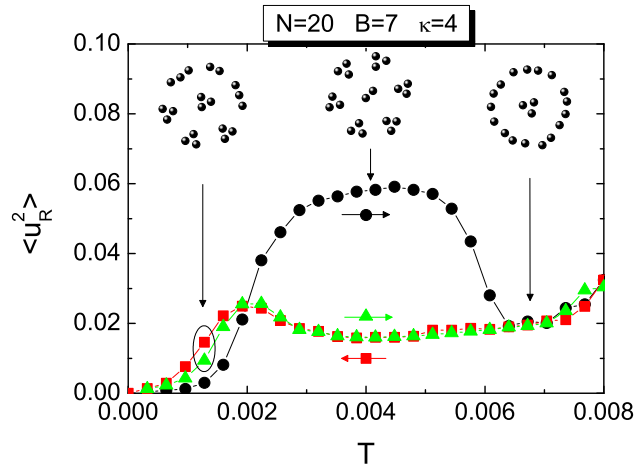


Figura 49: Deslocamento radial médio para um aglomerado com $N = 20$, $B = 7$ e $\kappa = 4$ em função de um aumento de temperatura (círculos pretos e triângulos verdes) e de um decréscimo da temperatura (quadrados vermelhos).

uras 47(c) e 47(d), a média do deslocamento radial e a média do deslocamento angular das partículas dos pequenos aglomerados em função da temperatura, respectivamente. Pode-se ver que tanto a média do deslocamento radial como o deslocamento angular das partículas aumentam simultaneamente em cada aglomerado quando a temperatura se aproxima de $T = 0,0053$ (linha pontilhada). A flutuação térmica torna possível que uma partícula supere a barreira de potencial, entre as duas partículas centrais e os aglomerados, permitindo deslocar-se para o centro e, conseqüentemente, mudando a configuração do sistema de $(2, 6(3)^B)$ para $(3, 17)$.

O comportamento re-entrante observado anteriormente foi encontrado para vários valores de κ e B , incluídos na região de um diagrama de fase mostrado na Figura 48. Observou-se que esta característica interessante é resultado do perfil do potencial de interação entre as partículas, ilustrado no interior da Figura 48 para alguns valores de B e κ . Pode-se observar que o potencial de interação entre as partículas do sistema com $B = 7$ e $\kappa = 4$ não é tão repulsivo como o do sistema com $B = 6$ e $\kappa = 5$, nem tão atrativo como aquele com $B = 8$ e $\kappa = 3$. Dessa maneira, os sistemas que possuem valores de B e κ próximos de 7 e 4, respectivamente, são ideais para apresentarem um efeito re-entrante. Isso é devido à característica das partículas do sistema com $B = 7$ e $\kappa = 4$ serem fracamente acopladas, permitindo que superem a barreira de potencial quando temperatura é aumentada, provocando, assim, uma transição de fase estrutural termicamente induzida.

O efeito re-entrantes apresentado para o sistema com $N = 20$ partículas também foi observado em outros sistemas com diferentes valores de partículas, como, por exemplo,

para $N = 30$ partículas. O comportamento geral de $\langle u_R^2 \rangle$ mostrado na Figura 47 (a) também foi encontrado no sistema com $N = 30$ partículas, mas agora para uma região diferente do diagrama (κ, B) , bem como transições estruturais termicamente induzidas.

6.3.2 Histerese

A Figura 49 mostra o que acontece com a média do deslocamento radial de cada partícula ($\langle u_R^2 \rangle$) quando a temperatura é diminuída depois que o sistema muda a sua configuração para $(3, 17)$ para o caso com $N = 20$, $B = 7$ e $\kappa = 4$. Especificamente, calcula-se a média do deslocamento radial quando a temperatura é aumentada a partir de $T = 0$ até $T = 0.008$ (círculos sólidos). Em $T = 0,008$, o sistema ainda não atingiu a temperatura de fusão, mas exibe uma configuração diferente daquela apresentada em $T = 0$. A partir daí, a temperatura é diminuída até $T = 0$ (quadrados vermelhos) e aumentada novamente até $T = 0.008$ (triângulos verdes). Repare-se em $T = 0,008$, que o sistema exibe uma configuração diferente da configuração de equilíbrio ($T = 0$) e que o comportamento da $\langle u_R^2 \rangle$ é bem diferente quando a temperatura é diminuída, indicando que o sistema ficou “preso” em uma configuração meta-estável. Este fenômeno é muito interessante pois mostra que o sistema exibe um efeito de histerese na média do deslocamento radial das partículas, em função da temperatura, quando se diminui a temperatura após uma transição termicamente induzida, ou seja, depois de uma mudança na configuração do sistema. Este comportamento interessante é uma consequência do fato de que a configuração $(3, 17)$ é estável, embora tenha uma energia potencial maior do que a da configuração $(2, 6(3)^B)$, e está separada da configuração $(2, 6(3)^B)$ por uma alta barreira de energia, ou seja, separadas por um ponto de sela.

Com o intuito de observar o perfil da energia potencial entre as configurações $(3; 17)$ e $(2, 6(3)^B)$, movimenta-se uma partícula da extremidade da configuração $(2, 6(3)^B)$ em $T = 0.0045$ em direção ao centro, permitindo, ao mesmo tempo, que todas as outras partículas possam se movimentar livremente nas suas posições de equilíbrio. Dessa maneira, calcula-se a média da energia por partícula do sistema em função da posição da partícula que está sendo movimentada [Figura 50]. Neste caso, usa-se a técnica de simulação Monte Carlo (MC) a fim de obter as configurações de equilíbrio, assim como calcular a média da energia por partículas sobre vários passos MC (cerca de 10^7). Esta média de energia por partícula é mostrada na Figura 50 em função da distância da partícula que está sendo movimentada (círculo aberto no interior da figura onde ela se movimenta ao longo da linha tracejada) em relação ao centro do potencial de confinamento.

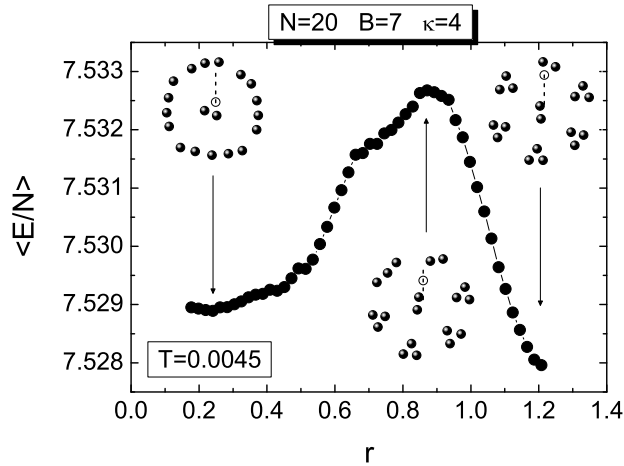


Figura 50: Energia média por partículas em função da distância da partícula selecionada (para ser movida) ao centro do sistema (partícula indicada por um círculo aberto) para o sistema com $N = 20$ partículas, $B = 7$, $\kappa = 4$ e temperatura fixa $T = 0.0045$. A configuração para três valores da distância da partícula selecionada é mostrada no interior assim como a trajetória da partícula selecionada (linha tracejada).

Observa-se na Figura 50 que a média da energia por partícula aumenta drasticamente quando a partícula selecionada é movida a partir de $r = 1,2$ para $r = 0,9$. Logo após, a média de energia por partícula do sistema diminui continuamente até $r \approx 0,3$, permanecendo praticamente constante até $r = 0,17$. A configuração $(3;17)$ é observada quando $r = 0,21$. Note-se que a configuração $(3,17)$ foi a segunda configuração estável com a mais baixa energia de toda a simulação. Assim, podemos concluir que, quando se eleva a temperatura da configuração $(2,6(3)^B)$, de maneira que a energia térmica dada ao sistema seja suficiente para uma partícula ultrapassar a barreira de potencial ($T = 0,007$), o sistema muda a sua configuração para a estrutura $(3;17)$, ficando “preso” nesta configuração meta-estável. Dessa maneira, o sistema se mantém nesta configuração mesmo quando a temperatura é diminuída para $T = 0$.

6.4 Conclusão

No presente trabalho foi investigada a influência da temperatura em um sistema composto por partículas clássicas, interagindo através de um potencial atrativo no curto alcance e repulsivo no longo alcance, confinadas por um potencial parabólico. Esse sistema mostrou diversos comportamentos não-triviais em função da temperatura. Observou-se que ocorre uma fusão localizada nos pequenos aglomerados do sistema antes da fusão do total do sistema, indicando que a fusão deste sistema ocorre em um processo composto por duas etapas. Além disso, o sistema estudado aqui exibiu transições estruturais termi-

camente induzidas antes da fusão completa do sistema. A curva da temperatura de fusão em função do parâmetro B apresentou diversos comportamentos. Em geral, observou-se que a temperatura de fusão diminui em função de B em sistemas onde a interação entre as partículas é completamente repulsiva, e aumenta em sistema compostos por pequenos aglomerados. Observou-se que o potencial de confinamento não influencia a temperatura de fusão de sistemas com altos valores do parâmetro B .

A média do deslocamento radial das partículas $\langle u_R^2 \rangle$ mostrou um comportamento re-entrante em função da temperatura. Observou-se que este comportamento é consequência de uma transição estrutural termicamente induzida, que estabiliza o sistema antes de sua total fusão. Esta transição estrutural ocorre devido ao rápido aumento da desordem nos pequenos aglomerados do sistema. Além disso, o comportamento re-entrante desse sistema foi observado para um conjunto restrito de valores de B e κ que definem o tipo de interação entre as partículas. Esses valores foram mostrados em um diagrama de fase no espaço (κ, B) . Efeito de histerese foi observado na estrutura e no comportamento dinâmico do sistema em função da temperatura. Foi demonstrado que esse comportamento é consequência da existência de uma grande barreira de energia entre duas configurações estáveis.

7 Conclusões e Perspectivas

Na presente tese, foram investigadas as propriedades estruturais, dinâmicas e térmicas de sistemas bidimensionais de partículas clássicas. A princípio, estudou-se as estruturas estáveis de um sistema constituído, por um número finito de dipolos magnéticos sob influência de um campo magnético aplicado paralelamente ao plano das partículas. Portanto, o primeiro passo dado no sentido de investigar as propriedades estruturais desse sistema foi o estudo da configuração de mínima energia em função do momento de dipolo das partículas e da intensidade do campo magnético externo. Especificamente, quando o momento de dipolo das partículas é aumentado, na ausência de um campo magnético, a estrutura hexagonal, que é a configuração de menor energia de um sistema de partículas sem momentos dipolares, foi deformada a fim de aumentar a simetria da estrutura do sistema, ou seja, as partículas organizaram-se em anéis quando o momento de dipolo das partículas aumentou. Quando um campo magnético foi aplicado, encontraram-se diversas configurações em função do momento de dipolo das partículas como, por exemplo, configurações em forma de cadeias e na forma de Y, anteriormente observadas em trabalhos experimentais de sistemas infinitos de partículas. Sob a influência do campo magnético, observou-se que o sistema muda a sua simetria circular para aquela em forma de cadeia de partículas, mostrando que a interação dipolar, sob influência de campo magnético, domina sobre o potencial de confinamento. Além disso, o sistema apresentou uma configuração especial, denominada estrutura em forma de 2Y, que ocorre quando duas configurações em forma Y se conectam. O aparecimento dessa estrutura foi atribuído à elevada densidade em uma direção, devido ao equilíbrio entre o potencial de confinamento e o campo magnético aplicado no sistema. A influência de diversos valores do campo magnético também foi estudada. Neste caso, o sistema apresentou uma interessante mistura de estruturas de cadeias e anéis de partículas para alguns valores do campo magnético.

As frequências dos modos normais também foram analisadas em função do momento do dipolo e/ou do campo magnético. As oscilações de vibração e rotação das partículas,

associadas com a menor frequência não-nula (MFN), foram estudadas em detalhes. No caso sem o campo magnético, todas as frequências, excetuando aquelas associadas com a oscilação do centro de massa e da rotação de todo o sistema, aumentam em função do momento de dipolo das partículas. Além disso, verificou-se que o comportamento da MFN também é determinado pela oscilação angular das partículas, onde a partícula central, da estrutura hexagonal apresenta a amplitude de rotação mais elevada. Por isso, o movimento rotacional das partículas mostra-se muito importante para determinar o comportamento do modo MFN e, conseqüentemente, prever a estabilidade do sistema. Na presença de um campo magnético, verificou-se que, além da maioria das frequências, a frequência de rotação do sistema também aumenta em função do momento de dipolo das partículas. Neste caso, apenas a frequência associada ao modo normal do centro de massa permanece constante. Foi observado que o campo magnético induz uma estrutura em forma de cadeia de partículas, mas não produz qualquer efeito sobre a direção de oscilação das partículas. No entanto, na estrutura hexagonal, as partículas com maior amplitude de rotação estão agora localizadas na borda do sistema. Quando o campo magnético é variado, as frequências permanecem praticamente inalteradas, exceto aquelas associadas, com a rotação de todo o sistema que altera o seu valor em função do campo magnético devido a mudança de simetria do sistema.

Em Capítulo subsequente, estudou-se numericamente as diferentes configurações e espectros dos modos normais de vibração de um sistema verticalmente acoplado $2D$ de partículas clássicas confinadas por uma distribuição de cargas não uniforme. Como exemplo, as cargas foram consideradas pontuais. As propriedades foram analisadas em função da separação entre os planos de cargas e da intensidade do potencial de confinamento. Mostrou-se um diagrama de fase indicando os tipos de transições sofridas pelo sistema, ou seja, primeira ou segunda ordem. Observou-se que essas transições estruturais delimitam regiões em que o sistema apresenta configurações simétricas e assimétricas algumas delas associadas a uma desvinculação (evaporação) de uma partícula. Além disso, observou-se que o sistema possui a capacidade de sobrecarregar-se, ou seja, tornar-se iônico, permanecendo estável. Essa característica se deve a blindagem da interação entre as partículas de planos distintos. Mostrou-se que o espectro das frequências dos modos normais é muito sensível à simetria da configuração de mínima energia e às transições estruturais sofridas pelo sistema. Em geral, as frequências dos modos normais se tornaram mais degeneradas na presença de configurações de equilíbrio assimétricas. Além disso, observou-se também que o espectro de frequências apresenta comportamentos específicos de acordo com o tipo de transição estrutural sofrida pelo sistema.

Posteriormente, estudou-se a estabilidade de sistemas de partículas com relação à sua temperatura. O comportamento das partículas em função da temperatura de sistema bidimensionais abrange uma combinação de fenômenos bem diferentes. Com o aumento da temperatura, um conjunto de partículas pode se comportar diferente de outro conjunto e até mesmo uma partícula pode sair de sua posição de equilíbrio, mudando assim a estabilidade do sistema. Com a finalidade de estudar o comportamento das partículas em temperatura diferente de zero, apresentou-se uma introdução de algumas propriedades utilizadas para caracterizar os sistemas estudados nesta tese em função da temperatura. Dessa maneira, estudou-se primeiramente a transição sólido-líquido em um sistema binário de partículas carregadas, as quais possuem diferentes cargas e/ou massas, confinadas por um potencial parabólico. Esse sistema apresentou diversos parâmetros, temperatura, carga e massa, que exercem grande influência nas propriedades da transição sólido-líquido. De modo geral, o sistema binário de partículas apresentou uma anisotropia com respeito aos diferentes tipos de partículas no processo de fusão, ou seja, partículas com menor carga sofrem fusão primeiro, independente da massa de ambos os tipos de partículas. A influência do efeito inercial no processo de fusão torna-se importante apenas quando comparamos sistemas nos quais as partículas possuem a mesma carga. Nesse caso, partículas com maior massa possuem temperaturas de fusão maiores.

A dependência das temperaturas de fusão radial (T_r), angular das partículas da mesma camada (T_{a1}) e angular entre camadas (T_{a2}), foi estudada em relação à forma do menor modo normal diferente de zero em $T = 0$, para configurações comensuráveis e não-comensuráveis. Encontrou-se que (T_r) e (T_{a1}) possuem comportamentos diferentes para cada forma do modo normal. Além disso, verificou-se que a rotação entre camadas termicamente ativadas se dá apenas para alguns valores da relação entre as cargas, significando que o processo de fusão em dois passos não é universal em pequenos aglomerados de partículas carregadas.

Em outro Capítulo, investigou-se a influência da temperatura em um sistema composto por partículas clássicas, interagindo através de um potencial atrativo no curto alcance, e repulsivo no longo alcance, confinadas por um potencial parabólico. Em temperatura igual a zero, esse sistema apresenta diversas estruturas formadas por grandes ou pequenos aglomerados de partículas. Em função da temperatura, esse sistema mostrou vários comportamentos não-triviais. Observou-se que ocorre uma fusão localizada nos pequenos aglomerados do sistema antes da fusão do total do sistema, indicando que a fusão deste sistema ocorre em um processo composto por duas etapas. Além disso, o sistema estudado aqui exibiu transições estruturais termicamente induzidas antes de sua

fusão completa.

A média do deslocamento radial das partículas, utilizada para estudar o sistema em função da temperatura, mostrou um comportamento re-entrante em função da temperatura. Observou-se que este comportamento é consequência de uma transição estrutural termicamente induzida, que estabiliza o sistema antes de sua total fusão. Esta transição estrutural ocorre devido ao rápido aumento da desordem nos pequenos aglomerados do sistema. Além disso, o comportamento re-entrante desse sistema foi observado para um conjunto restrito de valores dos parâmetros que definem o potencial de interação do sistema e mostrado em um diagrama de fase. Observou-se também o efeito de histerese na estrutura e no comportamento dinâmico do sistema em função da temperatura. Foi demonstrado que esse comportamento é uma consequência da existência de uma grande barreira de energia entre duas configurações estáveis.

Apesar deste trabalho representar mais uma contribuição para o entendimento das propriedades estruturais, dinâmicas e térmicas de sistemas bidimensionais de partículas clássica, também temos o objetivo de iniciar uma série de estudos, especialmente no que concerne a estruturas e dinâmicas de sistemas mais complexos. O seguinte conjunto de sugestões desponta como um passo natural a ser dado para a realização de futuros trabalhos nesta área de pesquisa:

- Durante o estudo da estrutura de partículas dipolares, admitimos temperatura zero. Assim, um próximo passo seria na direção do estudo do comportamento desse sistema de partículas em função da temperatura. Com isso, estudaremos a influência da interação dipolar na temperatura de fusão (transição sólido-líquido) do sistema e assim analisando sua estabilidade.
- Durante nosso estudo sobre partículas dipolares magnéticas, admitimos que as partículas fossem confinadas por um potencial parabólico. Alternativamente, em investigações posteriores, pretendemos introduzir outros tipos de confinamento, como parabólico e hardwall em apenas uma direção e sem confinamento, pois esses sistemas são facilmente estudados experimentalmente e utilizados aplicações tecnológicas.
- Nossa descrição das estruturas das partículas magnéticas assumiu que estas possuíam apenas interações dipolares. Contudo, pretendemos estudar as estruturas e dinâmica de partículas dipolares iônicas com a intenção de aprofundar o estudo e contribuir para o entendimento do comportamento dessas partículas que, neste caso, podem ser obtidas introduzindo-las num plasma.

APÊNDICE A – Modos Normais - Aproximação Harmônica

Os modos normais de vibração das partículas de um sistema estão diretamente relacionados com a estabilidade e deformações da configuração do sistema. De fato, Schweigert e Peeters [10] mostraram que a temperatura de fusão pode ser escrita em função da frequência dos modos normais em $T = 0$. Sabendo disso, o cálculo das frequências dos modos normais torna-se importante na caracterização de um sistema. Assim, calculou-se a frequência dos modos normais de vibração de todos os sistemas (em $T = 0$) estudados nesta tese. Nesta seção, apresenta-se o método usado na obtenção das frequências dos modos normais de partículas dipolares confinadas por um potencial parabólico o qual foi estudado em detalhes no Capítulo 3. Esse sistema foi escolhido, para ser apresentado aqui, por ser considerado o mais completo, em termos dos possíveis movimentos de seus constituintes, visto que cada partícula dipolar apresenta três graus de liberdade (x, y, θ) , enquanto que as partículas dos demais sistemas estudados em $T = 0$ apresentam apenas dois (x, y) . Pode-se considerar que o cálculo das frequências dos modos normais de vibração das partículas dipolares abrange todas técnicas necessárias para o cálculo das frequências das partículas dos outros sistemas.

O sistema proposto nessa apresentação consiste de um sistema composto por uma monocamada de N partículas interagindo entre si, através de um potencial magnético dipolar. As partículas são mantidas juntas por um potencial parabólico centrado na origem do eixo de coordenadas. Além disso, um campo magnético é também aplicado paralelo ao plano das partículas, a fim de introduzir um sentido preferencial no sistema. A energia potencial desse sistema na forma adimensional é dada por

$$H = \sum_i (\alpha r_i^2 - \boldsymbol{\mu}_i \cdot \mathbf{B}) + \sum_{i < j=1}^N \left[4 \left(\frac{1}{r_{ij}} \right)^{12} + \frac{\boldsymbol{\mu}_i \cdot \boldsymbol{\mu}_j}{r_{ij}^3} - \frac{3(\boldsymbol{\mu}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\boldsymbol{\mu}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{r_{ij}^5} \right], \quad (\text{A.1})$$

onde $\boldsymbol{\mu}_i$ é o momento dipolar das partícula i , \mathbf{r}_{ij} é o vector de separação entre as partículas i e j , $r \equiv |\mathbf{r}_i|$ é a distância da partículas ao centro do confinamento parabólico e \mathbf{B} é o campo magnético externo. Maiores detalhes sobre esse sistema são dados no Capítulo 3.

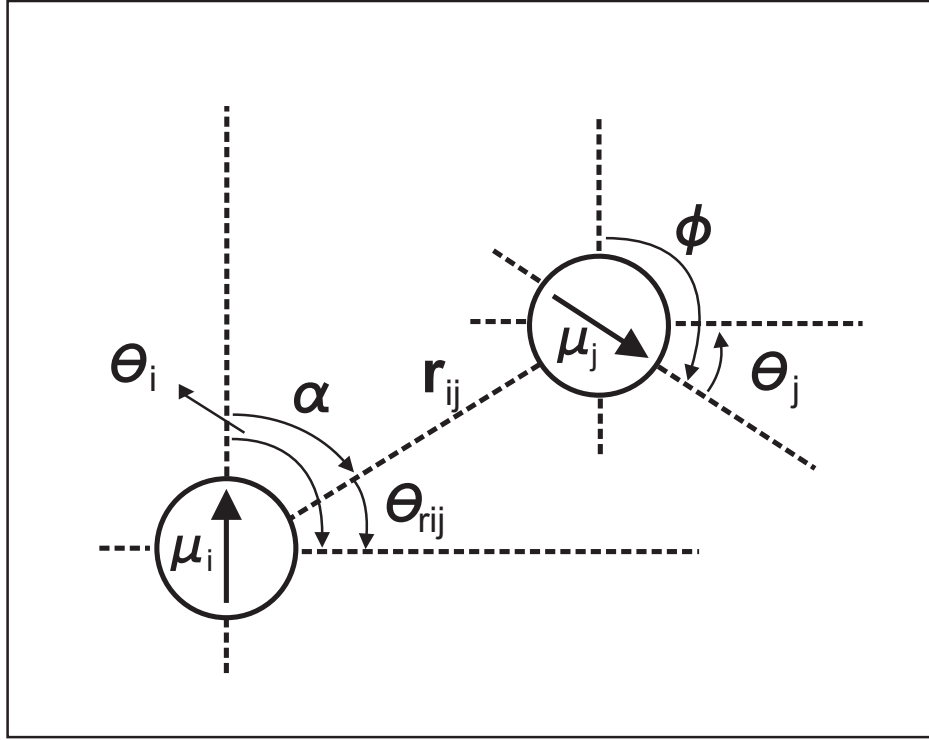


Figura 51: Definição dos ângulos utilizados no cálculo dos modos normais.

No cálculo das frequências dos modos normais de vibração, assume-se que o sistema sofre uma pequena perturbação, tirando-o ligeiramente do equilíbrio. Dessa maneira, o cálculo das frequências é realizado após a utilização dos Métodos de Monte Carlo e Newton modificado. Dessa maneira, considera-se um pequeno deslocamento das partículas em torno de suas respectivas posições de equilíbrio (x_0, y_0, θ_0) , ou seja,

$$\begin{aligned} x_i &= x_{0i} + \delta x_i, \\ y_i &= y_{0i} + \delta y_i, \\ \theta_i &= \theta_{0i} + \delta \theta_i. \end{aligned} \tag{A.2}$$

Considerando a aproximação harmônica [109], expande-se o Hamiltoniano (A.1), em tais posições, até o termo de segunda ordem em $(\delta x_i, \delta y_i, \delta \theta_i)$, ou seja,

$$H = V(x_0, y_0, \theta_0) + \frac{1}{2} \sum_{i,j} \delta \vec{R}_i \cdot \mathbf{A} \cdot \delta \vec{R}_j \tag{A.3}$$

onde $R_i = (x_i, y_i, \theta_i)$ e

$$\begin{aligned}
 A_{ij} &= \frac{\partial^2 H(R_i - R_j)}{\partial R_i \partial R_j}, & (i \neq j) \\
 A_{ii} &= \sum_{j(\neq i)} \frac{\partial^2 H(R_i - R_j)}{\partial^2 R_i}. & (i = j)
 \end{aligned}
 \tag{A.4}$$

O primeiro termo do lado direito da Eq.(A.3), $V(x_0, y_0, \theta_0)$, representa o potencial calculado na posição de equilíbrio, enquanto que o último termo representa a segunda derivada em torno de tais posições, onde $\delta \vec{R}_i = \delta x_i \hat{e}_x + \delta y_i \hat{e}_y + \delta \theta_i \hat{e}_\theta$. O termo correspondente à primeira derivada deve ser nulo pois o sistema está na posição de equilíbrio, onde a força resultante deve ser nula. Os termos correspondentes à segunda derivada nas coordenadas da Eq. (A.3) são explicitamente mostrados a seguir utilizando a definição dos ângulos entre os dipolos apontados na Figura 51.

Para ($i \neq j$), tem-se

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial^2 H}{\partial x_i \partial x_j} = & - \left[\frac{6 (y_i - y_j)^2 \mu^2 \cos \alpha \cos(\alpha - \phi)}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{3/2} (x_i - x_j)^4 B^2} \right] - \left[\frac{6 (y_i - y_j)^3 \mu^2 \cos(\alpha - \phi) \sin \alpha}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{3/2} (x_i - x_j)^5 B^2} \right] \\
 & + \left[\frac{6 (y_i - y_j) \mu^2 \cos(\alpha - \phi) \sin \alpha}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{3/2} (x_i - x_j)^3 B} \right] - \left[\frac{6 (y_i - y_j)^3 \mu^2 \cos \alpha \sin \phi}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{3/2} (x_i - x_j)^5 B^2} \right] \\
 & + \left[\frac{6 (y_i - y_j) \mu^2 \cos \alpha \sin \phi}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{3/2} (x_i - x_j)^3 B} \right] + \left[\frac{6 (y_i - y_j)^2 \mu^2 \sin \alpha \sin \phi}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{3/2} (x_i - x_j)^4 B^2} \right] \\
 & + \left[\frac{18 (y_i - y_j) (x_i - x_j) \mu^2 \cos(\alpha - \phi) \sin \alpha}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{5/2} (x_i - x_j)^2 B} \right] + \left[\frac{18 (y_i - y_j) (x_i - x_j) \mu^2 \cos \alpha \sin \phi}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{5/2} (x_i - x_j)^2 B} \right] \\
 & + \left[\frac{48}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^7} \right] - \left[\frac{672 (x_i - x_j)^2}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^8} \right] + \left[\frac{3 \mu^2 \cos \phi}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{5/2}} \right] \\
 & - \left[\frac{15 \mu^2 (x_i - x_j)^2 \cos(\alpha - \phi)}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{7/2}} \right] - \left[\frac{9 \mu^2 \cos \alpha \cos(\alpha - \phi)}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{5/2}} \right] + \left[\frac{45 \mu^2 (x_i - x_j)^2 \cos \alpha \cos(\alpha - \phi)}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{7/2}} \right] \\
 \frac{\partial^2 H}{\partial x_i \partial y_j} = & + \left[\frac{6 (y_i - y_j) \mu^2 \cos \alpha \cos(\alpha - \phi)}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{3/2} (x_i - x_j)^3 B^2} \right] + \left[\frac{6 (y_i - y_j)^2 \mu^2 \cos(\alpha - \phi) \sin \alpha}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{3/2} (x_i - x_j)^4 B^2} \right] \\
 & - \left[\frac{3 \mu^2 \cos(\alpha - \phi) \sin \alpha}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{3/2} (x_i - x_j)^2 B} \right] + \left[\frac{6 (y_i - y_j)^2 \mu^2 \cos \alpha \sin(\alpha - \phi)}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{3/2} (x_i - x_j)^4 B^2} \right] \\
 & - \left[\frac{3 \mu^2 \cos \alpha \sin(\alpha - \phi)}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{3/2} (x_i - x_j)^2 B} \right] - \left[\frac{6 (y_i - y_j) \mu^2 \sin \alpha \sin(\alpha - \phi)}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{3/2} (x_i - x_j)^3 B^2} \right] \\
 & - \left[\frac{9 (x_i - x_j) \mu^2 \cos(\alpha - \phi) \sin \alpha}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{5/2} (x_i - x_j) B} \right] - \left[\frac{9 (x_i - x_j) \mu^2 \cos \alpha \sin(\alpha - \phi)}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{5/2} (x_i - x_j) B} \right] \\
 & + \left[\frac{9 (y_i - y_j)^2 \mu^2 \cos(\alpha - \phi) \sin \alpha}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{5/2} (x_i - x_j)^2 B} \right] + \left[\frac{9 (y_i - y_j)^2 \mu^2 \cos \alpha \sin(\alpha - \phi)}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{5/2} (x_i - x_j)^2 B} \right] \\
 & - \left[\frac{672 (x_i - x_j) (y_i - y_j)}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^8} \right] - \left[\frac{15 \mu^2 (x_i - x_j) (y_i - y_j) \cos \phi}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{7/2}} \right] \\
 & + \left[\frac{45 \mu^2 (x_i - x_j) (y_i - y_j) \cos \alpha \cos(\alpha - \phi)}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{7/2}} \right]
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial^2 H}{\partial x_i \partial \theta_j} &= + \left[\frac{3(y_i - y_j) \mu^2 \cos \alpha \cos(\alpha - \phi)}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{3/2} (x_i - x_j)^2 B} \right] - \left[\frac{3(y_i - y_j) \mu^2 \sin \alpha \sin(\alpha - \phi)}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{3/2} (x_i - x_j)^2 B} \right] \\
 &- \left[\frac{3\mu^2 (x_i - x_j) \sin \phi}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{5/2}} \right] - \left[\frac{9\mu^2 (x_i - x_j) \cos \alpha \sin(\alpha - \phi)}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{5/2}} \right] \\
 \frac{\partial^2 H}{\partial y_i \partial y_j} &= - \left[\frac{6\mu^2 \cos \alpha \cos(\alpha - \phi)}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{3/2} (x_i - x_j)^2 B^2} \right] - \left[\frac{6(y_i - y_j) \mu^2 \cos(\alpha - \phi) \sin \alpha}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{3/2} (x_i - x_j)^3 B^2} \right] \\
 &- \left[\frac{6(y_i - y_j) \mu^2 \cos \alpha \sin(\alpha - \phi)}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{3/2} (x_i - x_j)^3 B^2} \right] + \left[\frac{6\mu^2 \sin \alpha \sin(\alpha - \phi)}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{3/2} (x_i - x_j)^2 B^2} \right] \\
 &- \left[\frac{18(y_i - y_j) \mu^2 \cos(\alpha - \phi) \sin \alpha}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{5/2} (x_i - x_j) B} \right] - \left[\frac{18(y_i - y_j) \mu^2 \cos \alpha \sin(\alpha - \phi)}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{5/2} (x_i - x_j) B} \right] \\
 &+ \left[\frac{48}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{7/2}} \right] - \left[\frac{672(y_i - y_j)^2}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^8} \right] + \left[\frac{3\mu^2 \cos \phi}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{5/2}} \right] \\
 &- \left[\frac{15\mu^2 (y_i - y_j)^2 \cos(\alpha - \phi)}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{7/2}} \right] - \left[\frac{9\mu^2 \cos \alpha \cos(\alpha - \phi)}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{5/2}} \right] + \left[\frac{45\mu^2 (y_i - y_j)^2 \cos \alpha \cos(\alpha - \phi)}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{7/2}} \right] \\
 \frac{\partial^2 H}{\partial y_i \partial \theta_j} &= - \left[\frac{3\mu^2 \cos \alpha \cos(\alpha - \phi)}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{3/2} (x_i - x_j) B} \right] + \left[\frac{3\mu^2 \sin \alpha \sin(\alpha - \phi)}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{3/2} (x_i - x_j) B} \right] \\
 &- \left[\frac{3\mu^2 (y_i - y_j) \sin \phi}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{5/2}} \right] - \left[\frac{9\mu^2 (y_i - y_j) \cos \alpha \sin(\alpha - \phi)}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{5/2}} \right] \\
 \frac{\partial^2 H}{\partial \theta_i \partial \theta_j} &= + \left[\frac{\mu^2 \cos \phi}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{3/2}} \right] - \left[\frac{3\mu^2 \sin \alpha \sin(\alpha - \phi)}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{3/2}} \right]
 \end{aligned}$$

onde

$$B = \left(1 + \left(\frac{(y_i - y_j)^2}{(x_i - x_j)^2} \right) \right),$$

$$\alpha = \theta_i - \theta_{r_{ij}},$$

$$\phi = \theta_i - \theta_j.$$

Para o caso ($i = j$), tem-se

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 H}{\partial x_i \partial x_i} &= 2 - \sum_{j=1}^N \frac{\partial^2 H}{\partial x_i \partial x_j} \\ \frac{\partial^2 H}{\partial x_i \partial y_i} &= - \sum_{j=1}^N \frac{\partial^2 H}{\partial x_i \partial y_j} \\ \frac{\partial^2 H}{\partial x_i \partial \theta_i} &= - \sum_{j=1}^N \frac{\partial^2 H}{\partial x_j \partial \theta_i} \\ \frac{\partial^2 H}{\partial y_i \partial y_i} &= 2 - \sum_{j=1}^N \frac{\partial^2 H}{\partial y_i \partial y_j} \\ \frac{\partial^2 H}{\partial y_i \partial \theta_i} &= - \sum_{j=1}^N \frac{\partial^2 H}{\partial y_j \partial \theta_i} \\ \frac{\partial^2 H}{\partial \theta_i \partial \theta_i} &= - \sum_{j=1}^N \left[\frac{\mu^2 \cos \phi}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{3/2}} \right] - \left[\frac{3\mu^2 \cos \theta \cos(\theta - \phi)}{[(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2]^{3/2}} \right] \end{aligned}$$

Os termos acima podem ser organizadas na forma matricial, como segue,

$$\mathbf{A}_{ij} = \begin{pmatrix} a_{ij}^{xx} & a_{ij}^{xy} & a_{ij}^{x\theta} \\ a_{ij}^{yx} & a_{ij}^{yy} & a_{ij}^{y\theta} \\ a_{ij}^{\theta x} & a_{ij}^{\theta y} & a_{ij}^{\theta\theta} \end{pmatrix}, \quad (\text{A.5})$$

onde (no caso $i \neq j$)

$$a_{ij}^{xx} = \frac{\partial^2 H}{\partial x_i \partial x_j}, \quad a_{ij}^{xy} = \frac{\partial^2 H}{\partial x_i \partial y_j}, \quad a_{ij}^{x\theta} = \frac{\partial^2 H}{\partial x_i \partial \theta_j}, \quad (\text{A.6a})$$

$$a_{ij}^{yx} = \frac{\partial^2 H}{\partial y_i \partial x_j}, \quad a_{ij}^{yy} = \frac{\partial^2 H}{\partial y_i \partial y_j}, \quad a_{ij}^{y\theta} = \frac{\partial^2 H}{\partial y_i \partial \theta_j}, \quad (\text{A.6b})$$

$$a_{ij}^{\theta x} = \frac{\partial^2 H}{\partial \theta_i \partial x_j}, \quad a_{ij}^{\theta y} = \frac{\partial^2 H}{\partial \theta_i \partial y_j}, \quad a_{ij}^{\theta\theta} = \frac{\partial^2 H}{\partial \theta_i \partial \theta_j}. \quad (\text{A.6c})$$

e

$$\mathbf{A}_{ii} = \begin{pmatrix} a_{ii}^{xx} & a_{ii}^{xy} & a_{ii}^{x\theta} \\ a_{ii}^{yx} & a_{ii}^{yy} & a_{ii}^{y\theta} \\ a_{ii}^{\theta x} & a_{ii}^{\theta y} & a_{ii}^{\theta\theta} \end{pmatrix}, \quad (\text{A.7})$$

onde (no caso $i = j$)

$$a_{ii}^{xx} = \frac{\partial^2 H}{\partial x_i \partial x_i}, \quad a_{ii}^{xy} = \frac{\partial^2 H}{\partial x_i \partial y_i}, \quad a_{ii}^{x\theta} = \frac{\partial^2 H}{\partial x_i \partial \theta_i}, \quad (\text{A.8a})$$

$$a_{ii}^{yx} = \frac{\partial^2 H}{\partial y_i \partial x_i}, \quad a_{ii}^{yy} = \frac{\partial^2 H}{\partial y_i \partial y_i}, \quad a_{ii}^{y\theta} = \frac{\partial^2 H}{\partial y_i \partial \theta_i}, \quad (\text{A.8b})$$

$$a_{ii}^{\theta x} = \frac{\partial^2 H}{\partial \theta_i \partial x_i}, \quad a_{ii}^{\theta y} = \frac{\partial^2 H}{\partial \theta_i \partial y_i}, \quad a_{ii}^{\theta\theta} = \frac{\partial^2 H}{\partial \theta_i \partial \theta_i}. \quad (\text{A.8c})$$

Utilizando as Eqs. (A.5) e (A.7), pode-se reescrever o último termo da Eq. (A.3) como

$$\delta \vec{R}_i \cdot A_{ij} \cdot \delta \vec{R}_j = \begin{pmatrix} \delta x_i & \delta y_i & \delta \theta_i \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} a_{ij}^{xx} & a_{ij}^{xy} & a_{ij}^{x\theta} \\ a_{ij}^{yx} & a_{ij}^{yy} & a_{ij}^{y\theta} \\ a_{ij}^{\theta x} & a_{ij}^{\theta y} & a_{ij}^{\theta\theta} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \delta x_j \\ \delta y_j \\ \delta \theta_j \end{pmatrix}$$

$$\Rightarrow \delta \vec{R}_i \cdot A_{ij} \cdot \delta \vec{R}_j = a_{ij}^{xx} \delta x_i \delta x_j + a_{ij}^{xy} \delta x_i \delta y_j + a_{ij}^{x\theta} \delta x_i \delta \theta_j \quad (\text{A.9})$$

$$+ a_{ij}^{yx} \delta y_i \delta x_j + a_{ij}^{yy} \delta y_i \delta y_j + a_{ij}^{y\theta} \delta y_i \delta \theta_j \quad (\text{A.10})$$

$$+ a_{ij}^{\theta x} \delta \theta_i \delta x_j + a_{ij}^{\theta y} \delta \theta_i \delta y_j + a_{ij}^{\theta\theta} \delta \theta_i \delta \theta_j. \quad (\text{A.11})$$

As equações de movimento para as componentes x, y e θ da i -ésima partícula são:

$$m \frac{\partial^2 \delta x_i}{\partial t^2} = - \frac{\partial H}{\partial \delta x_i}, \quad (\text{A.12a})$$

$$m \frac{\partial^2 \delta y_i}{\partial t^2} = - \frac{\partial H}{\partial \delta y_i}, \quad (\text{A.12b})$$

$$m \frac{\partial^2 \delta \theta_i}{\partial t^2} = - \frac{\partial H}{\partial \delta \theta_i}. \quad (\text{A.12c})$$

A partir das Eqs. (A.3) e (A.9), as Eqs. (A.12) podem ser reescritas como

$$m \frac{\partial^2 \delta x_i}{\partial t^2} = - \frac{1}{2} \sum_{j=1}^N (a_{ij}^{xx} \delta x_j + a_{ij}^{xy} \delta y_j + a_{ij}^{x\theta} \delta \theta_j), \quad (\text{A.13a})$$

$$m \frac{\partial^2 \delta y_i}{\partial t^2} = - \frac{1}{2} \sum_{j=1}^N (a_{ij}^{yx} \delta x_j + a_{ij}^{yy} \delta y_j + a_{ij}^{y\theta} \delta \theta_j), \quad (\text{A.13b})$$

$$m \frac{\partial^2 \delta \theta_i}{\partial t^2} = - \frac{1}{2} \sum_{j=1}^N (a_{ij}^{\theta x} \delta x_j + a_{ij}^{\theta y} \delta y_j + a_{ij}^{\theta\theta} \delta \theta_j). \quad (\text{A.13c})$$

Por se considerar as partículas oscilando harmonicamente em torno da posição de equilíbrio, assume-se então uma solução oscilatória do tipo

$$\delta \vec{R}_i(t) = \delta \vec{R}_i e^{-i\omega t}, \quad (\text{A.14})$$

onde $\delta \vec{R}_i(t) = \delta x_i(t) \hat{e}_x + \delta y_i(t) \hat{e}_y + \delta \theta_i(t) \hat{e}_\theta$ e $\delta \vec{R}_i = \delta x_i \hat{e}_x + \delta y_i \hat{e}_y + \delta \theta_i \hat{e}_\theta$.

Substituindo a Eq. (A.14) nas Eqs. (A.13), tem-se

$$\begin{aligned}
 -m\omega^2\delta x_i &= -\frac{1}{2}\sum_{j=1}^N(a_{ij}^{xx}\delta x_j + a_{ij}^{xy}\delta y_j + a_{ij}^{x\theta}\delta\theta_j), \\
 -m\omega^2\delta y_i &= -\frac{1}{2}\sum_{j=1}^N(a_{ij}^{yx}\delta x_j + a_{ij}^{yy}\delta y_j + a_{ij}^{y\theta}\delta\theta_j), \\
 -m\omega^2\delta\theta_i &= -\frac{1}{2}\sum_{j=1}^N(a_{ij}^{\theta x}\delta x_j + a_{ij}^{\theta y}\delta y_j + a_{ij}^{\theta\theta}\delta\theta_j).
 \end{aligned}$$

Essas equações podem ainda ser reescritas na seguinte forma:

$$\sum_{j=1}^N [(2m\omega^2\delta_{ij} - a_{ij}^{xx})\delta x_j - a_{ij}^{xy}\delta y_j - a_{ij}^{x\theta}\delta\theta_j] = 0, \quad (\text{A.15a})$$

$$\sum_{j=1}^N [-a_{ij}^{yx}\delta x_j + (2m\omega^2\delta_{ij} - a_{ij}^{yy})\delta y_j - a_{ij}^{y\theta}\delta\theta_j] = 0, \quad (\text{A.15b})$$

$$\sum_{j=1}^N [-a_{ij}^{\theta x}\delta x_j + a_{ij}^{\theta y}\delta y_j + (2m\omega^2\delta_{ij} - a_{ij}^{\theta\theta})\delta\theta_j] = 0. \quad (\text{A.15c})$$

As Eqs. (A.15) podem ser escritas na forma matricial. Assim sendo, o problema de encontrar as autofrequências dos modos normais de vibração do sistema é resumido ao cálculo dos autovalores da matriz derivada das Eqs. (A.15). Essa matriz é apresentada a seguir a fim de deixar claro como as Eqs. (A.15a), (A.15b) e (A.15c) são organizadas na matriz.

Forma matricial do sistema das Eqs. (A.15)

$$\begin{pmatrix}
 (2m\omega^2 - a_{11}^{xx}) & -a_{11}^{xx} & \dots & -a_{1N}^{xx} & -a_{11}^{xy} & \dots & -a_{1N}^{xy} & -a_{11}^{x\theta} & \dots & -a_{1N}^{x\theta} \\
 -a_{21}^{xx} & (2m\omega^2 - a_{22}^{xx}) & \dots & -a_{2N}^{xx} & -a_{21}^{xy} & \dots & -a_{2N}^{xy} & -a_{21}^{x\theta} & \dots & -a_{2N}^{x\theta} \\
 \vdots & \vdots & \ddots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\
 -a_{(N-1)1}^{xx} & -a_{(N-1)2}^{xx} & \dots & -a_{(N-1)N}^{xx} & -a_{(N-1)1}^{xy} & \dots & -a_{(N-1)N}^{xy} & -a_{(N-1)1}^{x\theta} & \dots & -a_{(N-1)N}^{x\theta} \\
 -a_{N1}^{xx} & -a_{N2}^{xx} & \dots & (2m\omega^2 - a_{NN}^{xx}) & -a_{N1}^{xy} & \dots & -a_{NN}^{xy} & -a_{N1}^{x\theta} & \dots & -a_{NN}^{x\theta} \\
 -a_{11}^{yx} & -a_{12}^{yx} & \dots & -a_{1N}^{yx} & (2m\omega^2 - a_{11}^{yy}) & -a_{12}^{yy} & \dots & -a_{11}^{y\theta} & \dots & -a_{1N}^{y\theta} \\
 \vdots & \vdots & \ddots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\
 -a_{(N-1)1}^{yx} & -a_{(N-1)2}^{yx} & \dots & -a_{(N-1)N}^{yx} & -a_{(N-1)1}^{yy} & \dots & -a_{(N-1)N}^{yy} & -a_{(N-1)1}^{y\theta} & \dots & -a_{(N-1)N}^{y\theta} \\
 -a_{N1}^{yx} & -a_{N2}^{yx} & \dots & -a_{NN}^{yx} & -a_{N1}^{yy} & \dots & (2m\omega^2 - a_{NN}^{yy}) & -a_{N1}^{y\theta} & \dots & -a_{NN}^{y\theta} \\
 -a_{11}^{\theta x} & -a_{12}^{\theta x} & \dots & -a_{1N}^{\theta x} & -a_{11}^{\theta y} & \dots & -a_{1N}^{\theta y} & (2m\omega^2 - a_{11}^{\theta\theta}) & -a_{12}^{\theta\theta} & -a_{1N}^{\theta\theta} \\
 \vdots & \vdots & \ddots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\
 -a_{(N-1)1}^{\theta x} & -a_{(N-1)2}^{\theta x} & \dots & -a_{(N-1)N}^{\theta x} & -a_{(N-1)1}^{\theta y} & \dots & -a_{(N-1)N}^{\theta y} & -a_{(N-1)1}^{\theta\theta} & \dots & -a_{(N-1)N}^{\theta\theta} \\
 -a_{N1}^{\theta x} & -a_{N2}^{\theta x} & \dots & -a_{NN}^{\theta x} & -a_{N1}^{\theta y} & \dots & -a_{NN}^{\theta y} & -a_{N1}^{\theta\theta} & \dots & (2m\omega^2 - a_{NN}^{\theta\theta})
 \end{pmatrix}_{3N \times 3N} \cdot \begin{pmatrix} \delta x_1 \\ \delta x_2 \\ \vdots \\ \delta x_{N-1} \\ \delta x_N \\ \delta y_1 \\ \vdots \\ \delta y_{N-1} \\ \delta y_N \\ \delta \theta_1 \\ \vdots \\ \delta \theta_{N-1} \\ \delta \theta_N \end{pmatrix}_{3N \times 1} = 0$$

onde N é o número total de partículas do sistema.

Conforme comentado, através do cálculo dos autovalores das Eqs. (A.15a), (A.15b) e (A.15c) obtém-se o quadrado das frequências dos modos normais de vibração. A matriz, apresentada anteriormente, também possibilita o cálculo dos autovetores que representa a direção de vibração das partículas do sistema e suas intensidades, dando assim muitas informações a respeito da dinâmica do sistema. Além disso, por se tratar da segunda derivada do Hamiltoniano, o cálculo das frequências da matriz possibilita identificar se o sistema está em um equilíbrio estável, quando todas as frequências são positivas, ou instável (ponto de sela), quando são negativas. Portanto, o cálculo da matriz (Eqs. (A.15a), (A.15b) e (A.15c)) mostra-se essencial na determinação do estado fundamental e importante na caracterização do comportamento das partículas de um sistema em $T = 0$.

APÊNDICE B

Melting of a two-dimensional binary cluster of charged particles confined in a parabolic trap [J. Phys.: Condens. Matter 18, 9385 (2006)]

Melting of a two-dimensional binary cluster of charged particles confined in a parabolic trap

W P Ferreira¹, F F Munarin¹, G A Farias¹ and F M Peeters²

¹ Departamento de Física, Universidade Federal do Ceará, Caixa Postal 6030, Campus do Pici, 60455-760 Fortaleza, Ceará, Brazil

² Department of Physics, University of Antwerp, Groenenborgerlaan 171, B-2020 Antwerpen, Belgium

E-mail: wandemberg@fisica.ufc.br and francois.peeters@ua.ac.be

Received 22 March 2006, in final form 6 September 2006

Published 29 September 2006

Online at stacks.iop.org/JPhysCM/18/9385

Abstract

Melting of a finite size binary system consisting of two types of particles having different charges and/or masses, confined in a two-dimensional (2D) parabolic trap, is studied. The melting temperature is obtained for different values of the ratio between the charges and/or masses of the two types of particles. The two types of particles melt at different temperatures; e.g., particles with smaller charge melt first. The importance of the commensurate/incommensurate configurations and the different normal modes to the melting phenomenon is studied. When the ground state consists of a nonsymmetric arrangement of particles new thermally induced structural phase transitions are found. In addition, a remarkable temperature induced spatial separation of the two types of particles is found.

(Some figures in this article are in colour only in the electronic version)

1. Introduction

Two dimensional (2D) clusters of confined charged particles have been used to model a large number of different experimental systems, such as surface electrons on a thin liquid helium film [1, 2], colloidal suspensions on an inert substrate [3], dusty plasmas [4, 5], and electrons confined in low dimensional semiconductor structures [6]. Even several model systems were recently realized experimentally, consisting of macroscopic objects such as charged metallic balls [7] and magnetic discs [8, 9]. Such 2D clusters exhibit remarkable and unexpected physical behaviour, which is, in most cases, very distinct from the analogue 3D case. As an example, we can cite the microscopic theory of Kosterlitz–Thouless–Halperin–Nelson–Young for phase transition in a 2D system. In the 2D case, and as pointed out by several authors, the transition from a solid phase to a complete isotropic liquid phase can be characterized by a two-step process with an intermediary hexatic phase [10–12]. However, such a melting scenario is

not unique and it depends on the considered system. Furthermore, recent papers have shown that the melting of 2D clusters is nonuniversal [13, 14].

Melting in small clusters of charged particles has also received considerable attention in recent years [15–19]. Very interesting properties have been observed in such systems, e.g. a two-step melting (angular *versus* radial melting) [16], nonhomogeneous melting due to the existence of geometry induced defects [17], and a re-entrant melting behaviour [15, 18] in hard wall confined systems.

In the present paper we investigate the melting phenomenon in a binary system containing two types of particles confined in a parabolic trap. In other words, we study how the presence of impurities [8, 9, 20], represented here by particles with different charges and/or masses, influences the melting of such small confined 2D clusters. The thermal properties of the system are analysed as a function of the ratio between the charges (α) and masses (β) of the two types of particles.

Previously we studied the zero temperature configurations and the normal mode spectrum of such a system as a function of α and β [21]. We found that for distinct values for α (β) the two types of particles separate, and arrange in different shells. In addition, we found that the normal modes are not only determined by the commensurate ratio of the number of particles in the shells, as pointed out in [22], but mainly by the parameters α and β . Melting in such a system was also studied in [22, 23]. However, the results presented in [22] were restricted to the special case in which particles have equal mass and the ratio between the two types of charges was $q_1/q_2 = 2$, while in [23] the special case of two very distinct type of particles, i.e. $q_1/q_2 = 8$, was studied. We extend the work in [22] and investigate the case in which particles have distinct charges and different masses.

Very recently, we addressed the question about the melting in small clusters with one type of particle, but subjected to a Coulomb [24] or to a parabolic [25] confinement potential. Structural phase transitions were found that occur before the complete melting of the system. Recently [19], local melting in small confined clusters of charged particles was observed experimentally. In the present paper, we show how local melting takes place in a binary system of particles with distinct charges and masses. For the computational work we restricted ourselves to the specific system of 13 particles which is representative for the main new physics exhibited by small binary clusters.

The present paper is organized as follows. In section 2 we present the model. The analysis of melting is given in section 3. Our conclusions are presented in section 4.

2. Numerical approach

Our system consists of a two-dimensional cluster with N_f particles with fixed charge q_f and fixed mass m_f , and N_v particles with charge q_v and mass m_v which we will vary. All charged particles interact through a pure repulsive Coulomb potential $1/r$, and the particles are kept together by a parabolic potential. The Hamiltonian of such a system is given by

$$H = \sum_{i=1}^{N_f} \frac{1}{2} m_f \omega_0^2 r_i^2 + \sum_{i=1}^{N_v} \frac{1}{2} m_v \omega_0^2 r_i^2 + \frac{q_f^2}{\epsilon} \sum_{i>j=1}^{N_f} \frac{1}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} + \frac{q_v^2}{\epsilon} \sum_{k>l=1}^{N_v} \frac{1}{|\mathbf{r}_k - \mathbf{r}_l|} + \frac{q_f q_v}{\epsilon} \sum_{m=1}^{N_f} \sum_{n=1}^{N_v} \frac{1}{|\mathbf{r}_m - \mathbf{r}_n|}, \quad (1)$$

where ϵ is the dielectric constant of the medium the particles are moving in, and $r_i \equiv |\mathbf{r}_i|$ is the distance of the i th particle from the centre of the confinement potential. In order to reveal the important parameters of the system, it is convenient to define $q_v/q_f = \alpha$, $m_v/m_f = \beta$ and to

write the energy and the distances in units of $E_0 = (m_f \omega_0^2 q_f^4 / 2\epsilon^2)^{1/3}$ and $r_0 = (2q_f^2 / m_f \epsilon \omega_0^2)^{1/3}$, respectively. In so doing, the Hamiltonian is reduced to

$$H = \sum_{i=1}^{N_f} r_i^2 + \beta \sum_{i=1}^{N_v} r_i^2 + \sum_{i>j=1}^{N_f} \frac{1}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \times \sum_{k>l=1}^{N_v} \frac{\alpha^2}{|\mathbf{r}_k - \mathbf{r}_l|} + \sum_{m=1}^{N_f} \sum_{n=1}^{N_v} \frac{\alpha}{|\mathbf{r}_m - \mathbf{r}_n|}, \quad (2)$$

and the state of the system is determined now by (α, β) and the number of particles (N_f, N_v) . Considering the dimensions of the quantities defined above, the temperature is expressed in units of $T_0 = E_0/k_B$, where k_B is the Boltzmann constant.

The ground state configurations ($T = 0$) of the two-dimensional binary system were obtained with the Monte Carlo (MC) method (using the standard Metropolis algorithm [26]) and the modified Newton method [27]. The negatively charged particles are initially put in random positions within some circular area and then allowed to reach a steady state configuration after about 10^4 – 2×10^5 simulation steps. Simultaneously, we calculated the frequencies of the normal modes of the system using the Householder diagonalization technique [27]. The configuration was taken as final when all frequencies of the normal modes were positive and the energy did not decrease further. Also special care was taken (see [21]) that we started from the ground state configuration and not from a metastable state.

To study melting the system was heated up (where temperature was increased by steps of δT , typically $\approx 10^{-3}$) and equilibrated at the new temperature during 5×10^4 – 2×10^5 MC steps (one MC step corresponds with a displacement of all particles). After annealing, the average energy is calculated, together with the mean squared radial displacement

$$\langle u_R^2 \rangle \equiv \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N ((r_i^2) - \langle r_i^2 \rangle) / \rho^2, \quad (3)$$

where ρ is the average distance between the particles at zero temperature. The symbol $\langle \rangle$ stands for an average over typically 10^6 – 10^7 MC steps after equilibration of the system.

Angular melting is studied using the angular intrashell displacements,

$$\langle u_{a1}^2 \rangle \equiv \frac{1}{N_s} \sum_{i=1}^{N_s} [(\varphi_i - \varphi_{i1})^2] / (\varphi_0^s)^2, \quad (4)$$

where i_1 indicates the nearest neighbour in the same shell and $\varphi_0^s = 2\pi/N_s$. The angular order between adjacent shells is characterized by the angular intershell displacement, defined as

$$\langle u_{a2}^2 \rangle \equiv \frac{1}{N_s} \sum_{i=1}^{N_s} [(\varphi_i - \varphi_{i2})^2] / (\varphi_0^s)^2, \quad (5)$$

where i_2 indicates the nearest neighbour in an adjacent shell. The shells, as well as all neighbours, were identified at the beginning of each temperature run.

The melting temperature was determined through a Lindemann-like criterion, which has been widely used for 2D finite size clusters. For finite systems, melting occurs over some temperature range and consequently there is some arbitrariness when defining a melting temperature. But what is essential is that fluctuations in the position of the particles change rapidly with temperature beyond some melting temperature. The Lindemann-like criterion adopted in the present work states that melting occurs when the parameters $\langle u^2 \rangle$ defined above reach 0.1 [28], or 0.05 for each coordinate separately. However, this criterion is not unique. A very interesting discussion about melting in small clusters is made in [19].

3. Melting

In this section we present the temperature dependence of the mean square displacements previously defined. First, the general properties of the melting transition will be addressed.

The results presented here were obtained for the particular cluster with $N_f = 7$ particles of fixed charge and with $N_v = 6$ particles of variable charge. This particular choice allows us to compare the melting phenomenon in commensurate and incommensurate configurations simply by changing the ratio α between the charges of the two types of particles [21]. A commensurate configuration occurs when the number of particles in the shells is multiple. If this is not the case, the ring-like configuration is said to be incommensurate. For example, a cluster with 13 particles arranged in shells (rings) as (1, 6, 6), i.e., one particle at the centre, six particles in the first shell, and six particles in the most external shell, presents a commensurate configuration. On the other hand, a cluster with the structural arrangement (1, 5, 7) has an incommensurate configuration. Concerning the lowest normal mode at $T = 0$, the results presented in [21] indicate that such a mode depends on the ratio between charges. Here, we will show that the shape of the mode plays an important role in the melting process. In spite of the particular system chosen here, the general features of the rich melting behaviour presented in this paper remain valid for other clusters.

3.1. Particles with distinct charges

In this section we take by default $\beta = 1$, i.e. we consider particles with the same mass. In this way, the effects of the electrostatic interaction between the different types of particles on the melting phenomenon can be emphasized.

In figure 1(a) the mean radial displacement ($\langle u_R^2 \rangle$) for the cluster with ($N_f = 7$, $N_v = 6$) particles is shown. The ratio between the charges is $\alpha = 3.0$. For these specific values of the parameters (α , β), particles arrange themselves in the commensurate ground state configuration (1, 6, 6), as shown in the inset of figure 1(a). As shown in [21], when particles are arranged in a ring-like structure, the ones with larger charge are always located at the exterior boundary of the system. The melting phenomenon in such a system presents an interesting anisotropy with respect to the different type of particles, i.e., with respect to the charges of the particles. As can be observed in figure 1(a), particles with smaller charge have a smaller radial melting temperature T_r when compared to the ones with larger charge. In general, the internal particles always melt first and such a behaviour was observed for all values of α .

The angular disorder in each shell is analysed through the mean angular intrashell displacements ($\langle u_{a1}^2 \rangle$). Due to the commensurate arrangement of the particles observed in the cluster with ($N_f = 7$, $N_v = 6$) particles, the intrashell melting temperature T_{a1} for the first shell is only slightly smaller than the one for the radial melting (figure 1(b)). Note that the sudden increase in $\langle u_{a1}^2 \rangle$ occurs at the same temperature as the one for the quantity $\langle u_R^2 \rangle$ but the value 0.05 is reached at a different temperature, i.e. $T_{a1} \approx 0.022$ and $T_r \approx 0.024$. The very packed configuration of the cluster generates a high potential barrier for intrashell disorder. However, we found that such a feature is nonuniversal in the binary system, and depends strongly on the interaction between the particles, and consequently on the parameter α .

As already observed in small clusters with only one type of particles [16, 19, 27], the first melting process which takes place in the cluster is characterized by intershell rotation, which is activated at a temperature smaller than the one for radial melting. In figure 1(c), the mean angular intershell displacement ($\langle u_{a2}^2 \rangle$) is shown as a function of temperature. It is clear that the thermal threshold ($T_{a2} \approx 0.012$) for intershell rotation between the two types of particles occurs at a smaller temperature than the one for radial and intrashell melting (figure 1(c)), i.e., $T_{a2} < T_r$ and $T_{a2} < T_{a1}$. As will be shown later, thermally activated intershell rotation is not always observed in a binary system.

Recently, Drocco *et al* [22] found that the matching between the configurations of the particles in the inner and in the outer shell results in a higher melting temperature and in a

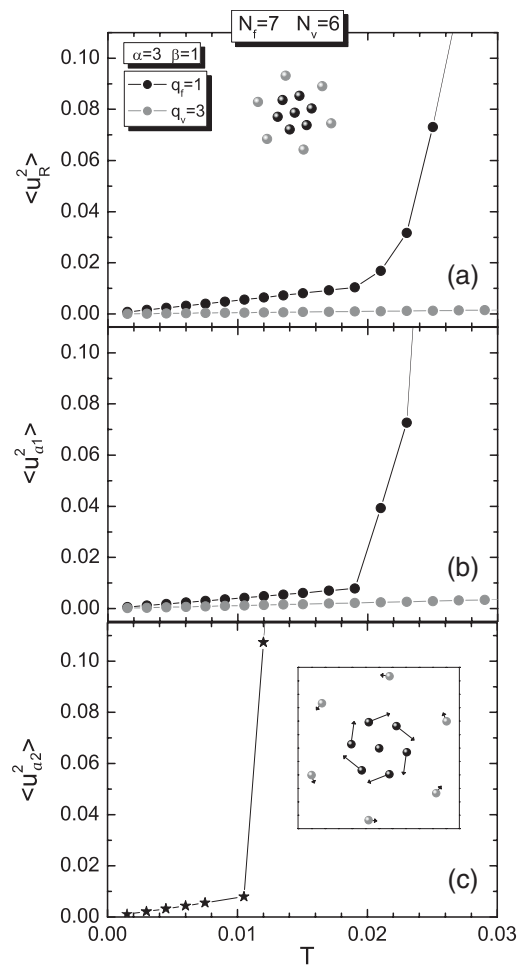


Figure 1. (a) The mean radial displacement ($\langle u_R^2 \rangle$), (b) the mean angular intrashell displacements ($\langle u_{a1}^2 \rangle$), and (c) the mean angular intershell displacements ($\langle u_{a2}^2 \rangle$) for a cluster with $N_f = 7$, $N_v = 6$ particles. The ground state configuration is shown in the inset of (a). The black spheres are the reference particles ($q_f = 1$), while the grey spheres represent the particles with charge $q_v = 3$. The lowest normal mode is depicted in the inset of (c).

higher thermal threshold for intershell rotation than in the case of nonmatching configurations. These authors only addressed this question with respect to the number of particles in the shells. But, the matching is also a consequence of the effective potential due to the particles in the different shells, and this potential depends not only on the number of particles, but also on other parameters such as the charge and the mass of the particles. Recently, we found that not only the number of particles, but also the ratio between the charges and/or masses of the two types of particles are important parameters in the activation of some specific normal modes at $T = 0$ [21]. Since the normal modes (specially the one associated with the lowest nonzero frequency) are directly related to the stability and deformability of the cluster configuration, they may also be important to the melting transition. As pointed out by Schweigert and Peeters, the melting temperature can, in fact, be written as a function of the frequencies of the normal modes at $T = 0$ [27]. In general, we find here (see also [17]) that the lowest normal mode

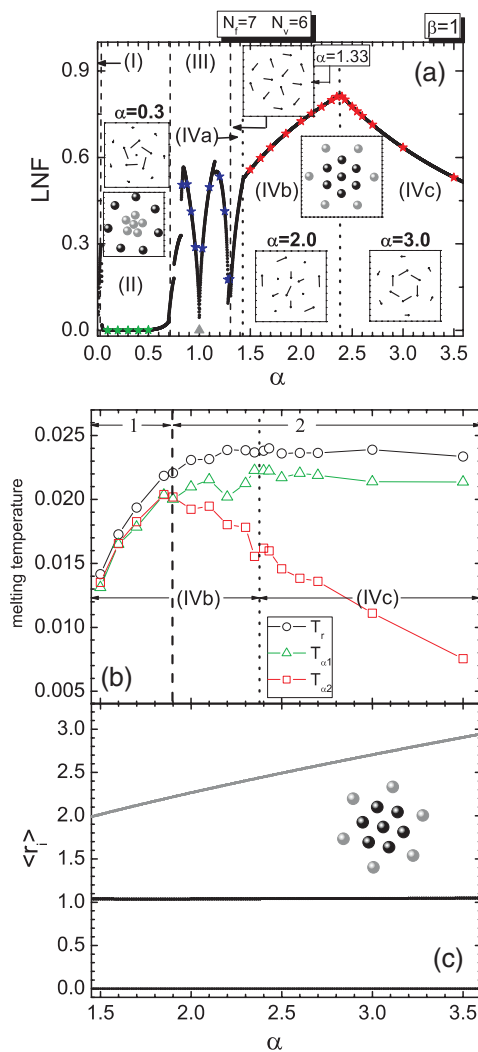


Figure 2. (a) The lowest non-zero frequency (LNF) as a function of α for a cluster with $N_f = 7$ and $N_v = 6$ particles. Some ground state configurations are shown as the inset (black symbols represent particles with charge $q_f = 1$, while grey symbols are for the particles with charge $q_v = \alpha$). (b) The radial melting temperature T_r , the intrashell melting temperature T_{a1} (for the internal shell), and the intershell melting temperature T_{a2} as a function of α . (c) Distance of each particle from the centre of the confinement potential as a function of α . Black and grey curves are associated with the particles with charges $q_f = 1$ and $q_v = \alpha$, respectively.

plays an important role in the melting process of the binary system. More specifically, an α -dependence of the radial melting temperature is observed when specific lowest normal modes are found at $T = 0$. The thermally activated intershell rotation is also a function of α . In order to illustrate these statements, we resort again to the cluster with $N_f = 7$ and $N_v = 6$ particles, but now for different values for α .

In order to better understand the results, we first present in figure 2(a) the lowest normal mode frequency (LNF) for the cluster with $N_f = 7$, $N_v = 6$ particles as a function of α . As discussed above, and as shown previously [21], the lowest normal mode (at $T = 0$) of the binary

system is a sensitive function of the ratio between the charges of the two types of particles. This fact is highlighted in 2(a). The regions I, II, III, and IV define the α intervals where the ground state configurations have different symmetries. Some of the configurations are shown as insets of figure 2(a). E.g., in region II the particles are arranged in the incommensurate configuration (1, 5, 7), i.e., one particle with variable charge q_v at the centre, five particles with variable charge q_v at the first shell, and seven particles with fixed charge q_f at the last shell. Note that in this case the reference particles ($q_f = 1$) are the external ones, since they have now a larger charge. In region IV the commensurate configuration (1, 6, 6) is observed, and in this case the reference particles are the internal ones.

Since radial melting is anisotropic with respect to the different types of particles, we concentrate here on the results concerning the internal ones, which melt first. The analysis of the results can be better understood if we also define the sub-regions IVa ($1.307 \lesssim \alpha \lesssim 1.431$), IVb ($1.431 \lesssim \alpha \lesssim 2.384$), and IVc ($\alpha \gtrsim 2.384$), where the system has the same configuration, but a different lowest normal mode. In region II and in sub-regions IVa, IVb, and IVc the obtained lowest normal modes are shown as insets to figure 2(a). In particular, note that in regions IVb and IVc the observed lowest normal modes consist of a vortex–antivortex pair and intershell rotation, respectively.

The different melting temperatures (T_r , T_{a1} , T_{a2}) for the internal particles as a function of α are shown in figure 2(b) for the cluster with $N_f = 7$, $N_v = 6$ particles. Since we want to investigate the influence of the type of lowest normal mode on the melting process, we will choose the values of α in region IV of figure 2(a), where the cluster presents the same ground state configuration, but distinct lowest normal modes. Note that the vertical dotted line in figure 2(b) separates subregions IVb and IVc previously defined in figure 2(a).

In general, the melting process in the binary system can be characterized by the loss of order between the shells (thermally activated intershell rotation), by the loss of order within a shell (intrashell disorder), and by the radial diffusion of particles among shells (radial melting). The occurrence of the last two kinds of disorder is observed for any value of α in region IV, as can be seen in figure 2(b). On the other hand, thermally activated intershell rotation is not always present, as shown in figure 2(b). E.g., note that for $\alpha \lesssim 1.9$ (region 1—left of the vertical dashed line) the melting temperature for intrashell disorder (green curve with open triangles) is slightly smaller than the one for thermally activated intershell rotation (red curve with square symbols), i.e. $T_{a1} \lesssim T_{a2}$. This means that orientational disorder between shells is observed simply as a consequence of the angular disorder in the internal shell.

Thermally activated intershell rotation is found only for $\alpha \gtrsim 1.9$ (region 2—right of the vertical dashed line). Note that in this interval $T_{a1} > T_{a2}$, implying that the angular disorder between shells occurs before the loss of order within the internal shell. In region 2, T_{a2} continuously decreases with increasing α , indicating that the thermally activated intershell rotation is independent of the lowest normal mode, since no special feature in the curve T_{a2} is observed when the lowest normal mode is changed from a vortex–antivortex to intershell rotation. However, the α -dependence of T_{a2} indicates that thermal activation of intershell rotation becomes easier with increasing α . Such a behaviour can be understood if we analyze the mean distance of each particle from the centre of the confinement potential ($\langle r_i \rangle$) as a function of α , which is shown in figure 2(c). Notice that the radius of the internal shell (particles with charge $q_f = 1$) is practically constant, while the radius of the external shell (particles with charge $q_v = \alpha$) increases with increasing α , which is due to the larger electrostatic repulsion. The larger separation between the shells results in a weaker coupling between them, and consequently makes thermal excitation of intershell rotation easier.

Now we will discuss the radial melting and the thermally activated angular disorder within the shell as a function of α . As commented before, such melting processes were observed for

all values of α in region IV of figure 2(a). Here, we stress again that the results for T_r and T_{a1} are associated with the particles in the internal shell, which melt first. The behaviour of the melting temperatures T_r and T_{a1} as a function of α suggests that the lowest normal mode has some influence on them (see figure 2(b)). In region IV(b) of figure 2(b), where the lowest normal mode at $T = 0$ is the vortex–antivortex pair (region VI(b)), both temperatures (T_r and T_{a1}) are clearly affected by α . More specifically, T_r and T_{a1} increase with increasing α up to $T_r \approx 0.024$ and $T_{a1} \approx 0.022$, respectively ($\alpha \approx 2.38$). For $\alpha \gtrsim 2.38$ the melting temperatures T_r and T_{a1} decrease very slowly with increasing α , where the lowest normal mode at $T = 0$ corresponds to intershell rotation (region VI(c)).

The preceding results suggest that the shape of the lowest mode excitation determines its thermal behaviour. The usual two-step melting found before [16] in clusters with one type of particles is not always found in a binary system. Such a dependence of the melting temperatures on the lowest normal mode was never found before in small confined clusters of charged particles.

The results for the melting temperatures shown in figure 2(b) were restricted to values of α in region IV of figure 2(a), where the ground state configuration is a commensurate state. Now we will study the thermal behaviour of the system in region II ($0.053 \lesssim \alpha < 0.694$) when an incommensurate arrangement of particles is found as the ground state (see inset of figure 2(a)). Note that particles with charge $q_f = 1$ are now located at the external shell (black spheres). The incommensurate ground state configuration is a ring-like structure (1, 5, 7).

As already shown by Schweigert and Peeters [27] for a system with one type of particle, and by Ferreira *et al* [21] for the present binary system, incommensurate configurations are highly unstable against intershell rotation. As pointed out by Ferreira *et al*, it is expected that such an instability should also be observed with respect to the structure inside each shell, and with respect to the diffusion of particles between shells, when the temperature of the system is increased [21]. Recently, Drocco *et al* [22] showed that incommensurate configurations have a smaller thermal threshold for intershell rotation as compared to the case of matching configurations. However, the results presented in [22] were restricted to the case $\alpha = 2$. In the present work, we show that the results of [22] are also valid for different values of α . In addition, we show the dependence of the melting temperatures T_r and T_{a1} (for incommensurate configurations) on the ratio between the charges of the two types of particles.

The melting temperatures T_r and T_{a1} as a function of α are shown in figure 3 for the case of an incommensurate configuration. As can be observed, T_r and T_{a1} are one order of magnitude smaller than the melting temperatures found in the case of commensurate configurations (see figure 2(b)). These results mean that not only the thermal activation for intershell rotation, but also the radial melting and the intrashell disorder, are more easily driven in the case of incommensurate configurations. These results are valid for different values of α . Figure 3 also indicates that T_r and T_{a1} increase with increasing α . Such a behaviour should be associated with the increase of the coupling between the different types of particles when α increases, and with the height of the saddle point energy separating the ground state from metastable states, as can be seen in figure 3, where the energy difference between the first metastable state (with configuration (6, 7)—see inset in figure 3) and the ground state ($E_m - E_g$) is shown. The increase of the melting temperature as a function of α follows the increase of ($E_m - E_g$). It is worth commenting here that the height of the saddle point energy has no influence on the melting temperature shown in figure 2(b), since only one stable state, the ground state, was observed for those values of α .

Up to now we have limited the discussion to the particular cluster with $N_f = 7$, $N_v = 6$ particles. We found that the effect of the commensurability of the ground state configuration on the melting process of binary systems is also observed in clusters with different number of

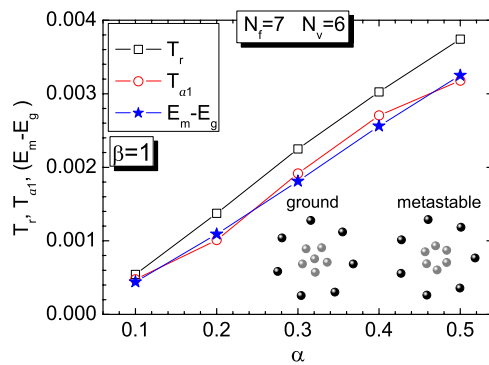


Figure 3. The radial melting temperature T_r , the intrashell melting temperature $T_{\alpha 1}$ (both for the internal shell), and the energy difference between the first metastable state and the ground state ($E_m - E_g$) as a function of α for the cluster with $N_f = 7$ and $N_v = 6$ particles. The configurations of the ground state and the metastable state are shown in the inset.

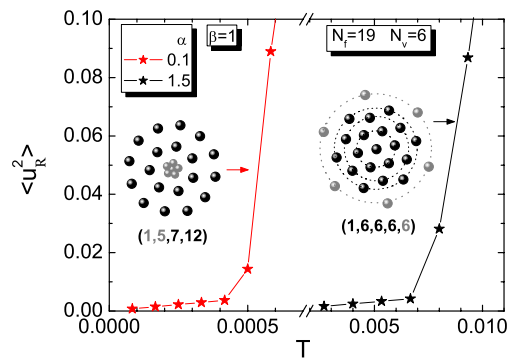


Figure 4. The mean radial displacement ($\langle u_R^2 \rangle$) as a function of the temperature T for commensurate and incommensurate configurations of the cluster with $N_f = 19$, $N_v = 6$ particles. The ground state configurations are presented as insets. Black spheres represent the reference particles ($q_f = 1$), while grey spheres are the particles with variable charge $q_v = 0.1$ or $q_v = 1.5$.

particles. For example, the temperature dependence of the mean squared radial displacement as a function of temperature for the internal particles of the cluster with $N_f = 19$, $N_v = 6$ particles is shown in figure 4. This system can present a commensurate or an incommensurate configuration depending on the value of α (see insets in figure 4). As can be observed, the melting temperature for the incommensurate configuration ($\alpha = 0.1$) is one order of magnitude smaller than the one for the matching configuration ($\alpha = 1.5$). For the incommensurate configuration (1, 5, 7, 12), we consider as internal particles only the ones with variable charge (grey spheres), which form the first shell. For the commensurate configuration (1, 6, 6, 6, 6), we considered as internal particles the ones with fixed charge (black spheres), which are distributed over three circular shells. The reason for these choices is the anisotropy in the melting process with respect to the different types of particles as shown previously in figure 1. As can be observed in figure 5(a), for the commensurate configuration, and in figure 5(b), for the incommensurate configuration, the mean squared radial displacement for the external particles is much smaller than the one for the internal particles. In addition, we observe in figure 5(a) that the more internal the shell the smaller the melting temperature.

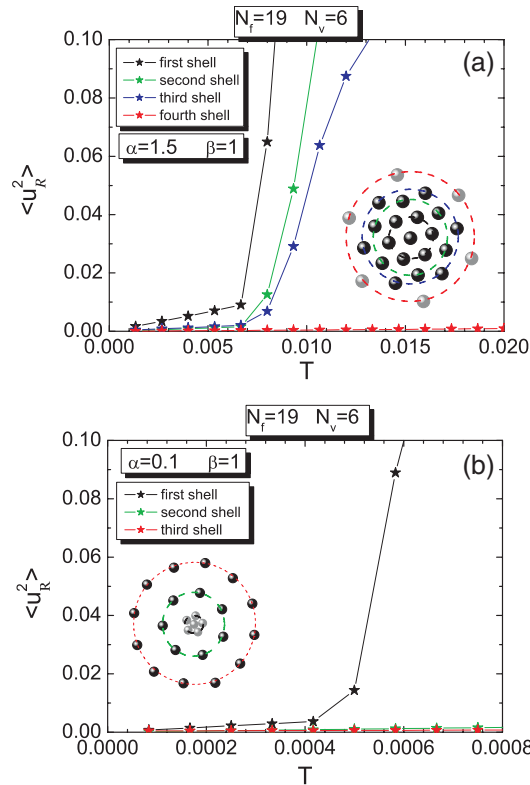


Figure 5. The mean radial displacement ($\langle u_R^2 \rangle$) as a function of temperature for the different shells of the (a) commensurate and (b) incommensurate configurations of the cluster with $N_f = 19$, $N_v = 6$ particles. Ground state configurations are presented as insets. Black spheres represent the reference particles ($q_f = 1$), while grey spheres represent particles with variable charge $q_v = 1.5$ in (a) and $q_v = 0.1$ in (b).

3.2. Particles with distinct masses

In this section we present the results for the case in which particles have different masses, i.e. $\beta \neq 1$, and as an example we take again the cluster with $N_f = 7$ and $N_v = 6$ particles. New commensurate and incommensurate configurations are obtained by changing β .

In figures 6(a)–(c) the dependence of the mean radial displacement ($\langle u_R^2 \rangle$), the mean angular intrashell displacement ($\langle u_{a1}^2 \rangle$), and the mean angular intershell displacements ($\langle u_{a2}^2 \rangle$) are shown, respectively, as a function of temperature in the representative case $\beta = 0.1$, where one type of particle (with mass m_f) is ten times heavier than the other one (with mass m_v). In order to emphasize the inertial effects on the melting properties of the system, we take $\alpha = 1$, i.e. particles with the same charge. The ground state configuration of the system is a commensurate ring-like structure (1, 6, 6), as shown in the inset of figure 6(a). Particles with larger mass are located at the internal shell, in order to minimize the confinement potential energy (see equation (2)). As observed in the preceding section for particles with distinct charges, an anisotropic melting is also found when particles are distinguished from one another by their masses. As can be nicely seen in figures 6(a) and (b) the internal particles melt first. This is in some sense a surprising result since the internal particles are the heaviest ones, and intuitively we could expect that the motion of such particles requires more energy than the

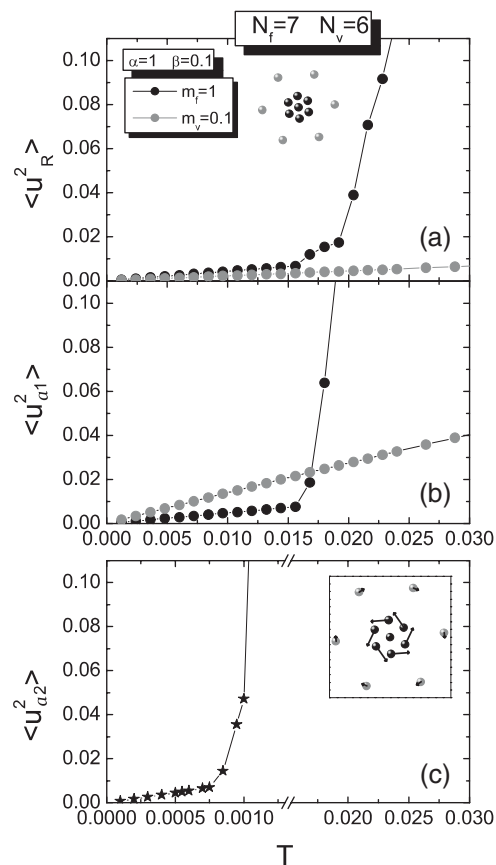


Figure 6. (a) The mean radial displacement ($\langle u_R^2 \rangle$), (b) the mean angular intrashell displacement ($\langle u_{a1}^2 \rangle$), and (c) the mean angular intershell displacements ($\langle u_{a2}^2 \rangle$) for the cluster with $N_f = 7$, $N_v = 6$ particles. The ground state configuration is shown in the inset of (a). Black spheres represent the reference particles ($m_f = 1$), while grey spheres represent the particles with mass $m_v = 0.1$.

motion of the lighter ones, i.e. a larger temperature is required to destroy the order of the heavier particles. The results presented in figures 6(a) and (b) may be an indication that the inertial properties of the system are not important when compared to the electrical interaction. In fact, we find that the electrostatic interaction between particles overcomes any inertial dependence of the melting process.

In order to verify the importance of the electrostatic effects over the inertial ones, we present in figure 7 the mean radial displacement ($\langle u_R^2 \rangle$), for the internal and external shells, as a function of temperature for the cluster with $N_f = 7$ and $N_v = 6$ particles, in cases where particles also have different charges, i.e. $\alpha \neq 1$. As previously considered, the reference particles have charge $q_f = 1$, mass $m_f = 1$, and are always represented by black spheres, while the other type of particle has charge $q_v = \alpha$, mass $m_v = \beta$, and are represented by grey symbols. In general, we find that when $\alpha \neq 1$, and the ring-like structure is the ground state, particles with smaller charge are always located at the internal shell and melt first, independently of the ratio between the masses. This is shown in figures 7(a) and (b) for $\alpha = 0.3$ and $\alpha = 4.85$, respectively, and for three different values of β .

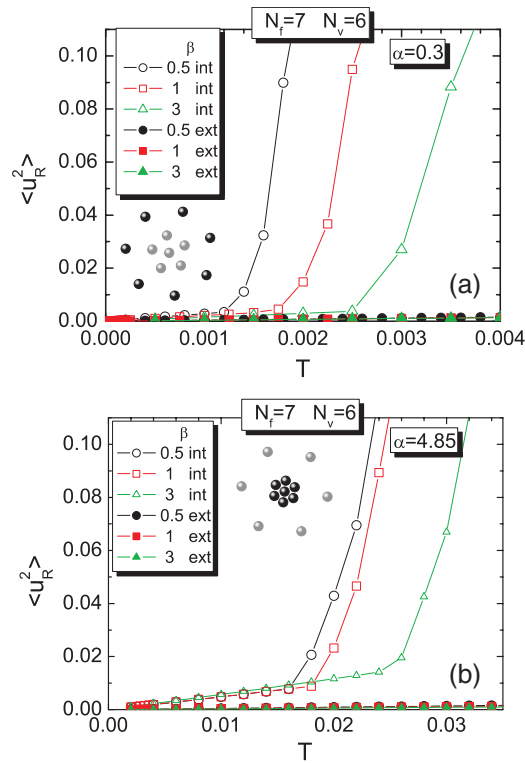


Figure 7. The mean radial displacement ($\langle u_R^2 \rangle$) as a function of temperature for the cluster with $N_f = 7$ and $N_v = 6$ particles and for different values of β in the cases where (a) $\alpha = 0.3$ and (b) $\alpha = 4.85$. Typical ground state configurations for each value of α are shown as insets. Black spheres are the reference particles ($m_f = 1$), while grey spheres represent particles with mass $m_v = \beta$.

E.g., in the case ($\alpha = 0.3$, $\beta = 0.5$) we observe that particles with smaller charge and smaller mass (internal ones) melt first. In fact, this is the expected behaviour, since the electrostatic correlation and the inertial effects for these particles are less important than the ones for the reference particles (figure 7(a)). However, the case ($\alpha = 0.3$, $\beta = 3$) shows that the radial melting is mainly determined by the electrostatic correlation effects. Note that particles with smaller charge ($q_v = \alpha$) melt first, even when having larger mass. The larger charge of the reference particles makes the interaction between such particles stronger, which means a more stable structure and a larger melting temperature. The same conclusions are found for the case with $\alpha = 4.85$ (figure 7(b)).

The inertial effects become apparent only when we compare the radial melting temperatures of the internal particles in clusters with the same ratio between charges (α). As can be observed in figures 7(a) and (b), for $\alpha = 0.3$ and $\alpha = 4.85$, respectively, the radial melting temperature of the internal particles increases with increasing mass of such particles. The larger the value of β , the larger the radial melting temperature. Note that such a behaviour is found for commensurate (figure 7(b)) as well as for incommensurate configurations (figure 7(a)). The behaviour observed for the radial melting temperature is also found for angular disorder within the shell (i.e., for the intrashell melting temperature T_{a1}), and for the intershell disorder temperature (T_{a2}).

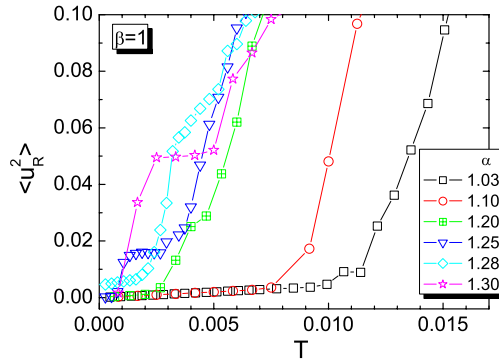


Figure 8. The mean squared radial displacement ($\langle u_R^2 \rangle$) as a function of temperature T for a cluster with $N_f = 7$, $N_v = 6$ particles and different values of α . All particles have the same mass, i.e., $\beta = 1$.

3.3. Thermally induced structural phase transitions

Recently, a new feature in the melting of clusters with one type of charged particles was found: namely, the occurrence of local structural phase transitions before complete melting of the system [19, 24, 25]. As shown in [24, 25], these structural transitions depend on the exact ground state configuration of the system and lead to an enhancement of the symmetry of the cluster with increasing temperature. In this section, we show that such structural transitions can also be observed in binary clusters and they produce a segregation of the two types of particle.

As an example, we consider clusters with $\beta = 1$ and values of α in region III of figure 2(a) (indicated by blue stars). In that region, particles of each type are arranged in asymmetric ground state configurations, which are beneficial for observing thermally induced structural phase transitions.

The temperature dependence of the mean squared radial displacement ($\langle u_R^2 \rangle$) of the reference particles ($q_f = 1$) is shown in figure 8 for $\alpha = 1.03, 1.1, 1.2, 1.25, 1.28, 1.3$. The mean squared radial displacement for the other particles (with $q_v = \alpha$) is not shown since the values of $\langle u_R^2 \rangle$ are usually one or two orders of magnitude smaller than the ones for the reference particles in the temperature interval considered in figure 8. The radial melting temperatures T_r obtained from figure 8 are comparable to the ones observed in ring-like incommensurate configurations (figure 3), indicating that in both cases the clusters are not very stable.

In figure 8 we notice the occurrence of plateaus for $\alpha = 1.25, 1.28, 1.3$. As shown in [24, 25] for systems with one type of particle, such plateaus are typical signatures for thermal induced structural phase transitions. In order to confirm that this is also the case for the present binary system, we present in figure 9 the temperature dependence of the mean distance of each particle $\langle r_i \rangle$ from the centre of the confinement potential for clusters with $\alpha = 1.03, 1.1, 1.25, 1.3$.

For $\alpha = 1.03$ (figure 9(a)) and $\alpha = 1.1$ (figure 9(b)) the structure of the cluster is changed only when radial melting sets in ($T \approx 0.01$, for $\alpha = 1.03$, and $T \approx 0.009$, for $\alpha = 1.1$). For $\alpha = 1.25$ (figure 9(c)) and $\alpha = 1.3$ (figure 9(d)), thermally induced structural phase transitions are observed at low temperatures. Note that in the considered temperature range, $\langle u_R^2 \rangle$ is still very small, indicating that the oscillations of the particles are not large enough to destroy the ordered structure of the configuration.

Comparing figures 8 and 9 we find that the fast increase of $\langle u_R^2 \rangle$ (in order to form the plateau) is related to structural modifications in the cluster to a more symmetrical configuration.

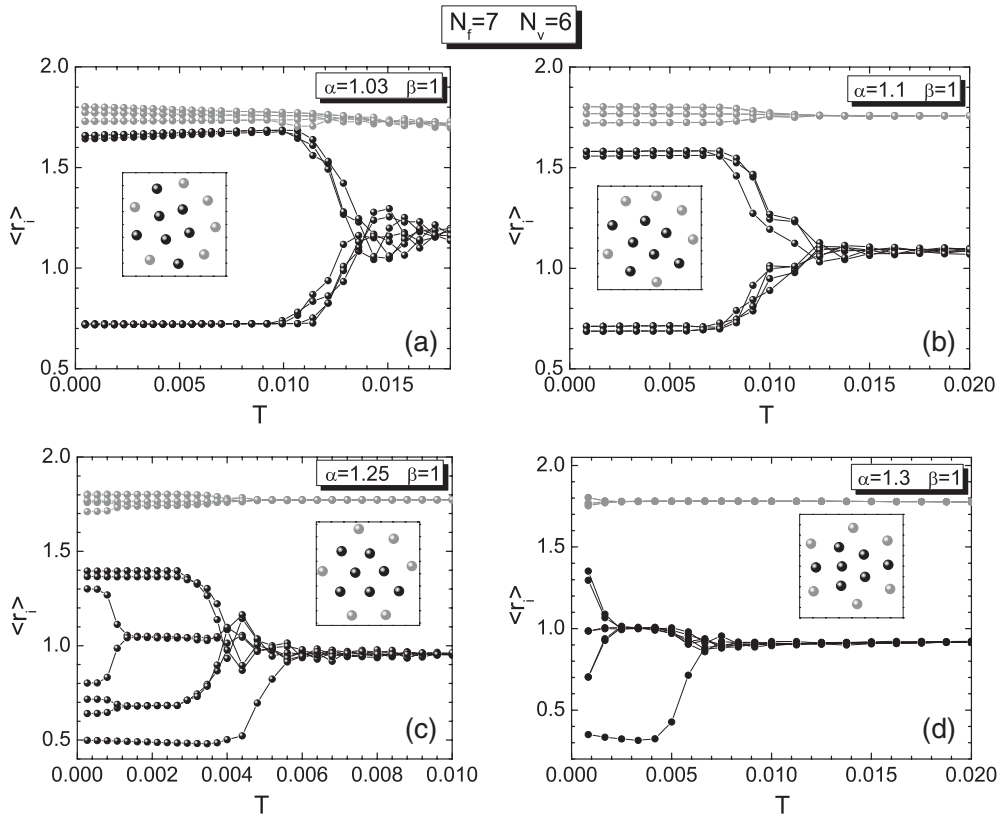


Figure 9. The mean distance of each particle from the centre of the confinement potential as a function of temperature for the cluster with $N_f = 7$ and $N_v = 6$ particles, and (a) $\alpha = 1.03$, (b) $\alpha = 1.1$, (c) $\alpha = 1.25$, and (d) $\alpha = 1.3$. All particles have the same mass, i.e. $\beta = 1$.

For example, in figure 9(c) a thermally induced structural phase transition occurs at $T \approx 0.001$, which coincides with the beginning of the formation of a plateau in figure 8.

The results in figure 9 also reveal an interesting feature. There is a clear enlargement of the separation between the distinct types of charges with increasing temperature. Particles with smaller charge become more confined in the internal region of the cluster, while the ones with larger charge stay at the edge of the system, and at the same distance from the centre. This *thermally induced charge segregation* is observed for all values of α in region III of figure 2(a), where mixed configurations are found as ground state. The thermally induced charge segregation is observed even when the difference in charge between the particles is very small. E.g., for $\alpha = 1.03$ (figure 9(a)) we observe that after the melting temperature ($T \approx 0.0135$) the mean distance of the reference particles from the centre is $\langle r_i \rangle \approx 1.2$, while for the other ones $\langle r_i \rangle \approx 1.7$. Before melting, both types of particles (see inset of figure 9(a)) are, approximately, at the same distance from the centre of the confinement potential, indicating that the system is in a mixed state as defined in [21]. The thermally induced charge separation is observed for all values of the ratio between the charges.

Now we make some comments about the general behaviour of the melting temperature as a function of α for clusters in region III of figure 2(a). Remarkable features observed in this region are (i) the presence of a large number of metastable states when $\alpha \approx 1$ (see table 1),

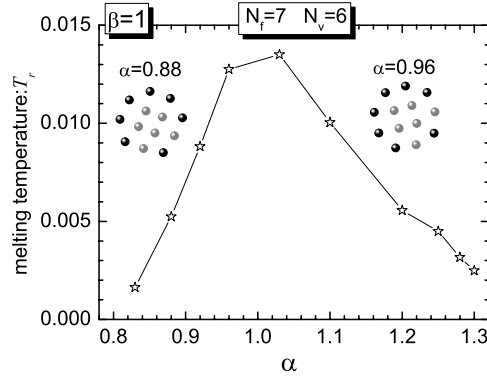


Figure 10. The radial melting temperature T_r as a function of α for the cluster with $N_f = 7$ and $N_v = 6$ particles. Ground state configurations are shown as insets.

Table 1. Number of metastable states (N_{meta}) for several values of the ratio between charges α in clusters with $N_f = 7$, $N_v = 6$ particles.

α	N_{meta}
0.83	72
0.88	109
0.92	108
0.96	109
1.03	112
1.10	115
1.20	84
1.25	40
1.28	34
1.30	18

and, as previously stated, (ii) mixed ground state configurations characterized by an asymmetric distribution of the distinct types of particles. As will be shown here, only the latter has some influence on the melting process.

In figure 10 the radial melting temperature T_r of the cluster with $N_f = 7$, $N_v = 6$ particles as a function of α is shown. The radial melting temperature decreases with increase of the difference $|\alpha - 1|$, i.e. when the difference between charges of both types of particles increases. For $\alpha \approx 1$ the distinct types of particles have almost the same charge, and consequently we have $N_f + N_v = 13$ almost identical particles distributed over rings [16]. When $|\alpha - 1|$ increases, the ring-like structure of the charge distribution is destroyed, since distinct types of particles are found in the same shell. The symmetry breaking in the distribution of charge over the rings reduces the stability of the radial fluctuations of the entire cluster, and consequently the radial melting temperature is reduced.

The stability of the cluster is related to the frequency of the lowest normal mode (LNF). The behaviour of T_r as a function of α (figure 10) does not match the α -dependence of the LNF in region III of figure 2(a). This apparent discrepancy can be easily understood by recalling that for $\alpha \approx 1$ the incommensurate ring-like structure (4, 9) is observed, for which the lowest normal mode is intershell rotation, which does not influence the radial melting temperature. Such incommensurate ring-like structure is highly unstable against the intershell rotation motion, which is reflected in a very small frequency of this mode, that is normally two orders of

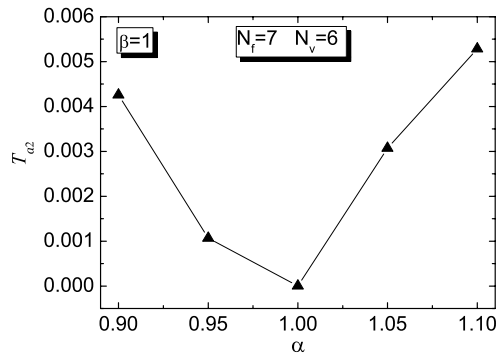


Figure 11. The intershell melting temperature T_{a2} as a function of α for the cluster with $N_f = 7$, $N_v = 6$ particles in the limit $\alpha \rightarrow 1$ in region III of figure 2(a).

magnitude smaller than the frequency of the other modes [27]. Here, the intershell rotation mode has a very small activation frequency $\omega = 6.002 \times 10^{-4}$ for $\alpha = 1$ (grey triangle in figure 2(a)). When α slightly differs from one, the ground state configuration is the same as the one observed for $\alpha = 1$ (see insets in figure 10), and the lowest normal mode is still the intershell rotation, but now with a frequency two orders of magnitude larger than that for the $\alpha = 1$ case.

The α -dependence of the LNF in region III of figure 2(a) is reflected in the intershell melting temperature T_{a2} . In figure 11, we present T_{a2} as a function of α for the cluster with $N_f = 7$, $N_v = 6$ particles in the limit $|\alpha - 1| \rightarrow 0$. Notice that T_{a2} follows the α -dependence of the LNF. For example we found $T_{a2} \simeq 10^{-6}$ ($\alpha = 1$), 4×10^{-5} ($\alpha = 0.999$) and 9×10^{-5} ($\alpha = 1.001$). The presence of particles with a larger charge in both rings (for $\alpha \neq 1$) increases the coupling between such charges and the thermally induced intershell rotation needs higher energy (i.e. higher temperature) to be activated.

4. Conclusions

We studied melting in a binary finite system of charged particles, with distinct charges and/or masses, confined by a parabolic potential. Since the model system presents a large number of parameters (temperature, charge and mass ratio) which have an important influence on the melting properties, we made the choice to present a thorough investigation of a particular cluster with $N = 13$ particles, which exhibits the main features. This particular choice does not restrict the general conclusions and the essential physics of the melting process. E.g., the commensurability effects are general and are not an artefact of the $N = 13$ system.

In general, the binary system exhibits an anisotropic melting with respect to the different types of particles. Particles with smaller charge melt first, and this is observed independently of the mass of both types of particles. The influence of the inertial effect on the melting process becomes relevant only when we compare clusters in which particles have the same charges. In this case, particles with larger mass have the highest melting temperature.

The dependence of the radial (T_r), intrashell (T_{a1}), and intershell (T_{a2}) melting temperatures on the shape of the lowest normal mode at $T = 0$ was studied for the cases in which particles are arranged in a commensurate ring-like configuration. We found that T_r and T_{a1} have different behaviours for distinct shapes of the lowest modes. Thermally activated intershell rotation is not observed for any value of α , which means that the melting process in small clusters of charged particles is not universal.

A remarkable temperature induced separation of the distinct types of particles is observed with increasing temperature. Particles with smaller charge become confined in the internal region of the cluster. This interesting thermal segregation was also observed for particles with different masses.

The opposite limit of the present system is the one in which $N = (N_f + N_v) \rightarrow \infty$. In this case, the formation of a 2D Wigner crystal will essentially depend on the ratio N_f/N_v between the number of both types of particles. If it is a nonrational number, it is expected that no Wigner lattice will be formed and the system will be disordered. In the other case, one may expect ordered crystal structures with a larger unit cell (how large will depend on the exact value of the ratio N_f/N_v). Because of the complexity of the situation in 2D we prefer not to speculate on this issue and limit ourselves to the finite size system where we can make clear statements that are supported by our numerical results. The possible $T = 0$ lattice structures and the melting of such a 2D binary system is very interesting and will be left for future study.

Acknowledgments

FFM and GAF were supported by the Brazilian National Research Councils CNPq and CAPES and the Ministry of Planning (FINEP). Part of this work was supported by the Flemish Science Foundation (FWO-VI).

References

- [1] Crandall R S and Williams R 1971 *Phys. Lett. A* **34** 404
- [2] Grimes C C and Adams G 1979 *Phys. Rev. Lett.* **42** 795
- [3] Golosovsky M, Saado Y and Davidov D 2002 *Phys. Rev. E* **65** 061405
- [4] Chu J H and L I 1994 *Phys. Rev. Lett.* **72** 4009
- [5] Melzer A 2003 *Phys. Rev. E* **67** 016411
- [6] Jacak L, Hawrylak P and Wójs A 1998 *Quantum Dots* (Berlin: Springer)
- [7] Saint Jean M, Even C and Guthmann C 2001 *Europhys. Lett.* **55** 45
- [8] Grzybowski B A, Stone H A and Whitesides G M 2000 *Nature* **405** 1033
- [9] Grzybowski B A, Jiang X, Stone H A and Whitesides G M 2001 *Phys. Rev. E* **64** 011603
- [10] Kosterlitz J M and Thouless D J 1973 *J. Phys. C: Solid State Phys.* **6** 1181
- [11] Halperin B I and Nelson D R 1978 *Phys. Rev. Lett.* **41** 121
- [12] Young A P 1979 *Phys. Rev. B* **19** 1855
- [13] Zahn K, Lenke R and Maret G 1999 *Phys. Rev. Lett.* **82** 2721
- [14] Branício P S, Rino J P and Studart N 2001 *Phys. Rev. B* **64** 193413
- [15] Bubeck R, Bechinger C, Nesper S and Leiderer P 1999 *Phys. Rev. Lett.* **82** 3364
- [16] Bedanov V M and Peeters F M 1994 *Phys. Rev. B* **49** 2667
- [17] Kong M, Partoens B and Peeters F M 2003 *New J. Phys.* **5** 23
- [18] Schweigert I V, Schweigert V A and Peeters F M 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 4381
- [19] Coupier G, Guthmann C, Noat Y and Saint-Jean M 2005 *Phys. Rev. E* **71** 046105
- [20] Nelissen K, Partoens B and Peeters F M 2004 *Phys. Rev. E* **69** 046605
- [21] Ferreira W P, Munarin F F, Nelissen K, Costa Filho R N, Peeters F M and Farias G A 2005 *Phys. Rev. E* **72** 021406
- [22] Drocco J A, Olson Reichhardt C J, Reichhardt C and Jankó B 2003 *Phys. Rev. E* **68** 060401(R)
- [23] Nelissen K, Partoens B, Schweigert I and Peeters F M 2006 *Europhys. Lett.* **74** 1046
- [24] Ferreira W P, Partoens B, Peeters F M and Farias G A 2005 *Phys. Rev. E* **71** 021501
- [25] Tomecka D, Partoens B and Peeters F M 2005 *Phys. Rev. E* **71** 062401
- [26] Metropolis N, Rosenbluth A W, Rosenbluth M N, Teller A M and Teller E 1953 *J. Chem. Phys.* **21** 1087
- [27] Schweigert V A and Peeters F M 1995 *Phys. Rev. B* **51** 7700
- [28] Lozovik Yu E and Fartzdinov V M 1985 *Solid State Commun.* **54** 725
Bedanov V M, Gadiyak G V and Lozovik Yu E 1985 *Phys. Lett. A* **109** 289

APÊNDICE C

Molecular states of two vertically coupled systems of classical charged particles confined by a Coulomb potential [Phys. Rev. B 76, 035336 (2007)]

Molecular states of two vertically coupled systems of classical charged particles confined by a Coulomb potential

F. F. Munarin,¹ W. P. Ferreira,^{1,*} G. A. Farias,¹ and F. M. Peeters^{2,†}¹*Departamento de Física, Universidade Federal do Ceará, Caixa Postal 6030, Campus do Pici, 60455-760 Fortaleza, Ceará, Brazil*²*Department of Physics, University of Antwerp, Groenenborgerlaan 171, B-2020 Antwerpen, Belgium*

(Received 20 February 2007; revised manuscript received 7 May 2007; published 26 July 2007)

We numerically study the structure and the normal-mode spectrum of two vertically coupled finite-size two-dimensional systems of interacting classical charged particles that are confined by a nonuniform distribution of background charge. The structural and dynamical properties of the system are analyzed as a function of the separation between the planes of charges (d), as well as a function of the strength of the confinement potential (Z). We find different asymmetrical ground-state configurations, as well as structural phase transitions induced by the unbinding of particles, which were not present in previous models with a parabolic confinement potential. Depending on the order of the structural transition the normal-mode frequencies exhibit a discontinuity or a softening.

DOI: [10.1103/PhysRevB.76.035336](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.76.035336)

PACS number(s): 36.40.Ei, 64.90.+b, 83.10.Tv

I. INTRODUCTION

A systematic study of the structural and dynamical properties of the classical version of the two-dimensional (2D) quantum dot (also called artificial atoms) has been made in recent years.^{1–6} Such a classical approach of the problem serves as a good starting point for more demanding quantum-mechanical calculations. At low temperatures and in the presence of high magnetic fields, electrons in quantum dots become localized and can be approximated as pointlike charges. In this limit, some structural and melting properties of the original quantum system can already be obtained through a classical approach.⁷ The classical 2D system is usually modeled as N pointlike charges confined by an external potential, which is most often chosen to be the parabolic one and which is equivalent to a uniform background of neutralizing charge.

For a small number of particles the symmetry of the parabolic confinement potential is imposed over the triangular structure as favored by the repulsive Coulomb interaction between the charges. As a result, a circular shell structure is observed as ground state.^{1,2,7} However, if a different confinement potential, e.g., resulting from a nonuniform neutralizing background, is considered, the electrostatic correlations between particles become more important, especially in the limit of a weak confinement potential.^{5,8} In such a situation, spontaneous symmetry breaking and very interesting asymmetrical ground-state configurations as well as a nontrivial melting behavior were predicted.^{5,8,9}

Motivated by the increased interest in laterally coupled quantum dots^{10–15} and by the fact that many properties of quantum systems can be already observed in a classical approach, the behavior of the classical double-layer system of charged particles was recently studied for both vertical and horizontal types of coupling cases.^{16,17} Due to the two-dimensional nature of the system, the choice of vertical or horizontal coupling will lead to different structural properties of the system. Once more, we stress that in the previous classical approaches only a parabolic type of confinement was considered. In a first step such a confinement is very

suitable, but it is also worth commenting that some interesting physical properties appear only when corrections are added to the parabolic potential—e.g., the violation of the Kohn theorem¹⁹ and an observable anticrossing behavior in the power absorption spectrum.^{20,21}

We extend our previous work^{5,8} to vertically coupled dots and concentrate on the effects due to a nonparabolic type of confinement potential on the structural and dynamical properties. The present model system is not completely academic but it can be related to the “superatom” system introduced by Watanabe and Inoshita.²² The superatom is a circular modulation-doped heterojunction. In particular, it is a quasi-atomic system that consists of a circular donor-doped core and a surrounding impurity-free matrix with a larger electron affinity. The quantum-mechanical electron structure of this system was studied in Ref. 23, and it was found that due to the absence of the $1/r$ singularity in the potential, the ordering of the energy levels is dominated by the no-radial-node states, in contrast to real atoms, where s and p states are dominant.

Apart from the above-mentioned analogy with quantum dots in the classical limit, there exist other experimentally realized systems that behave purely classically and for which our study is relevant. Examples are charged colloidal suspensions where it was found recently that correlation effects between the counterions can result into an overscreening and attraction between like-charged colloids.^{18,24} In addition, we can also cite dusty plasmas and magnetic colloids^{25–27} where 2D dotlike structures have been realized.

This paper is organized as follows. In Sec. II, we describe the mathematical model and our numerical approach to obtain the configurations and frequencies of the normal modes. The results and discussions of our numerical simulations are given in Sec. III. Our conclusions are presented in Sec. IV.

II. MODEL

Our system consists of $2N$ negatively charged particles, which we label now as electrons, evenly distributed in two planes or layers which are separated at a distance d . The

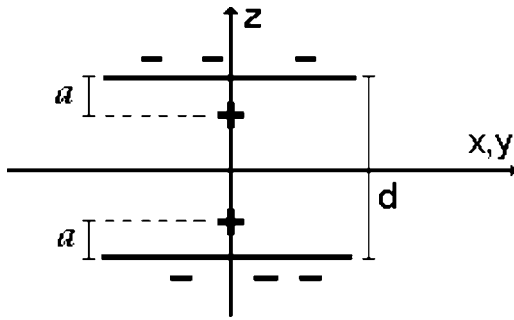


FIG. 1. Schematic view of the model system where the positive confinement charges are placed in the internal region between the planes.

electrons in each layer are kept together by two positive charges (each one equal to Z) which are located between those two planes. A schematic view of the system is shown in Fig. 1. The positive charge is displaced a distance a from the electron plane and is assumed to be the same for both electron layers. From now on we label this system as the Coulomb confined molecule (CCM).

The potential energy of the CCM system is given by

$$H = -\frac{Ze^2}{\epsilon} \left(\sum_{(I,II)}^N \frac{1}{\sqrt{r_i^2 + a^2}} + \sum_{(I,II)}^N \frac{1}{\sqrt{r_i^2 + (a-d)^2}} \right) + \frac{e^2}{\epsilon} \left(\sum_{(I,II)}^N \frac{1}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} + \sum_{(I)}^N \sum_{(II)}^N \frac{1}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j + d^2|} \right), \quad (1)$$

where (I, II) represent the sums over particles in the respective layers. Here the symbol ϵ stands for the dielectric constant, $\mathbf{r} = \{x, y\}$ is the two-component position vector in 2D space, and $|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j + d^2|$ represents the distance between the electrons in the distinct electron planes.

We introduce units for the energy $E_0 = e^2/\epsilon a$ and distances a . This allows us to rewrite Eq. (1) in the dimensionless form

$$H = -\sum_{(I,II)}^N \frac{Z}{\sqrt{r_i^2 + 1}} - \sum_{(I,II)}^N \frac{Z}{\sqrt{r_i^2 + (d-1)^2}} + \sum_{(I,II)}^N \frac{1}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} + \sum_{(I)}^N \sum_{(II)}^N \frac{1}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j + d^2|}. \quad (2)$$

The ground-state configurations of the system were obtained through the standard Metropolis algorithm (at zero temperature) combined with the modified Newton method to increase the accuracy of the ground-state energy.² The numerical procedure considered in this paper allowed us to obtain a different number of stable states, which depends on N and Z . From all the obtained stable states, the one with lower energy was taken as the ground-state configuration. To check if a configuration is stable, we calculated, using the Householder diagonalization technique, the eigenvalues of the dynamical matrix,

$$H_{\alpha\beta,ij} = \sum_{i=1}^N \frac{\partial^2 H}{\partial r_{\alpha,i} \partial r_{\beta,j}}, \quad (3)$$

which give us the square of the frequencies of the normal modes of the system ($\alpha, \beta = x, y$ and i, j indicates the particle number). The configuration was taken as final when all frequencies of the normal modes were positive. When $N \ll Z$ we showed before^{5,6} that the structural and dynamical properties of the single-layer Coulomb-confined system become the same as the ones observed for the classical parabolic confined dot.¹ We also found that the unit of frequency is proportional to the square root of the confinement charge—i.e., $\omega_0 = \sqrt{e^2/m\epsilon a^3} \sqrt{Z/2}$.⁶ In the present paper we use ω_0 for the unit of frequency.

III. RESULTS AND DISCUSSIONS

The structure and the normal-mode spectrum of the system will be studied as a function of the distance $(d-2)$ between the confinement positive charges and the strength of the confinement potential (Z). As mentioned before, in the limit $Z \gg N$ the single-layer Coulomb-confined system behaves similar to the previously studied parabolic-confined system.¹ We found that this is also true when we consider the present system in the same limit and with the confinement charges in the region outside the planes of electrons. The vertically coupled system confined by a parabolic potential was studied previously by Partoens *et al.*¹⁶

For the configuration shown in Fig. 1, we will focus on the neutral ($Z=N$) and the underconfined ($Z < N$) cases. In these limits the electronic correlation effects are the most pronounced and dominate the physical properties of the system. We find that the main features of the present model can already be observed if we consider the small, but nontrivial cluster with $2N=6$ particles. However, results for clusters with different numbers of particles will also be presented for completeness.

In order to better observe how the ground-state configuration is affected by the distance between layers or, more precisely, between the two Coulomb-confined atoms $(d-2)$, we investigate the distance of each particle from the z axis (r_i) as a function of $(d-2)$. The dependence of the structural properties on the intensity of the confinement potential will also be considered.

We start showing r_i as a function $(d-2)$ for the cluster with $2N=6$ particles in the neutral case $2Z=6$. Notice that all particles in both layers have the same value of r_i , which depends on $(d-2)$. The corresponding ground-state configuration is an equilateral triangle in each layer, and the two triangles are rotated with respect to each other in order to maximize the interlayer particle distances. Note that the size of the triangles increases with increasing value of $(d-2)$, which is a consequence of the weaker interaction between the confinement charge (Ze) of one layer and the particles in the other plane. The behavior of r_i shown in Fig. 2(a) indicates that for a sufficiently large value of $(d-2)$ the distances of all particles to the z axis approaches a constant value. The long-range nature of the Coulomb interaction implies that the

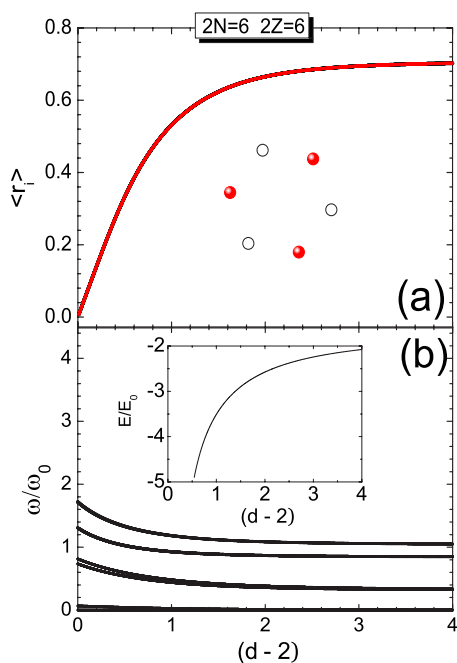


FIG. 2. (Color online) (a) Distance of each particle from the z axis as a function of the separation between the positive charges $(d-2)$, for a system with $2N=6$ and $2Z=6$. (b) Normal-mode frequencies as a function of $(d-2)$ for the same system. The energy of the minimum-energy configuration as a function of $(d-2)$ is shown in the inset of (b). An example of the ground-state configuration is presented in the inset of (a). Open and solid circles represent particles in different layers.

system will never be independent, but for a sufficiently large value of d the contribution of the interaction between particles in distinct planes is small enough not to influence the configuration (and the energy) of the separate layers. For example, for the case shown in Fig. 2(a), we found that for $(d-2) \geq 3.5$ the distance of each particle from the z axis is already $r_i \approx 0.707$, which is the same distance observed in the single-layer system with $N=3$ and $Z=3$.^{5,6,8}

The energy as a function of $(d-2)$ is shown in the inset of Fig. 2(b). No structural phase transition is observed when d is changed, implying that the first and second derivatives of the energy with respect to $(d-2)$ are continuous. Thus the system continuously transits from a moleculelike behavior, where there is a strong coupling between the particles on the distinct layers, to an atomlike behavior, where the contribution of the Coulomb interaction between particles in distinct layers is very small.

The normal-mode spectrum, as a function of $(d-2)$, for the same cluster is shown in Fig. 2(b). For large values of $(d-2)$ the normal-mode frequencies become the same as the ones of the single system with $N=3$ and $Z=3$. In the opposite case—i.e., for small separation between layer—some of the degeneracies are lifted. The behavior of the normal-mode spectrum corroborates the idea that the planes of particles behave like independent systems for large values of $(d-2)$. The particular arrangement of the positive charges shown in Fig. 1 screens the interaction between particles in distinct layers. Only for small values of $(d-2)$ does such an interac-

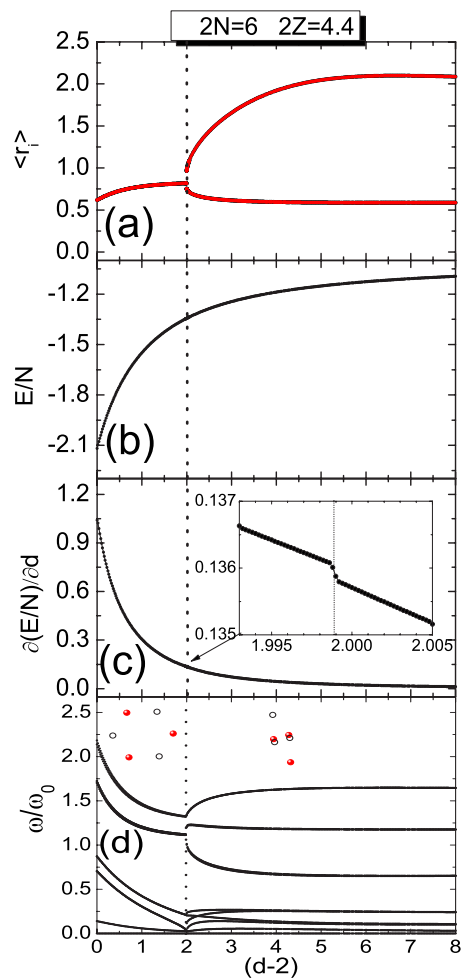


FIG. 3. (Color online) (a) The distance of each particle from the z axis, (b) the energy, (c) the first derivative of the energy with respect to $(d-2)$, and (d) normal-mode frequencies as a function of $(d-2)$ for a cluster with $2N=6$, $2Z=4.4$. Examples of the ground-state configuration of the system are presented as inset in (d). Open and solid symbols represent particles in distinct layers.

tion become strong enough to modify the system.

According to Ref. 8, a stable single-layer Coulomb-confined system with N electrons is only possible if the condition $Z > N - 1$ is met. If this requirement is not fulfilled, one or more electrons become unbound; i.e., they move to infinity. The situation $N > Z > N - 1$ is referred to as the over-screened case.

The sketch presented in Fig. 1 suggests that the electrons in each plane are confined by both positive charges for any finite distance d . However, the effective interaction between the electrons and the positive confinement charges depends on d . We can argue that the electrons in each layer are confined by the charge $2Z$ only when $(d-2)=0$. If $d > 2$, the Coulomb interaction between electrons in one layer and the positive charge of the other layer is smaller than the interaction between these electrons and their own confinement charge, in order that the effective confinement charge of the electrons in each layer is smaller than $2Z$, but still larger than Z . Note that when $d \rightarrow \infty$ the effective confinement charge for the electrons in each layer becomes Z , since the Coulomb

interaction between electrons and the second confinement charge becomes negligible. Thus, for finite values of d , such a confinement charge is effectively larger than Z .

Again, we stress that the arrangement presented in Fig. 1 suggests that it is possible to obtain stable ground-state configurations by considering, for instance, a system with $2N = 6$ electrons and $2Z = 4.4$. In this case, the effective confinement charge for the electrons in each layer is $Z_{\text{eff}} > 2.2$, which is, in principle, in agreement with the condition given in Ref. 8. However, if we consider that such a criterion should take into account all charges in the system, as done in Ref. 8, then we find that the condition $2Z > 2N - 1$ is no longer obeyed.

The results for the distance of each electron (r_i) from the z axis as a function of the separation between the confinement charges ($d-2$) are presented in Fig. 3(a). As can be observed, for $(d-2) \leq 1.999$, the negative particles of both planes stay at the same distance from the z axis, forming an equilateral triangle in each plane [see the inset in Fig. 3(c)]. For $(d-2) \approx 1.999$, a sudden structural change takes place in the system [see the inset in Fig. 3(c)]. Such a change is associated with a first-order structural phase transition, which is confirmed by Fig. 3(c) where a discontinuity of the first derivative of the energy with respect to $(d-2)$ is observed at $(d-2) \approx 1.999$. The energy is continuous for all values of $(d-2)$. Note that all particles are bounded (i.e., confined) for all values of $(d-2)$. The excess of negative charge (overcharge) in the system is $\Delta q = 1.6$, which is larger than the allowed overcharge in the one-layer system.⁸ The overcharge is due to the screening (by the positive charges) of the interaction between electrons in distinct planes. We found that when the positive charges are placed at the region external to the layers, there is no screening in the interaction between electrons in distinct layers and the overcharge is always $\Delta q < 1$, as in the single-layer system. Note that the electrons in distinct planes could be seen as counter-ions adsorbed on the surface of a large colloidal particle. The present model already demonstrates overcharging,¹⁸ which here is a consequence of the screening of the interaction between the counter-ions.

Now we present some other interesting and nontrivial features of the present model. To do so we choose some particular distances d between layers and we study the system as a function of the confinement charge Z . In general, we found that asymmetric ground-state configurations and spontaneous symmetry breaking can appear as function of (d, Z) . When Z is sufficiently decreased to confine a certain number of particles, one electron may suddenly leave the system and go to infinity. Such an unbinding process or “evaporation” of particle is characterized by a first-order structural phase transition.

As an example, the average distance of each particle from the z axis (r_i) and the frequencies of the normal modes as a function of Z are presented in Fig. 4 for the cluster with $2N \leq 6$ particles. The distance between the positive charges is chosen to be $(d-2) = 2$. We define in Fig. 4 nine different regions which are associated with distinct ground-state configurations, separated from each other by first- or second-order structural transitions.

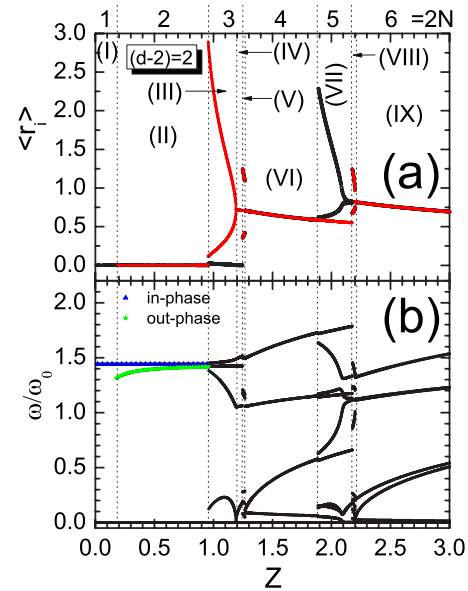


FIG. 4. (Color online) (a) The distance of each particle from the z -axis as a function of Z for a cluster with $2N \leq 6$, and $(d-2) = 2$. Black and red curves represent the positions of particles in distinct layers. On top of this figure the number of confined particles is given. (b) The normal mode frequencies as a function of Z . The frequencies of the in-phase (blue circles) and the out-of-phase (green stars) vibration of the particles around the center of the confinement charge in each plane, Eqs. (5) and (6), respectively, are also presented.

We start with the region (IX) ($Z \geq 2.201$), where particles in each layer are located at the vertices of an equilateral triangle. Viewing from the top [Fig. 5(a)], the equilateral triangles are orientated with respect to each other, forming a hexagon, which indicates a correlation between particles sitting in distinct layers. When $Z = 2.201$ the system suffers a first-order structural phase transition to region (VIII) ($2.175 \leq Z < 2.201$). Such a transition is characterized by an abrupt change of the positions of the particles as a function of Z . The new ground state configuration is shown in Fig. 5(b). The particles in each layer are now located at the vertices of isosceles triangles, which are oriented with respect to each other. The intensity of the confinement potential is not strong enough to keep all particles at the same distance, which means that the electrostatic correlations between the electrons already start to dominate the structure of the cluster since the circular symmetry of the confinement potential is no longer reflected in the symmetry of the ground-state configuration.

For $Z = 2.175$ another abrupt structural transition takes place, leading the system to region (VII) ($1.857 \leq Z < 2.175$), where now the configurations in each layer are different [Fig. 5(c)]. The transition from region (VIII) to region (VII) is characterized by the unbinding of a single particle. Such an asymmetrical evaporation process results in a spontaneous symmetry breaking of the ground-state configuration of the entire system. The ground-state configuration observed in region (VII) is also observed in regions (IX) and (VIII), but as a metastable state. As an example, for $Z = 2.22$ [region (IX)] the ground-state configuration [Fig. 5(a)]

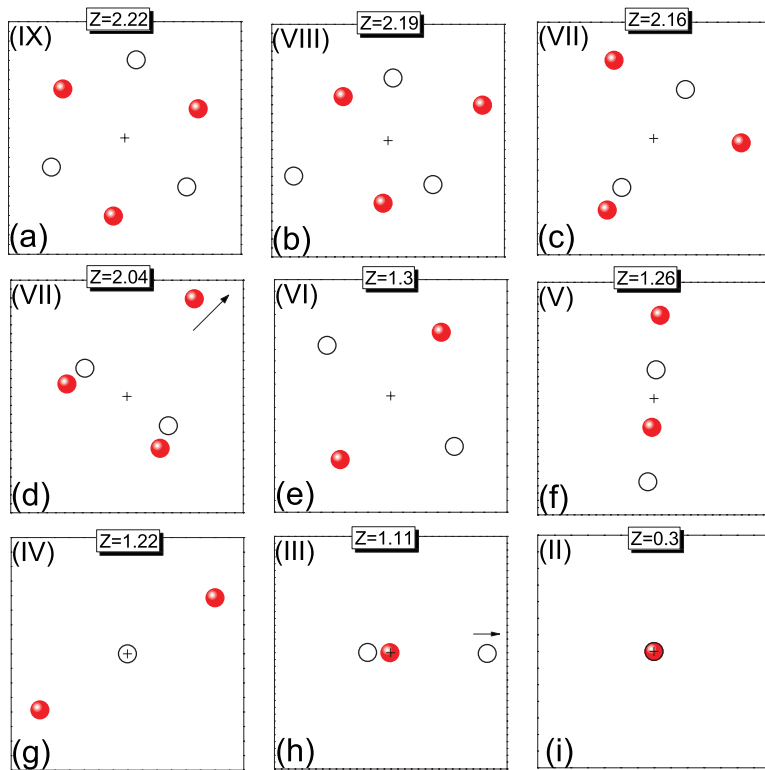


FIG. 5. (Color online) Top view of the ground-state configurations of the system with $2N \leq 6$ and $(d-2)=2$ in the different regions of Fig. 4. Particles in distinct layers are represented by different symbols (open black circles and closed red spheres). The z axis is located by the black cross.

is observed with energy $E_{ground} = -1.365\,853$, while the metastable state corresponding to the configuration shown in Fig. 5(c) has energy $E_{meta} = -1.359\,902$. Notice that the ground-state configuration is determined by the competition between the attractive confinement potential and the repulsive interaction potential between the negative particles. In this case, the unbinding of one particle results in a larger confinement energy for the remaining particles, resulting in a larger energy of the entire system.

When Z is further decreased in region (VII) the configuration changes continuously in order to reach a more symmetrical arrangement of the particles. As a consequence, one electron of the layer with $N=3$ leaves the system in a continuous way up to $Z=1.857$ [Fig. 5(d)], where it suddenly becomes unbound. The system is now in region (VI) ($1.268 \leq Z < 1.857$) with a very symmetrical minimum-energy configuration and with two particles in each layer [see Fig. 5(e)]. The evaporation of two particles makes again the confinement potential the dominant term imposing the symmetry of the ground state.

For $Z=1.268$ a new first-order structural phase transition takes place, leading the system to the small region (V) ($1.247 \leq Z < 1.268$), where a very nontrivial ground-state configuration is observed [Fig. 5(f)]. It is interesting to notice that in spite of the evenly distributed number of particles in the planes, the configuration is asymmetric; i.e., particles in each layer are located at different distances from the z axis. The symmetrical configuration observed in region (VI) is still obtained as a stable state in region (V), but with higher energy. For example, for $Z=1.26$ the ground-state configuration [Fig. 5(f)] has energy $E_{ground} = -0.561\,026$, while the symmetrical configuration similar to the one observed in region (VI) appears as a metastable state with energy $E_{meta} = -0.560\,911$.

For $Z=1.247$ the system reaches region (IV) ($1.192 \leq Z < 1.247$) through a new first order structural phase transition, which is associated with the unbinding of one more particle. The system has now a different number of particles in each layer [Fig. 5(g)]. The asymmetrical number of particles in the layers observed in region (IV) occurs only over a very short interval of Z . For $Z=1.192$ the ground-state configuration changes rapidly and continuously, which is a second-order structural transition. Such a transition is characterized by the softening of one of the normal-mode frequencies [see Fig. 4(b)]; i.e., one of the normal-mode frequencies becomes zero at the transition point.

The system now is in region (III) ($0.956 \leq Z < 1.192$), where another particle starts to leave the system, becoming unbound at $Z=0.956$, through a new first-order structural transition to region (II) ($0.190 \leq Z < 0.956$), where both particles are sitting on the top of its respective positive charge. A further decrease of the confinement charge generates a new first-order structural phase transition to region (I), in which only one particle remains on top of its positive charge. This occurs for $Z \approx 0.190$. In general, we found that the value of Z corresponding to such a transition is given by the expression

$$Z = \frac{d-1}{d^2}, \quad (4)$$

which is obtained by making the energy of the system with two particles equal to the energy of the system with only one particle.

The corresponding normal-mode frequencies of the configurations are presented in Fig. 4(b). In general, the normal-mode frequencies are more degenerate when the ground state

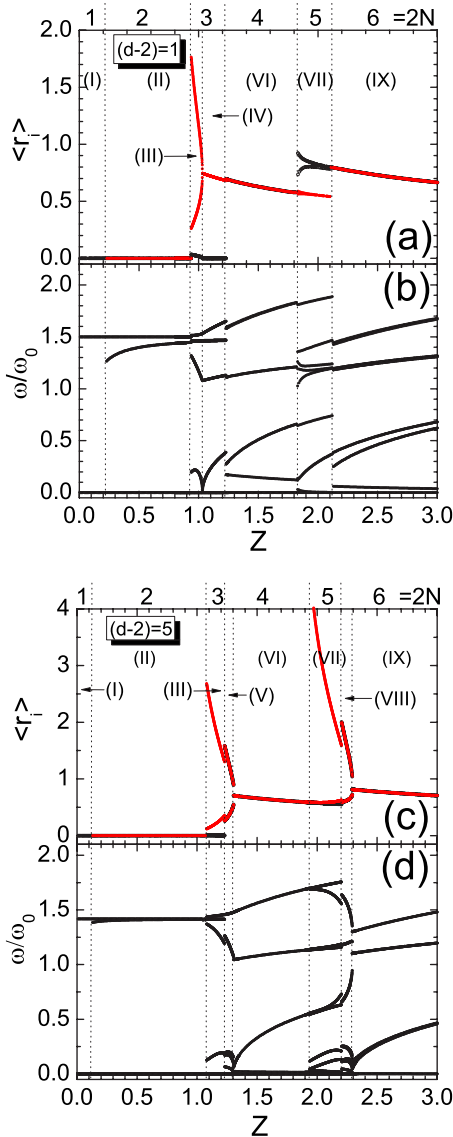


FIG. 6. (Color online) The same as Fig. 4 but now for (a), (b) $(d-2)=1$ and (c), (d) $(d-2)=5$.

is symmetric. These modes are very sensitive to first- and second-order structural phase transitions. For first-order structural changes the frequencies exhibit abrupt jumps at the transition points, while for second-order transitions there is a softening of one of the modes.¹⁵

For all values of Z there is one mode with $\omega=0$, which is associated with the rotation of the entire system around the z axis. The normal-mode frequencies depend on the strength of the confinement potential. There is an exception in region (II), where a nonzero mode with constant frequency is observed. This is the in-phase vibration of the particles around the center of the confinement potential—i.e., the center of mass (c.m.) mode. Note that in region (II) there is another mode which decreases with decreasing value of Z , and it is the out-of-phase c.m. mode; i.e., the particles in distinct planes oscillate always in the opposite direction around the z axis. A simple calculation gives us, respectively, the following expressions for the in-phase and for the out-of-phase vibration of the c.m. mode:

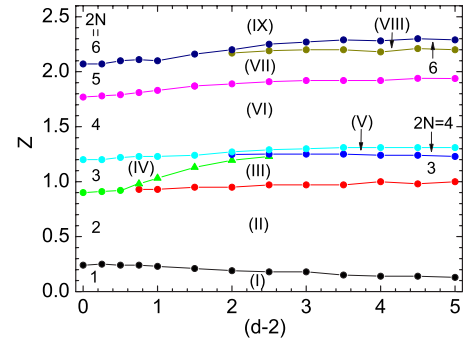


FIG. 7. (Color online) Phase diagram $Z \times (d-2)$ for the ground-state configurations of the system with $2N \leq 6$. The number of particles, $2N$, in each region is also presented. First- and second-order structural phase transitions are represented by circles and triangles, respectively.

$$\omega_{in} \approx \sqrt{Z + \frac{Z}{(d-1)^3}}, \quad (5)$$

$$\omega_{out} \approx \sqrt{Z + \frac{Z}{(d-1)^3} - \frac{2N}{d^3}}. \quad (6)$$

The frequencies obtained from Eqs. (5) and (6) are, respectively, shown in Fig. 4(b) as blue triangles (in-phase vibration) and green stars (out-of-phase vibration). Due to the nature of the confinement potential, which is associated with a nonhomogeneous charge distribution, there is not always a center-of-mass mode for any number of particles in the system, in contrast to the parabolic-confined case. In region (I), there is only one particle and its motion is the same as the one of the center of mass.

As suggested by Eq. (2) the physical properties of the system are also ruled by the distance between the layers d . To illustrate this we show in Fig. 6 results for different distances between the confinement charges: namely, $(d-2)=1$ and $(d-2)=5$. The regions labeled in these figures correspond to the same configurations shown before in Fig. 5. As can be seen in Figs. 6(a) and 6(c) some configurations observed for $(d-2)=2$ (Fig. 4) are now absent. For example, for $(d-2)=1$ the configurations associated with regions (VIII) and (V), in Fig. 5, are not observed. The cluster transits directly from region (IX) [Fig. 5(a)] to region (VII) [Fig. 5(c)] and from region (VI) [Fig. 5(e)] to region (IV) [Fig. 5(d)]. In both cases there is evaporation of one charge, which leads the system to an unbalanced distribution of charges over the layers. The same is observed for $(d-2)=5$, but now the unbinding of one particle leads the system directly from region (V) [Fig. 5(f)] to region (III) [Fig. 5(h)].

The distance between layers also influences the normal-mode spectrum. In general, clusters with larger distance between layers present a more degenerated normal-mode spectrum due to the smaller interaction between charges of distinct layers. This fact can be seen, e.g., in Figs. 6(b) and 6(d). For instance, notice that in region II the out-phase vibration of the center-of-mass mode in the case $(d-2)=5$ is

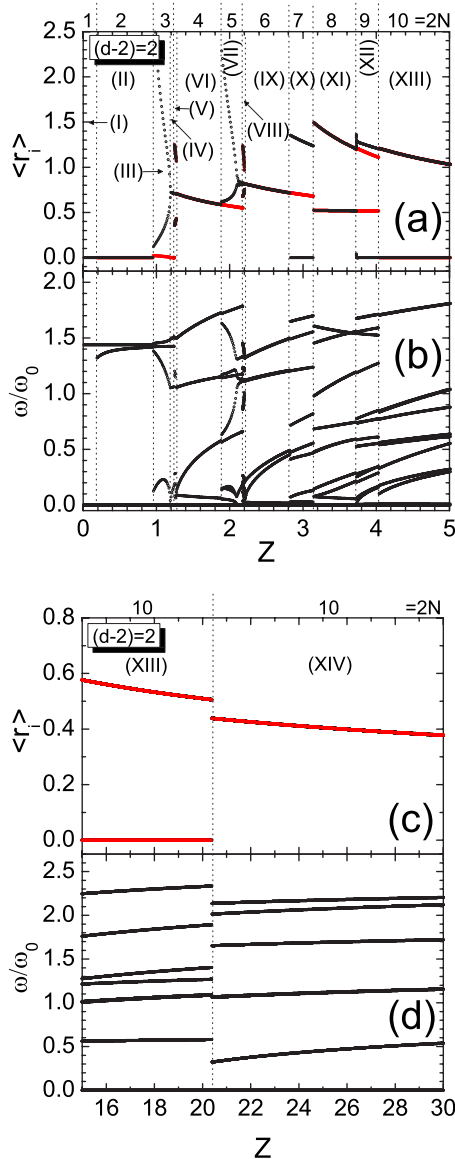


FIG. 8. (Color online) (a),(c) The distance of each particle from the z axis as a function of Z for the cluster with $2N \leq 10$ and with distance between the confinement charges $(d-2)=2$. Black and red curves represent the positions of particles in distinct layers. On top of these figures the number of confined particles is given. (b),(d) The normal-mode frequencies as a function of Z for the same cluster.

much less sensitive to Z than the same mode in the case $(d-2)=1$, where the interaction between particles in distinct layers is stronger.

The general dependence of the ground-state configurations of clusters with a maximum number of confined charges $2N \leq 6$ on the parameters Z and $(d-2)$ is summarized in the phase diagram $Z \times (d-2)$, presented in Fig. 7. The stability range of the different configurations depends on the parameters $(Z, (d-2))$. For example, the ground-state configuration associated with region (VIII) of Fig. 5 is observed only for $Z \geq 2$. Configurations (III), (IV), and (V) are only obtained for some values of $(Z, (d-2))$. The transitions between the different regions—i.e., configurations—occur

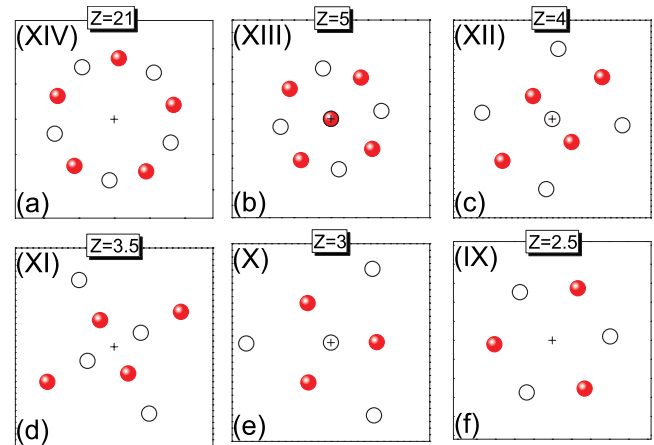


FIG. 9. (Color online) Top view of the ground-state configurations of the system with $2N \leq 10$ and $(d-2)=2$ for different regions of Fig. 8. Particles in distinct layers are represented by different symbols (open black circles and solid red spheres). The center of the system is given by the black cross.

most often through first-order structural transitions. The specific case of structural changes induced by the evaporation of one or more particles is always characterized by a first-order structural transition. Second-order structural changes were also obtained, but only between configurations (III) and (IV) (Fig. 7).

The main features presented for clusters with $2N \leq 6$ were also observed for other clusters with larger number of particles. Different ground-state configurations appear when the number of particles increases, but the general behaviors of the systems shown before are the same, as can be seen in Fig. 8 for clusters with $2N \leq 10$ [and $(d-2)=2$] as a function of Z . A larger number of regions were labeled, and the configurations associated with such new regions are presented in Fig. 9. The other regions—namely, (I),(II),..., (VIII)—are the same as the ones shown in Fig. 5.

IV. CONCLUSIONS

We numerically studied the different structural configurations and the corresponding normal-mode spectrum of two vertically coupled 2D systems of interacting classical particles confined by a nonuniform distribution of charge. As an example the background charge was taken to be pointlike. These properties were analyzed as a function of the separation between the planes of charges (d) , as well as a function of the strength of the confinement potential (Z) . Our findings were illustrated for the $2N \leq 6$ and $2N \leq 10$ molecule systems. The (d, Z) phase diagram exhibited a rich variety of first- and second-order structural phase transitions that delimit regions with symmetric and asymmetric configurations some of which are also associated with the unbinding of a particle.

In comparison to the previously studied parabolic vertically coupled dot systems by Partoens *et al.*,¹⁶ novel asymmetrical ground-state configurations were found as well as evaporation of particles. The competition between the attrac-

tive confinement potential and the repulsive interaction potential between the negative particles results in a rich and nontrivial set of equilibrium configurations.

The evaporation of one particle leads the system to an unbalanced distribution of charges over the planes and an asymmetrical ground-state configuration. Such a modification in the cluster is always characterized by a first-order structural transition.

The model system studied in the present paper also accounts for an overcharging which was found to be larger than the one found by Farias and Peeters⁸ in case of a single Coulomb-confined system. The screening of the interaction between charges in distinct layers is the cause of stability of the ionic state, defined here by an excess of the confined charges in the system.

The normal-mode spectrum is very sensitive to the symmetry of the ground-state configuration and to structural

transitions observed in the system. In the former, a more degenerate spectrum is observed in contrast to the asymmetrical minimum-energy configurations. In the later, depending on the type of structural transition, a typical signature is observed in the normal-mode spectrum. For a first-order structural transition there is a sudden jump in the normal-mode spectrum, while for a second-order structural transition there is a softening of one of the frequencies.

ACKNOWLEDGMENTS

F.F.M., W.P.F., and G.A.F. were supported by the Brazilian National Research Councils CNPq and CAPES. Part of this work was supported by the Flemish Science Foundation (FWO-VI).

*wandenberg@fisica.ufc.br

†francois.peeters@ua.ac.be

¹V. M. Bedanov and F. M. Peeters, *Phys. Rev. B* **49**, 2667 (1994).

²V. A. Schweigert and F. M. Peeters, *Phys. Rev. B* **51**, 7700 (1995).

³M. Saint Jean, C. Even, and C. Guthmann, *Europhys. Lett.* **55**, 45 (2001).

⁴M. Kong, B. Partoens, and F. M. Peeters, *Phys. Rev. E* **65**, 046602 (2002).

⁵W. P. Ferreira, A. Matulis, G. A. Farias, and F. M. Peeters, *Phys. Rev. E* **67**, 046601 (2003).

⁶W. P. Ferreira, F. M. Peeters, and G. A. Farias, *Phys. Rev. E* **68**, 066405 (2003).

⁷A. V. Filinov, M. Bonitz, and Yu. E. Lozovik, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 3851 (2001).

⁸G. A. Farias and F. M. Peeters, *Solid State Commun.* **100**, 711 (1996).

⁹W. P. Ferreira, B. Partoens, F. M. Peeters, and G. A. Farias, *Phys. Rev. E* **71**, 021501 (2005).

¹⁰H. Imamura, P. A. Maksym, and H. Aoki, *Phys. Rev. B* **59**, 5817 (1999).

¹¹S. Nagaraja, J.-P. Leburton, and R. M. Martin, *Phys. Rev. B* **60**, 8759 (1999).

¹²P. A. Maksym, H. Imamura, G. P. Mallon, and H. Aoki, *J. Phys.: Condens. Matter* **12**, R299 (2000).

¹³C. Yannouleas and U. Landman, *Eur. Phys. J. D* **16**, 373 (2001).

¹⁴A. Harju, S. Siljamäki, and R. M. Nieminen, *Phys. Rev. B* **65**,

075309 (2002).

¹⁵B. Szafran, F. M. Peeters, and S. Bednarek, *Phys. Rev. B* **70**, 205318 (2004).

¹⁶B. Partoens, V. A. Schweigert, and F. M. Peeters, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 3990 (1997).

¹⁷M. Marlo, M. Alatalo, A. Harju, and R. M. Nieminen, *Phys. Rev. B* **66**, 155322 (2002).

¹⁸R. Messina, C. Holm, and K. Kremer, *Phys. Rev. E* **64**, 021405 (2001).

¹⁹F. M. Peeters, *Phys. Rev. B* **42**, 1486 (1990).

²⁰Z. L. Ye and E. Zaremba, *Phys. Rev. B* **50**, 17217 (1994).

²¹B. P. van Zyl, E. Zaremba, and D. A. W. Hutchinson, *Phys. Rev. B* **61**, 002107 (2000).

²²H. Watanabe and T. Inoshita, *Optoelectron., Devices Technol.* **1**, 33 (1986).

²³T. Inoshita, S. Ohnishi, and A. Oshiyama, *Phys. Rev. B* **38**, 3733 (1988); E. A. Andryushin and A. P. Silin, *Fiz. Tverd. Tela (S.-Peterburg)* **33**, 211 (1991) [*Sov. Phys. Solid State* **33**, 123 (1991)].

²⁴B. I. Shklovskii, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3268 (1999).

²⁵J. H. Chu and Lin I, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 4009 (1994); A. Melzer, *Phys. Rev. E* **67**, 016411 (2003).

²⁶B. A. Grzybowski, H. A. Stone, and G. M. Whitesides, *Nature (London)* **405**, 1033 (2000); B. A. Grzybowski, X. Jiang, H. A. Stone, and G. M. Whitesides, *Phys. Rev. E* **64**, 011603 (2001).

²⁷R. Bubeck, C. Bechinger, S. Nesper, and P. Leiderer, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3364 (1999).

APÊNDICE D

Hysteresis and reentrant melting of a self-organized system of classical particles confined in a parabolic trap [Phys. Rev. E 77, 031608 (2008)]

Hysteresis and reentrant melting of a self-organized system of classical particles confined in a parabolic trap

F. F. Munarin,^{1,2,*} K. Nelissen,^{1,†} W. P. Ferreira,² G. A. Farias,² and F. M. Peeters^{1,‡}

¹*Department of Physics, University of Antwerp, Groenenborgerlaan 171, B-2020 Antwerpen, Belgium*

²*Departamento de Física, Universidade Federal do Ceará, Caixa Postal 6030, Campus do Pici, 60455-760 Fortaleza, Ceará, Brazil*

(Received 10 July 2007; revised manuscript received 3 December 2007; published 20 March 2008)

The melting of a self-organized system composed of classical particles confined in a two-dimensional parabolic trap and interacting through a potential with a short-range attractive part and a long-range repulsive potential is studied. Different behaviors of the melting temperature are found depending on the strength (B) of the attractive part of the interparticle potential. The melting of a system consisting of small bubbles takes place through a two-step melting process. A reentrant behavior and a thermally induced structural phase transition are observed in a small region of the (B, κ) space. A hysteresis effect in the configuration of the particles is observed as a function of temperature. This is a consequence of the presence of a potential barrier between different configurations of the system.

DOI: [10.1103/PhysRevE.77.031608](https://doi.org/10.1103/PhysRevE.77.031608)

PACS number(s): 64.60.Q-, 64.60.Cn, 61.46.-w, 75.60.Nt

I. INTRODUCTION

The study of the properties of self-organized systems has been an important topic of research in recent years. This interest originates from the possibility to control the formation of patterns having an important impact on applications that use large-scale self-assembly to create specific pattern morphologies. These kinds of structures occur in systems from diverse areas including chemistry [1] and biology [2]. In physics, it was predicted that systems which fall into this morphological category are generated by the competition between short-range attraction and long-range repulsion [3]. This competitive interaction appears in many systems, such as magnetic materials [4,5], colloids [6,7], and two-dimensional electron systems [8,9]. Experimentally, colloidal systems are one of the most studied systems, which, in combination with theoretical predictions, may lead to the design of novel soft materials and to an understanding of the glass and gel state of matter [10]. Recently, it was observed that a similar type of pattern formation can also arise in particular classes of ultrasoft colloids with a strictly repulsive interparticle potential [11].

Besides presenting a rich variety of cluster types and showing an excellent model for technological applications, colloidal systems have the added advantage of the facility to control the interaction between particles and of real-time imaging of their configuration through video microscopy. A wide variety of studies on colloidal systems were performed in order to understand the structure and dynamics of different kind of systems, such as colloidal particles interacting through a short-range attractive and long-range repulsive potential [12–14]. For instance, a binary system of superparamagnetic colloidal particles that are confined by a two-dimensional (2D) water-air interface and exposed to an external magnetic field perpendicular to the interface showed

diverse stable configurations [15]. Moreover, the authors observed that clustering appeared only for one type of particles, instead of both types of particles.

Recently, several models were developed having a small number of interacting particles in order to understand the behavior of colloidal systems as a function of temperature [16–18]. Different melting scenarios were studied extensively in systems consisting of charged particles for a range of different interparticle interaction and trap types. For example, systems of binary charged particles confined by a circular hard-wall potential interacting by a repulsive dipole potential [19], confined by a parabolic trap potential and interacting by a Coulomb interparticle potential [20,21], and nonconfined particles with short-range attraction and long-range repulsion interaction were studied theoretically [22].

Motivated by the increased interest in the behavior of systems of particles that are characterized by a competition between short-range attraction and long-range repulsion, we analyze here the melting of a system composed of a finite number of classical particles interacting through a potential which is composed of a repulsive Coulomb and an attractive exponential term. The particles move in a 2D plane that are confined by a parabolic trap. The zero-temperature configurations of this system were studied recently by Nelissen *et al.* [23]. They observed different topological configurations (e.g., ring, stripe, and bubble configurations). From these results arises the question about the stability of those different configurations against thermal fluctuations. This motivated us to study the melting of these ordered configurations and to analyze the effect of the interplay between the short-range and long range interactions on the melting process. We found that if one increases the temperature, some of the bubble configurations exhibit a thermally induced structural phase transition and a remarkable reentrant behavior. In addition, we found that this system exhibits hysteresis behavior for the mean radial displacement when we increase and decrease the temperature and the configuration goes through a thermally induced structural phase transition.

This paper is organized as follows. In Sec. II, we describe the mathematical model and the numerical approach to ob-

*munarin@fisica.ufc.br

†kwinten.nelissen@ua.ac.be

‡francois.peeters@ua.ac.be

tain the ground-state configurations. In Sec. III we analyze the melting process for different interparticle potentials. Temperature-induced reentrant and hysteresis effects are discussed in Sec. IV. Our conclusions are presented in Sec. V.

II. NUMERICAL APPROACH

We consider a 2D cluster with N classical particles interacting through a potential composed of a repulsive Coulomb and an attractive exponential term as in Refs. [22,23]. The particles are kept together by a parabolic potential centered at the origin. The general dimensionless Hamiltonian of the system is written as

$$H = \sum_{i=1}^N r_i^2 + \sum_{i>j=1}^N \left(\frac{1}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} - B e^{-\kappa|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} \right), \quad (1)$$

where $r_i \equiv |\mathbf{r}_i|$ is the distance of the i th particles from the center of the parabolic confinement. Energy and distance are in units of $E_0 = (m\omega_0^2 r_0^2/2)$ and $r_0 = (2q^2/m\epsilon\omega_0^2)^{1/2}$, respectively. Notice that the B parameter determines the exponential contribution in the Hamiltonian and it is responsible for the strength of the attractive part of the interparticle potential [the third term in Eq. (1)]. Temperature is expressed in units of $T_0 = E_0/k_B$, where k_B is the Boltzmann constant.

The ground-state configuration ($T=0$) of the two-dimensional system was obtained by the Monte Carlo (MC) simulation method (using the standard Metropolis algorithm [24]) extended with the Newton optimization method [25]. The particles were allowed to reach a steady-state configuration after 10^5 simulation steps, starting from different initial random positions. In the same time, we calculate the frequencies of the normal modes of the system using the Householder diagonalization technique [25]. The configuration was taken as final if all frequencies of the normal modes were positive and the energy did not decrease further.

In order to understand the trajectory of each particle correctly, we study the melting of the system using molecular dynamic (MD) simulation. The temperature of system was increased from $T=0$ (ground-state configuration) with successive steps of δT and equilibrated at the new temperature during 10^6 MD steps (with a typical step size of $\Delta t=0.001$). After this equilibrium, the average energy was calculated, together with the mean squared radial displacement given by

$$\langle u_R^2 \rangle \equiv \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (\langle r_i^2 \rangle - \langle r_i \rangle^2) / \rho^2, \quad (2)$$

where ρ is the average interparticle distance at zero temperature. The symbol $\langle \dots \rangle$ stands for an average over typically $10^6 - 10^7$ MD steps after equilibration of the system.

The system studied exhibits complex configurations [23], such as, e.g., the bubble configuration shown in the inset of Fig. 1, and presents interesting different melting processes. In order to understand better the melting behavior of the system, we analyze the mean radial displacement and angular disorder of the particles of the small bubbles as a function of temperature. In particular, we calculate the radial and angular disorder of each particle with respect to the center of

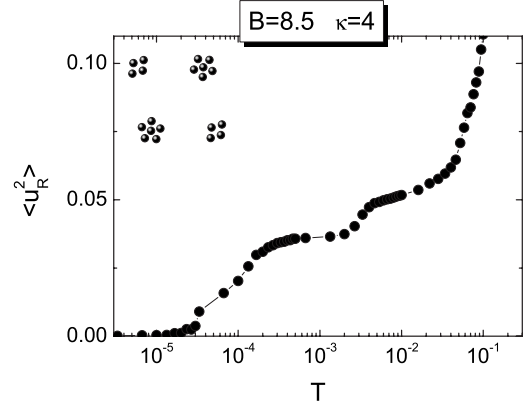


FIG. 1. The mean radial displacement for a system with $N=20$, $B=8.5$, and $\kappa=4$ as a function of temperature given in a logarithmic scale. The ground-state configuration is shown in the inset.

mass of the small bubbles to which it belongs. The mean local radial displacement is defined as

$$\langle u_{R(B)}^2 \rangle \equiv \frac{1}{N_c} \frac{1}{N_{sc}} \sum_{j=1}^{N_c} \sum_{i=1}^{N_{sc}} [\langle (r_j^{c.m.} - r_i)^2 \rangle - \langle (r_j^{c.m.} - r_i) \rangle^2] / \rho_B^2, \quad (3)$$

where N_c and N_{sc} are the number of small bubbles and the number of particles in each small bubble, respectively. $r_j^{c.m.}$ is the distance of the center of mass of the bubble from the center of the confinement potential, and ρ_B is the average distance between the particles of the same small bubble at zero temperature.

The angular disorder in the small clusters is studied using the angular intrashell displacement calculated locally. Previously, this property was used to calculate the angular disorder in the whole system [16,20], but here, we will calculate the angular disorder in each small bubble—i.e., with respect to the center of mass of the small agglomerate of particles, which is defined as

$$\langle u_{\theta(B)}^2 \rangle \equiv \frac{1}{N_c} \frac{1}{N_{sc}} \sum_{j=1}^{N_c} \sum_{i=1}^{N_{sc}} [\langle (\varphi_i - \varphi_{i_1})^2 \rangle - \langle (\varphi_i - \varphi_{i_1}) \rangle^2] / (\varphi_0^s)^2, \quad (4)$$

where i_1 indicates the nearest neighbor in the same bubble and $\varphi_0^s = 2\pi/N_{sc}$ is the average density of particles in each small bubble at zero temperature.

Due to the rotation of the small bubble with respect to the confinement center, the center of mass of each small bubble is calculated in each MD step. Moreover, we calculate the angular disorder of the center of mass of each small bubble with respect to the center of confinement, which is defined as

$$\langle u_{\theta(c.m.)}^2 \rangle \equiv \frac{1}{N_c} \sum_{i=1}^{N_c} [\langle (\varphi_i - \varphi_{i_2})^2 \rangle - \langle (\varphi_i - \varphi_{i_2}) \rangle^2] / (\varphi_0^c)^2, \quad (5)$$

where i_2 indicates the nearest center of mass and $\varphi_0^c = 2\pi/N_c$ is the average density of small bubbles in the system at zero temperature.

The melting temperature was determined through a Lindemann-like criterion, which has been widely used for 2D finite-size clusters. This criterion states that melting occurs when $\langle u_R^2 \rangle$ reaches 0.1 of the interparticle distance at zero temperature [26]. But what is essential is that melting is characterized by a rapid increase of the fluctuation of particles when temperature reaches the melting temperature.

III. MELTING

We start analyzing the stability and the behavior of small bubbles as a function of temperature. To do so, we initially consider a cluster with $N=20$ particles, for $B=8.5$ and $\kappa=4$, which is characterized by small bubbles with a different number of particles—i.e., two small bubbles with four particles and two other ones with six particles (see inset in Fig. 1). The particles of the four-particle bubbles are arranged in a lozenge-type structure, while the six-particle bubbles present a circular ring-type configuration.

In Fig. 1, the mean radial displacement $\langle u_R^2 \rangle$ of the particles with respect to the center of confinement is shown as a function of temperature. As can be observed, $\langle u_R^2 \rangle$ increases gradually with increasing temperature and exhibits plateaus in some temperature intervals. These plateaus are usually an indication of the presence of thermally induced structural transitions before the system melts completely [29]. In order to study more deeply the structural transitions and the general behavior of the system before melting, we will make use of the properties previously defined in Sec. II.

Figure 2 shows the temperature dependence of the mean radial distance of each particle with respect to the center of the confinement potential $\langle r_i \rangle$ [Fig. 2(a)], the mean radial displacement $\langle u_{R(B)}^2 \rangle$, and the mean radial distance $\langle r_{i(B)} \rangle$ of each particle with respect to the center of mass of the small bubbles to which it belongs [Figs. 2(b) and 2(c), respectively]. The temperature dependence of the mean angular intrashell displacement of particles with respect to the center of mass of the small bubbles $\langle u_{\theta(B)}^2 \rangle$ and the mean angular intrashell displacement of the center of mass of the small bubbles with respect to the center of the confinement potential $\langle u_{\theta}^2(\text{c.m.}) \rangle$ is also shown in Figs. 2(d) and 2(e), respectively. These properties refer to the system with $N=20$ particles, $B=8.5$ and $\kappa=4$. In Figs. 2(a) and 2(c), the open and solid circles represent the positions of the particles in the four- and six-particle bubbles, respectively.

As can be seen in Fig. 2(c) for very small temperatures ($T \lesssim 5 \times 10^{-5}$), particles located at the edge of the six-particle bubbles are not at the same distance from the center of each bubble, which is a consequence of the positional correlation with the other particles in the system. When $T \approx 2 \times 10^{-4}$, Fig. 2(a) indicates that the distance of these particles becomes the same with respect to the center of the confinement potential, while Fig. 2(c) suggests that the ring-type configuration of the six-particle bubbles remains unaffected. Notice that for $T \approx 2 \times 10^{-4}$ (first vertical dotted line—from left to right) particles located at the edge of the six-particle bubbles are rearranged in order that a perfect circular ring-type structure is formed [Fig. 2(c)]. The apparently conflicting results presented in Figs. 2(a) and 2(c) can be understood by the fact

that we are considering the average value of the distance of the particles from the center of the confinement potential. The merging of the curves in Fig. 2(a) is a consequence of the rotation of the six-particle bubbles around their respective center, with the angular order within each of them kept unaltered [Fig. 2(d)]. The rotation of the six-particle bubbles becomes possible due to the increased symmetry of the small bubbles with respect to their center.

The same behavior of the six-particle bubbles is also observed in the four-particle bubbles, but at higher temperature. When $T \approx 3.3 \times 10^{-3}$ (second vertical dotted line), the particles of the four-particle bubbles arrange in a perfect circular ring [Fig. 2(c)]. At this temperature, we find that the internal angular order in each four-particle bubble is maintained since $\langle u_{\theta(B)}^2 \rangle \approx 0$. Notice that for $T < 3.3 \times 10^{-3}$ the lozenge-type structure of the four-particle bubbles remains intact [Fig. 2(c)].

A further increase of temperature brings the system to a drastic structural phase transition in the small bubbles as can be observed in Fig. 2(c) for $T \approx 0.01$ (third vertical dotted line). This figure shows that one particle of the six-particle bubble moves from the center to the edge of the small bubbles, while Fig. 2(d) shows that the angular order of the small bubbles is destroyed around $T \approx 0.01$. However, Fig. 2(a) shows that the position of the small bubbles with respect to the center of the confinement potential remains unaffected. These results indicate that after a thermally induced structural phase transition a local angular melting occurs in the small bubbles. This transition can also be identified as a typical plateau in the $\langle u_{R(B)}^2 \rangle$ curve shown in Fig. 2(b) for $T > 0.01$. A similar behavior of the $\langle u_{R(B)}^2 \rangle$ curve was found earlier [20,29], but in this case, the plateau is a consequence of a structural transition in only one kind of bubble—i.e., six-particle bubbles.

From Fig. 2(b) we find that the small bubbles melt when $T \approx 0.06$ (fourth vertical dotted line), destroying the angular order of the small bubbles with respect to the center of the confinement potential [Fig. 2(e)], and consequently it changes the configuration of the system [Fig. 2(a)]. For $T > 0.06$, the value of the mean radial displacement increases sharply and, according to the Lindemann criterion, it reaches the critical value ($\langle u_R^2 \rangle = 0.1$) at $T \approx 0.1$, indicating that the system melts (fifth vertical dotted line). It is important to mention that the small bubbles undergo a local rotation before melting indicating that the melting of this system proceeds via a local two-step process. Moreover, we observed that the melting temperature of this system is about 5 times higher than the melting temperature of a pure Coulomb system composed of $N=20$ identical particles ($T_m=0.012$). This fact indicates that the system composed of small bubbles are more stable than a pure Coulomb system.

In order to observe the influence of the configuration on the melting temperature, we show in Fig. 3 the melting temperature for the total system as a function of the B parameter for a system with $N=20$ and $\kappa=4$. We define in Fig. 3 three different regions associated with ring (I and III) and nonring configurations (II). Configurations of these regions are shown in Fig. 4. From Figs. 3 and 4 we see that for low B values (region I) the system is in a ring configuration, in region II the system is on a stripe or bubble configuration,

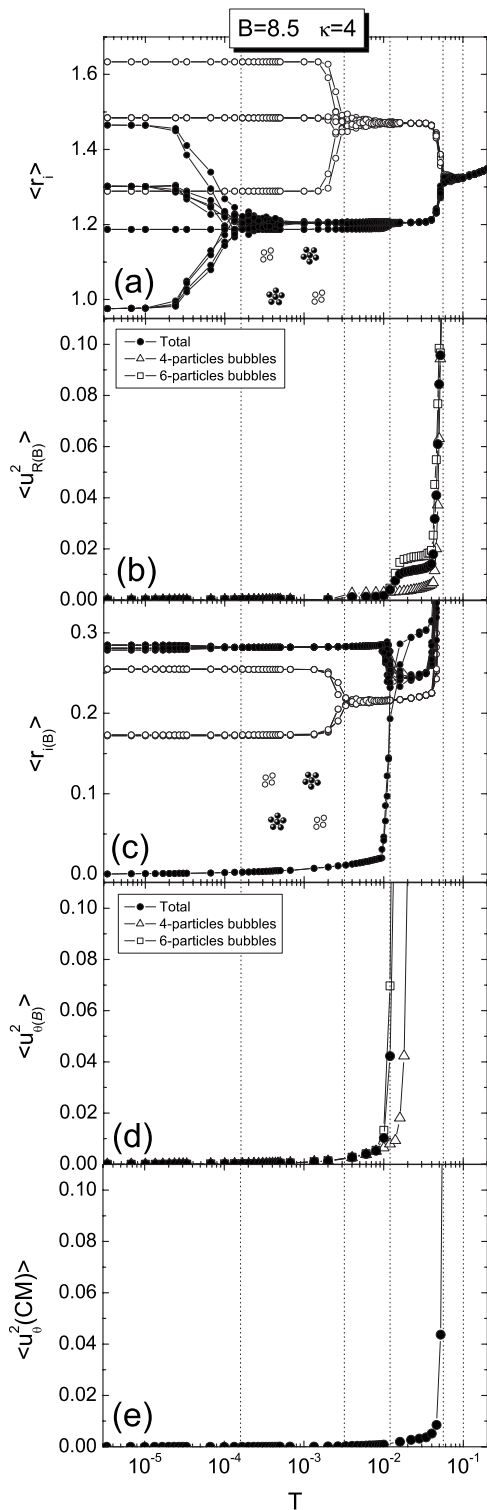


FIG. 2. The temperature dependence of (a) the mean radial displacement of each particle with respect to the confinement center, (b) the mean radial displacement, (c) the mean distance, and (d) the mean angular intrashell displacement of each particle with respect to the center of mass of the small bubbles. (e) The mean angular intrashell displacement of the center of mass of the small bubbles with respect to the confinement center. The open and solid circles in (a) and (c) represent the positions of the particles in the four- and six-particle bubbles, respectively. The temperature is given in a logarithmic scale.

and for large B value the system transforms again into a ring configuration (region III). The horizontal dotted line in Fig. 3 indicates the melting temperature of a pure Coulomb system with $N=20$ particles.

Figure 3(a) shows that the melting temperature in the region I decreases with increasing B value, indicating that the system becomes less stable. This behavior is surprising since B is the strength of the short-range attraction [see Eq. (1)], and one may expect that the larger the strength of the attraction, the more packed the particles are, and therefore the higher the melting temperature. This unexpected behavior is a consequence of the fact that the interparticle distance are such that the interparticle potential is purely repulsive in region I. In this region, when the value of B increases, the repulsive potential decreases [see Eq. (1)] and thus also the coupling strength among the particles, which leads to a softening of the normal modes and of the melting temperature.

The melting temperature continues decreasing up to the small value $T_m \approx 0.0013$, which is reached for $B=6.0$ —i.e., one order of magnitude smaller than the melting temperature of a pure Coulomb system $T_m=0.012$. For $B > 6.0$, the attraction between the particles starts to influence the system behavior and consequently the melting temperature increases due to the increase of the packing of the particles. For $B=6.8$, the attraction dominates the interaction potential between particles and the system changes its configuration from rings to stripes or bubbles (vertical dotted line between regions I and II).

Region II is composed of several kinds of configurations; some of them are shown in Figs. 4(b)–4(f). Notice that the number of small bubbles in region II decreases with increasing B . This is a consequence of the fact that the effective repulsion potential between particles decreases as a function of B [see Eq. (1)]. Thus, more particles can occupy a small bubble, decreasing the number of small bubbles and therefore increasing the distance between them as a function of B . As a consequence, the required energy for a particle to overcome the potential barrier between small bubbles increases as a function of B as well as the melting temperature as is apparent in region II of Fig. 3(a). The melting temperature in region II continues increasing as a function of B up to $B=14$ (vertical dotted line between regions II and III). At this B value, the system melts at $T_m=1.18$ —i.e., two orders of magnitude higher than the melting temperature of a pure Coulomb system—confirming that the system composed of bubbles is more stable than a Coulomb system. For $B=14$, the system transits back to a ring configuration, indicating that the strength of the short attraction potential between the particles is large enough to agglomerate all particles in a short distance. Since there are no small clusters present and consequently no large potential barrier for particles to overcome, the melting temperature decreases drastically and at the same time the system changes its configuration as shown in Fig. 3(a).

In region III an interesting behavior of the melting temperature curve can be observed. Figures 3(a) and 3(b) show that the melting temperature increases gradually as a function of B up to $B=60$ when it begins to decrease asymptotically. It is important to observe that this melting temperature behavior occurs when the system has the ring structure; i.e.,

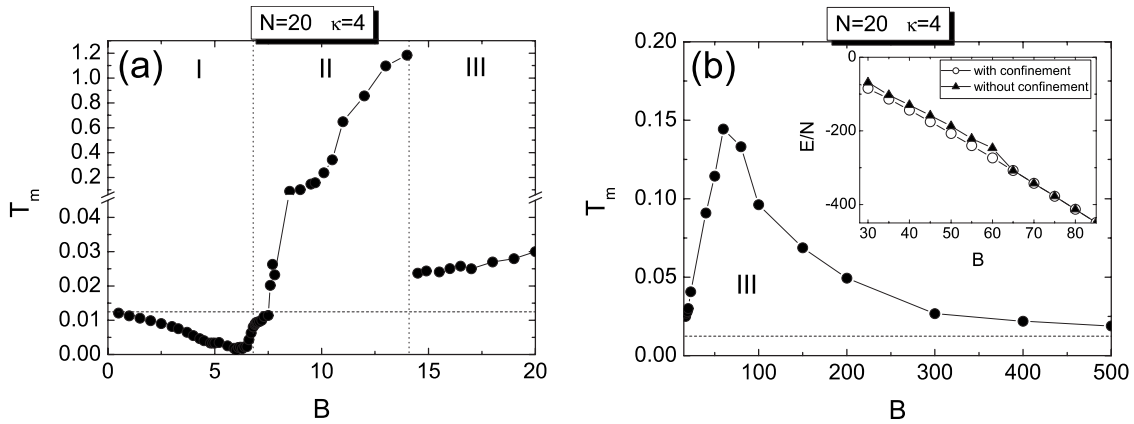


FIG. 3. The melting temperature (T_m) of the total system (i.e., transition to the disordered phase) as a function of B for a system with $N=20$ particles and $\kappa=4$. (a) is for small and (b) is for large B values. The horizontal dotted line indicates the melting temperature of a pure Coulomb system with $N=20$ particles. The energy per particles of this system with and without confinement potential are shown as the inset of (b).

the melting temperature of the system shows a large variation for the same structure. As in region II, the melting temperature increases in region III as a consequence of the decrease of the repulsion between particles and thus the system decreases its size due to the influence of the confinement potential. We observe a difference in the size of the system from Figs. 4(g) and 4(h), which show two configurations of region III in the same scale. For $B=60$, the system is so small that the confinement potential is no longer relevant (i.e., it is too weak) to compress the system. The system becomes internally stabilized solely due to the interparticle potential. The potential barrier preventing the hopping of particles between the rings decreases with increasing B , destabilizing the system and therefore decreasing the melting temperature. In order to confirm that the confinement potential does not influence the system for $B > 60$, we plot as an inset to Fig. 3(b) the minimum energy per particle for the system described by Eq. (1) with and without confinement potential for $N=20$ and $\kappa=4$. The energy of these two systems with and without confinement potential becomes the same around $B=60$, confirming that the system of bubbles is

no longer influenced by the confinement potential for $B > 60$.

We checked that the general behavior of the melting temperature of the total system (T_m) shown in Figs. 3(a) and 3(b) for the cluster with $N=20$ particles was also observed for $N=10, 30, 40$, and 50 particles, but now for a different value of the B parameter.

IV. STRUCTURAL BEHAVIOR

Recently, colloidal systems exhibited several new and interesting features, such as reentrant behavior [6,18,19,27] and a hysteresis effect [28]. In this section, we show for a specific short-range interaction that our system exhibits a different reentrant effect and a hysteresis behavior as a function of temperature.

A. Reentrant behavior

The temperature dependence of the mean-squared radial displacement $\langle u_R^2 \rangle$ is shown in Fig. 5(a) for a system with

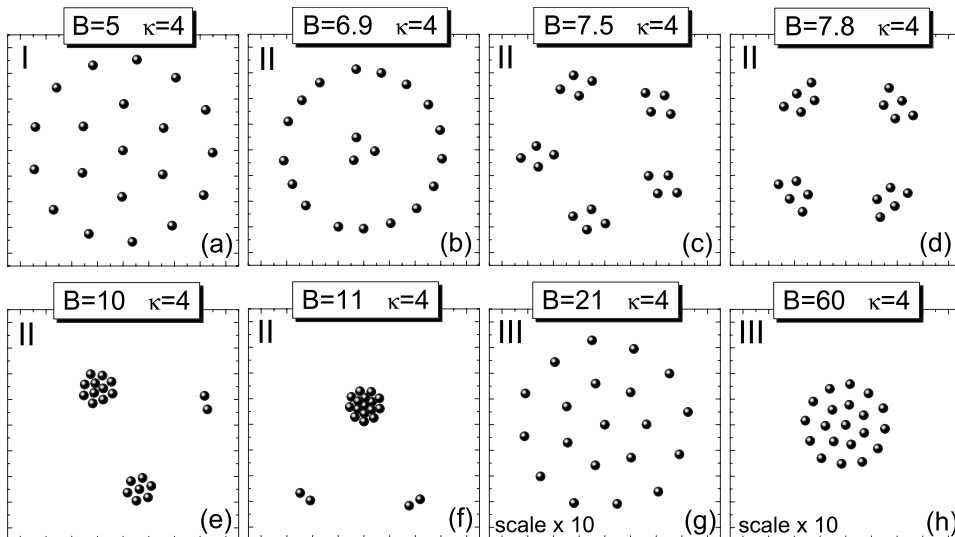


FIG. 4. Snapshots of the ground-state configuration for a system with $N=20$ particles, $\kappa=4$ and different values of B .

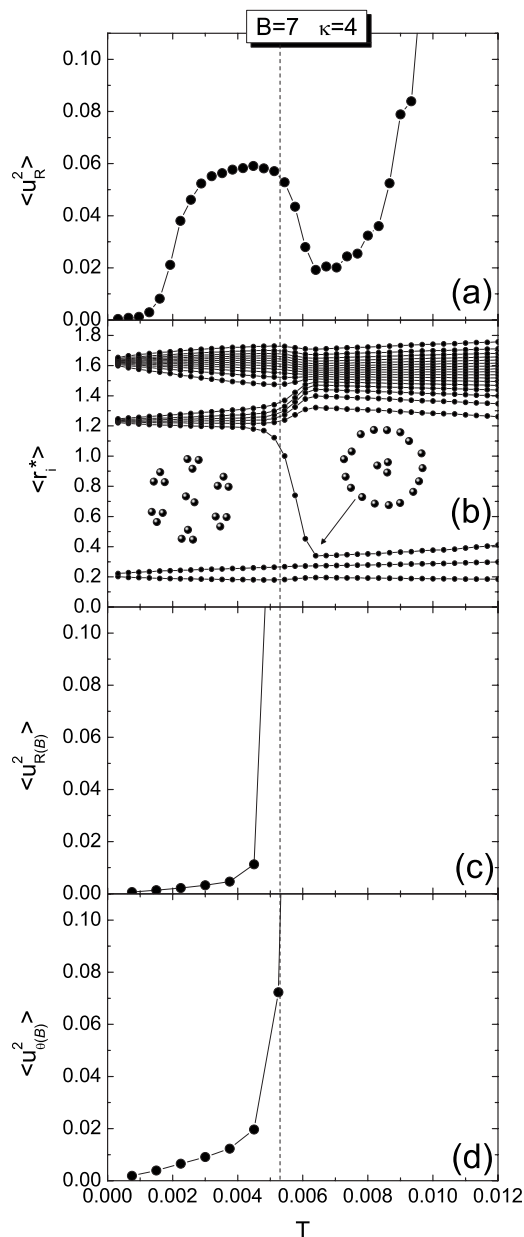


FIG. 5. (a) The mean radial displacement ($\langle u_R^2 \rangle$), (b) the mean distance of each particle from the center of the confinement potential, (c) the mean radial displacement, and (d) the angular intrashell displacement with respect to the center of mass of the small bubble for a system with $N=20$, $B=7$, and $\kappa=4$.

$B=7$ and $\kappa=4$. When the temperature increases from $T=0$ to $T=0.003$, the value of $\langle u_R^2 \rangle$ increases considerably until it reaches a semiplateau and remains almost constant until $T=0.0053$ (dashed line). For $T>0.0053$, we observe that the value of $\langle u_R^2 \rangle$ decreases rapidly before it increases sharply, indicating that the system melts. This reentrant behavior was observed in both experimental [6,27] and theoretical [18,19] studies, and in the present case, it is due to an increase of the stability of the whole system caused by an increase of the symmetry of the system configuration. In other words, the value of the mean radial displacement decreases after $T=0.0053$ as a result of the change in the configuration of the system.

In order to confirm that the reentrant behavior is caused by a change in the configuration, we plot in Fig. 5(b) the position of the particles with respect to the center of the confinement potential as a function of temperature. Specifically, in each MD step we organize the distance of each particle in such a way that $r_1, r_2, r_3, \dots, r_N$ correspond to the first, second, third, ..., N th closest particles from the center of the cluster, respectively. After that, we calculate the average of each closest distance $\langle r_i^* \rangle$ for each temperature and we present it as a function of temperature in Fig. 5(b). As can be seen, the system remains in the bubble configuration from $T=0$ to $T=0.0053$. We will label this configuration as $(2;6(3)^B)$, which means that there is 1 ring of 2 particles and 6 bubbles of 3 particles [see the left inset of Fig. 5(b)]. For $T>0.0053$, a particle leaves the edge and moves to the center of the system. The configuration changes from the bubble $(2;6(3)^B)$ to the ring configuration $(3;17)$, which means that there is a ring of 3 particles and another with 17 particles. The outer ring has a nonzero width. We observe from Figs. 5(a) and 5(b) that the value of the mean radial displacement decreases when the configuration changes from $(2;6(3)^B)$ to $(3;17)$ and increases rapidly when the temperature approaches the melting temperature of the ring configuration. Therefore, this change of configuration is a structural transition which stabilizes the system. This transition occurs before the system is completely melted and is a thermally induced structural phase transition. This interesting phenomenon was found in diverse previous studies [29–31], but in this case, it is the result of the increase of disorder in small bubbles when the temperature approaches $T=0.0053$.

In order to better understand the local disorder of the particles, we present in Figs. 5(c) and 5(d) the mean radial displacement and angular disorder of the particles of the small bubbles as a function of temperature, respectively, as defined in Sec. II. As we can see, the mean radial displacement and the angular disorder of the particles increase simultaneously very dramatically in each bubble when the temperature approaches $T=0.0053$ (dotted vertical line). The thermal fluctuation permits a particle to overcome the potential barrier allowing it to move to the center and consequently changing the system configuration from $(2;6(3)^B)$ to $(3;17)$.

Reentrant behavior was found in a small region of (κ, B) space which is shown in Fig. 6. We found that this interesting feature is the result of the interparticle potential profile which is illustrated in the inset of Fig. 6 for some values of B and κ . We observe that the interparticle potential for the system with $B=7$ and $\kappa=4$ is not so repulsive as that for $B=6$ and $\kappa=5$ and it is not so attractive as for $B=8$ and $\kappa=3$. Therefore, systems which have values of B and κ close to 7 and 4, respectively, are ideal to exhibit a reentrant behavior due to the characteristic of agglomerating particles that are sufficiently weakly bound to allow particles to overcome the potential barrier when temperature increases—i.e., a thermally induced structural phase transition.

The reentrant phenomenon present for the cluster with $N=20$ particles was also observed for other values of N —e.g., for $N=30$ particles. The general behavior of $\langle u_R^2 \rangle$ shown in Fig. 5(a) was also found for $N=30$ particles, but now for a slightly different region in (κ, B) space, as well as the thermally induced structural phase transition.

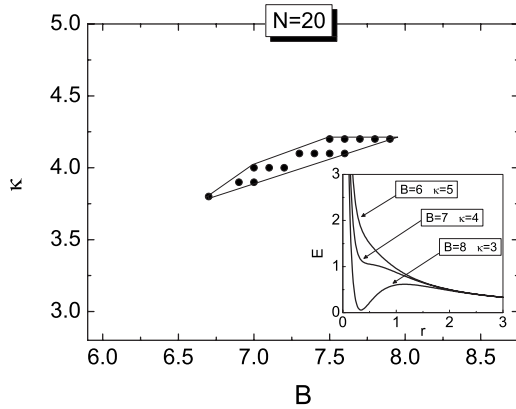


FIG. 6. Phase diagram in (B, κ) parameter space showing the reentrant behavior for $N=20$ particles (solid symbols are the calculated values). The profile of the interparticle potential for some relevant (B, κ) values is shown in the inset.

B. Hysteresis behavior

Figure 7 shows $\langle u_R^2 \rangle$ when we decrease temperature after the system changed its configuration to (3;17) for $N=20$, $B=7$, and $\kappa=4$. The mean radial displacement is calculated and the temperature is increased from $T=0$ to $T=0.008$ (solid circles). In $T=0.008$, the system does not melt, but reaches a different configuration from the $T=0$ configuration. After that, we decreased temperature until $T=0$ (red square symbols) and increased it again up to $T=0.008$ (green triangle symbols). Notice that at $T=0.008$ the system reaches a different configuration from the ground-state one and that the $\langle u_R^2 \rangle$ behavior is very different when temperature is decreased indicating that the system gets stuck in a metastable state. This phenomenon is very interesting because the system exhibits a hysteresis effect in the mean radial displacement as a function of temperature when we decrease the temperature after a thermally induced phase transition—i.e., after a change of configuration. This interesting behavior is a consequence of the fact that the (3;17) configuration is stable, although it has a larger potential energy than that of the $(2;6(3)^B)$ configuration, and is separated from the $(2;6(3)^B)$ configuration by a high-energy saddle point.

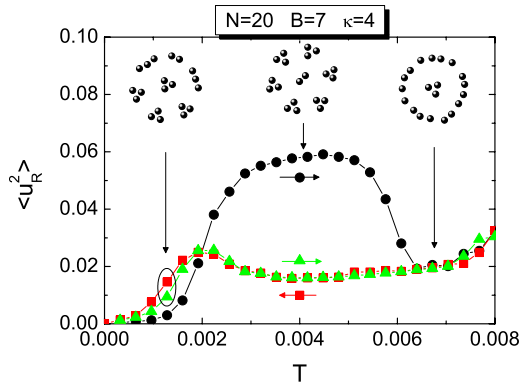


FIG. 7. (Color online) The mean radial displacement for a cluster with $N=20$, $B=7$, and $\kappa=4$ for increasing (black ball and green triangle symbols) and decreasing temperature (red squared symbols).

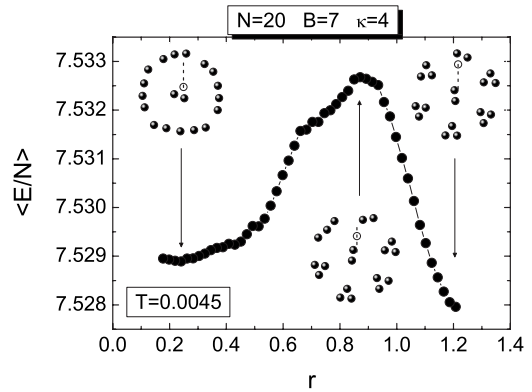


FIG. 8. The mean energy per particle as a function of the distance of the marked particle (particle in the inset indicated by an open circle) from the center of the confinement potential for the cluster with $B=7$, $\kappa=4$, and $N=20$ particles and fixed temperature $T=0.0045$. The configurations at the three local energy are shown in the inset as well as the trajectory of the marked particle (dashed line).

In order to visualize this saddle point in the potential energy landscape between the (3;17) and $(2;6(3)^B)$ configuration, we fixed one particle at the edge of the $(2;6(3)^B)$ configuration at $T=0.0045$ and moved it in the direction of the center and at the same time allowing all the other particles to relax to their equilibrium positions. We calculated the average energy per particle of the system as a function of the position of the fixed particle (Fig. 8). In this simulation we used the Monte Carlo technique in order to obtain the ground-state configuration and to make an average of the particle energy of several MC steps (around 10^7). This average energy per particle is shown in Fig. 8 as a function of the distance of the marked particle (open symbol in the inset and this particle is moved along the thin dashed line) with respect to the center of the confinement potential for a fixed temperature $T=0.0045$.

In Fig. 8, we observe that the average energy per particle increases sharply when the marked particle is moved from $r=1.2$ to $r=0.9$. After that, the mean energy of the system decreases continuously until $r \approx 0.3$ and remains almost constant until $r=0.17$. The (3;17) configuration is found when $r=0.21$. Notice that the (3;17) configuration has the second lowest energy of the whole simulation and is stable. Thus, when we increase the temperature of the $(2;6(3)^B)$ configuration such that there is enough thermal energy for a particle to overcome the potential energy saddle point, of $T=0.007$, the system changes its configuration to (3;17) and is locked into this lowest-energy configuration. Consequently, the system remains in this metastable configuration even when temperature is decreased down to $T=0$.

V. CONCLUSION

In this paper we investigated the dependence of the melting temperature of a system composed of classical particles, interacting through an interparticle potential with a short-range attractive part and a long-range repulsive part, confined by a parabolic trap. The system of bubbles showed

diverse and nontrivial behaviors as a function of temperature. We observe that the small bubbles rotate and melt locally before the melting of the total system, indicating that the melting phenomenon of this system proceeds in a two-step process—i.e., a two-step process in the behavior of the small bubbles. Moreover, the system exhibits a thermally induced structural phase transition in the small bubbles before it melts completely.

The melting temperature curve showed diverse behaviors as a function of the B -parameter. In general, the melting temperature decreases as a function of B for pure repulsive systems and increases for a packed system—e.g., stripes and bubbles. The highly packed system shows a different behavior of the melting temperature as a function of B . For large B values we found that the confinement potential is no longer important in the melting process.

The mean radial displacement $\langle u_R^2 \rangle$ showed a reentrant behavior as a function of temperature. We found that this behavior is a consequence of a thermally induced structural

phase transition which stabilizes the system before it melts. This structural transition occurs due to the rapid increase of the local disorder in the small bubbles of the system. This reentrant behavior is found for a restricted set of values for the B and κ parameters which define the attractive part of the potential. These values that lead to a reentrant behavior are shown in a phase diagram.

A hysteresis effect was observed in the structural and dynamical behavior of the system as a function of temperature. It was shown that this behavior is a consequence of the existence of a high-energy saddle point in the potential energy landscape between the two lowest-energy configurations.

ACKNOWLEDGMENTS

F.F.M., W.P.F., and G.A.F. were supported by the Brazilian National Research Councils CNPq and CAPES and the Ministry of Planning (FINEP). Part of this work was supported by the Flemish Science Foundation (FWO-VI).

-
- [1] D. Philp and J. F. Stoddart, *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* **35**, 1154 (1996).
 - [2] H. C. Chang, T. L. Lin, and G. G. Chang, *Biophys. J.* **78**, 2070 (2000).
 - [3] R. P. Sear and W. M. Gelbart, *J. Chem. Phys.* **110**, 4582 (1999).
 - [4] B. P. Stojković, Z. G. Yu, A. L. Chernyshev, A. R. Bishop, A. H. Castro Neto, and N. Grønbech-Jensen, *Phys. Rev. B* **62**, 4353 (2000).
 - [5] B. P. Stojković, Z. G. Yu, A. R. Bishop, A. H. Castro Neto, and N. Grønbech-Jensen, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4679 (1999).
 - [6] R. Bubeck, C. Bechinger, S. Nesper, and P. Leiderer, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3364 (1999).
 - [7] Q. H. Wei, C. Bechinger, D. Rudhardt, and P. Leiderer, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 2606 (1998).
 - [8] J. Schmalian and P. G. Wolynes, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 836 (2000).
 - [9] E. Fradkin and S. A. Kivelson, *Phys. Rev. B* **59**, 8065 (1999).
 - [10] F. Sciortino, *Nat. Mater.* **1**, 145 (2002).
 - [11] B. M. Mladek, D. Gottwald, G. Kahl, M. Neumann, and C. N. Likos, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 045701 (2006).
 - [12] A. I. Campbell, V. J. Anderson, J. S. van Duijneveldt, and Paul Bartlett, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 208301 (2005).
 - [13] P. J. Lu, J. C. Conrad, H. M. Wyss, A. B. Schofield, and D. A. Weitz, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 028306 (2006).
 - [14] E. V. Shevchenko, D. V. Talapin, N. A. Kotov, S. O'Brien, and C. B. Murray, *Nature (London)* **439**, 55 (2006).
 - [15] N. Hoffmann, F. Ebert, C. N. Likos, H. Lowen, and G. Maret, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 078301 (2006).
 - [16] V. M. Bedanov and F. M. Peeters, *Phys. Rev. B* **49**, 2667 (1994).
 - [17] M. Kong, B. Partoens, and F. M. Peeters, *New J. Phys.* **5**, 23 (2003).
 - [18] I. V. Schweigert, V. A. Schweigert, and F. M. Peeters, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 4381 (2000).
 - [19] K. Nelissen, B. Partoens, I. Schweigert, and F. M. Peeters, *Europhys. Lett.* **74**, 1046 (2006).
 - [20] W. P. Ferreira, F. F. Munarin, G. A. Farias, and F. M. Peeters, *J. Phys.: Condens. Matter* **18**, 9385 (2006).
 - [21] W. P. Ferreira, F. F. Munarin, K. Nelissen, R. N. Costa Filho, F. M. Peeters, and G. A. Farias, *Phys. Rev. E* **72**, 021406 (2005).
 - [22] C. J. Olson Reichhardt, C. Reichhardt, I. Martin, and A. R. Bishop, *Physica D* **193**, 303 (2004).
 - [23] K. Nelissen, B. Partoens, and F. M. Peeters, *Phys. Rev. E* **71**, 066204 (2005).
 - [24] N. Metropolis, A. W. Rosenbluth, M. N. Rosenbluth, A. M. Teller, and E. Teller, *J. Chem. Phys.* **21**, 1087 (1953).
 - [25] V. A. Schweigert and F. M. Peeters, *Phys. Rev. B* **51**, 7700 (1995).
 - [26] Yu. E. Lozovik and V. M. Fartzdinov, *Solid State Commun.* **54**, 725 (1985); V. M. Bedanov, G. V. Gadiyak, and Yu. E. Lozovik, *Phys. Lett.* **109A**, 289 (1985).
 - [27] C. Bechinger, Q. H. Wei, and P. Leiderer, *J. Phys.: Condens. Matter* **12**, A425 (2000).
 - [28] C. J. Olson Reichhardt, C. Reichhardt, and A. R. Bishop, *Europhys. Lett.* **72**(3), 444 (2005).
 - [29] W. P. Ferreira, B. Partoens, F. M. Peeters, and G. A. Farias, *Phys. Rev. E* **71**, 021501 (2005).
 - [30] D. Tomecka, B. Partoens, and F. M. Peeters, *Phys. Rev. E* **71**, 062401 (2005).
 - [31] G. Coupier, C. Guthmann, Y. Noat, and M. Saint Jean, *Phys. Rev. E* **71**, 046105 (2005).

APÊNDICE E

Ground state and normal-mode spectra of a two-dimensional system of dipole particles confined in a parabolic trap [Phys. Rev. E 78, 031405 (2008)]

Ground state and normal-mode spectra of a two-dimensional system of dipole particles confined in a parabolic trap

F. F. Munarin,^{1,2,*} W. P. Ferreira,² G. A. Farias,² and F. M. Peeters^{1,†}

¹*Department of Physics, University of Antwerp, Groenenborgerlaan 171, B-2020 Antwerpen, Belgium*

²*Departamento de Física, Universidade Federal do Ceará, Caixa Postal 6030, Campus do Pici, 60455-760 Fortaleza, Ceará, Brazil*

(Received 3 June 2008; published 17 September 2008)

The ordered configurations of a monolayer of interacting magnetic dipoles confined in a circular parabolic potential are investigated as a function of the dipole moment of the particles. Despite the circular confinement, we find very asymmetric ordered structures like chains and Y-shaped configurations when a magnetic field is applied parallel to the plane of the particles. The normal-mode spectrum of the particles and its dependence on the magnetic field and the strength of the dipole moment of the particles are studied. The vibrational and rotational modes of the spectrum, which are associated with the stability of the system, are investigated in detail. The number of particles is varied and we found different ordering of the particles for different values of the dipole moment and the magnetic field. A ring structure with a large number of particles is observed for high values of the dipole moment of the particles.

DOI: [10.1103/PhysRevE.78.031405](https://doi.org/10.1103/PhysRevE.78.031405)

PACS number(s): 82.70.Dd, 47.65.Cb

I. INTRODUCTION

The structure and collective behavior of magnetic colloidal particles exhibit considerable challenges to condensed matter physics with possible applications in various disciplines. For biomedical applications, these microspheres are paramagnetic particles which become magnetic in the presence of an external magnetic field [1]. They are frequently encountered in diverse physical experiments [2,3]. On the other hand, colloidal ferrofluids are dipolar fluids consisting of spherical ferromagnetic particles having a permanent magnetic dipolar moment present in diverse systems in medicine [4], which have been studied theoretically [5], and are utilized in many industrial applications [6,7]. The structural behavior of ferrofluids is mainly governed by the dipolar interaction, leading to a self-assembling of particles into a variety of magnetic equilibrium structures such as rings (flux closure), wormlike, branched dipole chains, and crystalline lattices [2,8–10]. Recently, there has been an increased experimental interest in colloidal ferrofluids due to the improvement of synthetic methods and the use of high-resolution transmission electron microscopy [11–13]. For instance, field-induced two-dimensional structures in a ferrofluid of magnetic nanoparticles with a permanent magnetic dipole moment were analyzed on the single-particle level by *in situ* cryogenic transmission electron microscopy (cryo-TEM) [14].

The different ordered structures and the phase behavior of colloidal ferrofluids have been studied in two [9,14,15] and three dimensions [2,16,17]. However, the ordering of such systems in reduced dimensions is not necessarily equivalent to that of the related three-dimensional system. Moreover, calculations on two-dimensional dipolar systems are more directly relevant for the common experimental situation than those on bulk systems, because structural characterization of

highly aggregated ferrofluids are largely carried out on thin films or on monolayers [11–13].

Recently, special attention was paid to finite-size systems of interacting particles subjected to parabolic [18] and Coulomb potentials [19]. Several experiments have been performed on dust plasma where Coulomb particles move in a plane and are confined in a parabolic trap. Both their ground state configuration [20] and the normal modes [21] were measured. Another experimental system is the one of paramagnetic colloidal particles in a two-dimensional circular cavity with varying depth that simulates a parabolic confinement potential [22]. Theoretical studies on such confined systems showed that the ordered structure of the ground state influences the dynamic of the particles [18] and the melting process [23]. In ferrofluids, Duncan and Camp [15] recently studied experimentally a quasi-two-dimensional dipolar fluid and observed characteristic frequencies of the single-particle orientational and translational motion for different values of the dipole moment of the particles which induce different kinds of structural arrangements of particles. In colloidal systems, clusters that are stabilized only by the magnetic interaction between the particles were studied recently [24]. It was found that the arrangement of the hard core particles within the cluster is imposed by magnetic frustration.

Motivated by the increasing experimental and technological interest in dipolar systems, we study in this paper the equilibrium configurations ($T=0$) of a two-dimensional system of dipolar particles confined by a parabolic potential. We explore the dependence of the ground state configuration on the strength of the permanent magnetic dipole moment of the particles. The particles spontaneously self-assemble into a variety of interesting structures. If a magnetic field is applied parallel to the plane of the particles a diverse range of possible configurations are found (e.g., ring, chain, and Y-shaped structures). In addition, we investigate the normal-mode frequencies of the ground state configurations with and without the presence of an external magnetic field. The vibrational and rotational components of the mode associated with the lowest nonzero frequency are found and they show a strong

*munarin@fisica.ufc.br

†francois.peeters@ua.ac.be

dependence on the external magnetic field and the size of the dipole moment of the particles. When the number of particles is varied, we find different configurations for different sizes of the dipole moment and magnetic field.

This paper is organized as follows. In Sec. II, we describe the mathematical model and summarize the numerical approach to obtain the ground state configurations of the system. Section III A contains the results for the dependence on the dipolar moment with and without the influence of a magnetic field parallel to the plane of the particles. Section III B presents an analysis of the spatial structure of the ground state and its normal modes for different magnetic field intensities. The system structure and normal modes for different numbers of particles with and without the presence of a magnetic field are investigated in Sec. III C. Our conclusions are presented in Sec. IV.

II. MODEL

Our system consists of a monolayer of N particles interacting with each other via a dipole-dipole pair potential. The particles are kept together by a parabolic potential centered at the origin. We will introduce a preferential direction in the problem by applying a magnetic field parallel to the confinement plane. The case of a perpendicular magnetic field was considered before and leads to results that are similar to the Coulomb and Yukawa type of interparticle interaction [25,26]. The potential energy of our system is given by

$$H = \sum_i \left(\frac{1}{2} m \omega_0^2 r_i^2 - \boldsymbol{\mu}_i \cdot \mathbf{B} \right) + \sum_{i < j=1}^N \left[4\epsilon \left(\frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^{12} + \frac{\boldsymbol{\mu}_i \cdot \boldsymbol{\mu}_j}{r_{ij}^3} - \frac{3(\boldsymbol{\mu}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\boldsymbol{\mu}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{r_{ij}^5} \right], \quad (1)$$

where ϵ is an energy parameter which characterizes the short-range repulsion of the particles preventing them from coalescing in a single point, $\boldsymbol{\mu}_i$ is the dipole vector on particle i , \mathbf{r}_{ij} is the interparticle separation vector between particles i and j , $r_i \equiv |\mathbf{r}_i|$ is the distance of the i th particle from the center of the parabolic confinement, m is the mass, and σ is the diameter of the colloids. In order to reveal the important parameters of the system, it is convenient to define $\mu^* = \sqrt{\mu^2 / \epsilon \sigma^3}$ and to use ϵ for the unit of energy, $B_0 = \sqrt{\epsilon / \sigma^3}$ for the unit of magnetic field, and σ (a measure of the radius of the colloids) for the characteristic length scale in this system. In so doing, we obtain the potential energy (1) in dimensionless form,

$$H = \sum_i (\alpha r_i^2 - \boldsymbol{\mu}_i^* \cdot \mathbf{B}) + \sum_{i < j=1}^N \left[4 \left(\frac{1}{r_{ij}} \right)^{12} + \frac{\boldsymbol{\mu}_i^* \cdot \boldsymbol{\mu}_j^*}{r_{ij}^3} - \frac{3(\boldsymbol{\mu}_i^* \cdot \mathbf{r}_{ij})(\boldsymbol{\mu}_j^* \cdot \mathbf{r}_{ij})}{r_{ij}^5} \right], \quad (2)$$

which indicates that the system depends on the number of particles N , the relative strength of the confinement potential $\alpha = m \omega_0^2 \sigma^2 / 2\epsilon$, the dipolar moment of the particles $\boldsymbol{\mu}_i^*$, and the external magnetic field \mathbf{B} . The interaction energy be-

tween the dipole i and the applied magnetic field is described by the term $-\boldsymbol{\mu}_i^* \cdot \mathbf{B}$. In our study, we took $\alpha=1$ and applied the magnetic field along the x axis, i.e., $\mathbf{B}=(B,0,0)$.

The ground state configurations ($T=0$) of the present system were obtained using the Monte Carlo annealing simulation technique followed by a Newton optimization procedure [27]. The annealing simulation method was used in order to ensure that the obtained energy was close to the global minimum. To check if a configuration is stable, we calculated, using the Householder diagonalization technique, the eigenvalues of the dynamical matrix

$$H_{\alpha\beta,ij} = \frac{\partial^2 H}{\partial r_{\alpha,i} \partial r_{\beta,j}}, \quad (3)$$

where $\alpha, \beta = x, y$ and θ . The i, j indices indicate the particle number and θ is the angle between their dipole moments. From all the stable states obtained, the one with the lowest energy was taken as the ground state.

III. RESULTS

A. Dependence on dipole moment μ^*

In the following, we analyze, as an example, a system composed of $N=19$ dipolar particles as a function of the dipole moment of the particles μ^* with and without the presence of a magnetic field B . Initially, the ground state configuration is obtained in the absence of an external magnetic field where the minimum energy structure is a consequence of the strength of the interparticle interaction. After that, the $B \neq 0$ case will be considered.

1. Zero magnetic field

To study the structure of the ground state of the system, Fig. 1(a) shows the distance of the $N=19$ particles with respect to the center of the confinement potential as a function of μ^* . We clearly see five structural transitions indicated by the vertical dashed lines between the different configurations which are presented in Figs. 1(c)–1(f). For $\mu^* \approx 0$ [Fig. 1(c)], the configuration consists of shells with a local hexagonal arrangement of particles as observed experimentally in infinite systems of dipolar particles [28]. The hexagonal ground state structure for $\mu^*=0$ is a specific feature of the balance between the parabolic confinement potential and the isotropic r^{-12} repulsive interparticle interaction [Eq. (2)]. When the dipole moment is increased from $\mu^*=0$ to $\mu^* \approx 1.6$ (region I), the system configuration remains unaffected but now the dipole moments of the particles are oriented in a kind of spiral shape as indicated by the dashed line in Fig. 1(c). This behavior reveals the angular dependence between the dipole moments of the particles which attempts to align them.

At $\mu^* \approx 1.6$ (region II), the dipolar interaction starts to influence the ground state configuration which changes to a transient configuration between a hexagonal-shaped and a ring structure. As can be seen in Fig. 1(d), one particle moved from the center of the system to the inner shell and another one moved from the inner shell to the outer one, forming a structure of noncircular rings. This configuration is a result of the in-plane dipole-dipole interaction which tends

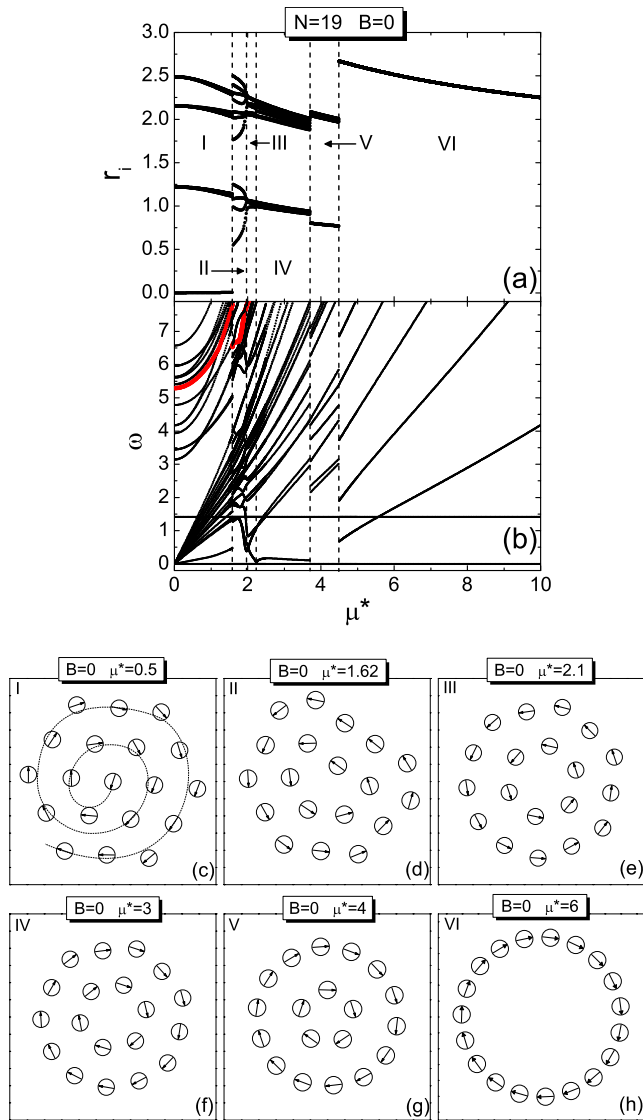


FIG. 1. (Color online) (a) Radial position and (b) normal-mode frequency of $N=19$ dipolar particles in zero magnetic field $B=0$ as a function of the dipole moment of the particles μ^* . The associated breathing mode in $\mu^*=0$ is shown as a red line. (c)–(g) The ground state configuration of the system for each region defined in (a). The dashed line shown in (c) is a guide to the eye.

to align the particles in a chain, but due to the parabolic confinement potential turns them into a ringlike structure. When μ^* is further increased, the attraction between the dipoles becomes sufficiently strong and as a consequence the system configuration changes continuously to two rings shown in Figs. 1(e) and 1(f) regions III and IV) through two structural transitions at $\mu^* \approx 1.97$ and $\mu^* \approx 2.2$, respectively. From Fig. 1(a) we see in region IV that the outer shell has a finite width and thus forms a nonperfect shell of particles. At $\mu^* \approx 3.7$ (region V), a clear ringlike structure is observed [Fig. 1(g)], but now with a different number of particles in each shell as compared to the structure in regions III and IV. The most symmetric configuration is obtained for $\mu^* > 4.5$ when the system consists of a single ring [see Fig. 1(g)].

In Fig. 1(b), the normal-mode frequency (NMF) spectrum of the system in units of $\omega_0/\sqrt{2}$ is shown as a function of μ^* . The same regions I–VI as previously defined in Fig. 1(a) are also indicated. The NMFs are sensitive to structural transitions, showing a discontinuous change when a first-order structural transition occurs, and a typical softening in one of the frequencies in the case of a second-order transition. In general, most of the NMFs increase with μ^* . However, there are two special frequencies, namely, $\omega=0$ and $\sqrt{2}$, which remain constant for all values of μ^* . These frequencies are associated with the rotation of the entire cluster around the center and the motion of the center of mass, respectively. Another special frequency [indicated as a red line in Fig. 1(b)], associated with the breathing mode of the particles ($\omega=5.29$ for $\mu^*=0$), also increases as a function of μ^* . This behavior is due to the fact that this frequency depends on the confinement and interaction potential [29] and as a consequence its frequency increases with the dipolar moment of the particles, μ^* . In region I there are clearly two classes of normal modes: the low-frequency modes whose frequencies increase linearly with μ^* and a set of higher-frequency modes that increase quadratically with μ^* . The normal-mode frequencies in regions II and III exhibit a rather complex behavior which is due to the gradual coalescence of particles into a ringlike structure [see Fig. 1(a)]. In regions IV, V, and VI the NMF increases roughly linearly with μ^* except for the lowest nonzero frequency.

Now we carefully analyze the behavior of the lowest nonzero frequency (LNF) mode and its associated oscillation, which is linked with the stability of the ground state configuration. In addition, this LNF mode plays an important role in the melting properties of the cluster [23,27]. In Fig. 2(a), the LNF of the cluster with $N=19$ particles and zero magnetic field is presented as a function of μ^* . The same regions defined in Fig. 1(a) are indicated. However, new subregions separating different μ^* intervals in which the ground state configuration is similar, but the excited normal modes of vibration and/or rotation are different (regions IIa, IIb, IIc, VIa, and VIb), are also defined.

The vibrational motion of the particles in each region of Fig. 2(a) is shown in Figs. 2(b)–2(i). The arrows indicate the direction and its size represents the amplitude of oscillation. In general, the vibrational mode is different for each configuration. However, we find that distinct normal modes can be excited for the same minimum energy configuration. For example, in subregions IIa, IIb, and IIc, the configuration is given in Fig. 1(d), but different lowest normal modes are obtained [Figs. 2(c)–2(e), respectively]. In regions V and VIb, it is observed that the LNF mode becomes the center of mass mode of the particles shown in Figs. 2(h)–2(j), respectively. Clearly, the LNF mode is tunable by μ^* , and, as a consequence, also the stability of the cluster. Based on a recent study [23], this fact could indicate that μ^* also influences the melting temperature of the system.

Although the LNFs are different in regions III and IV [see Fig. 2(a)], the normal modes in both regions are rather similar [Figs. 2(f) and 2(g)]. The understanding of the change in LNF behavior is complicated by the fact that the LNF is also associated with a rotational component of the individual dipoles. In order to analyze the associated lowest nonzero ro-

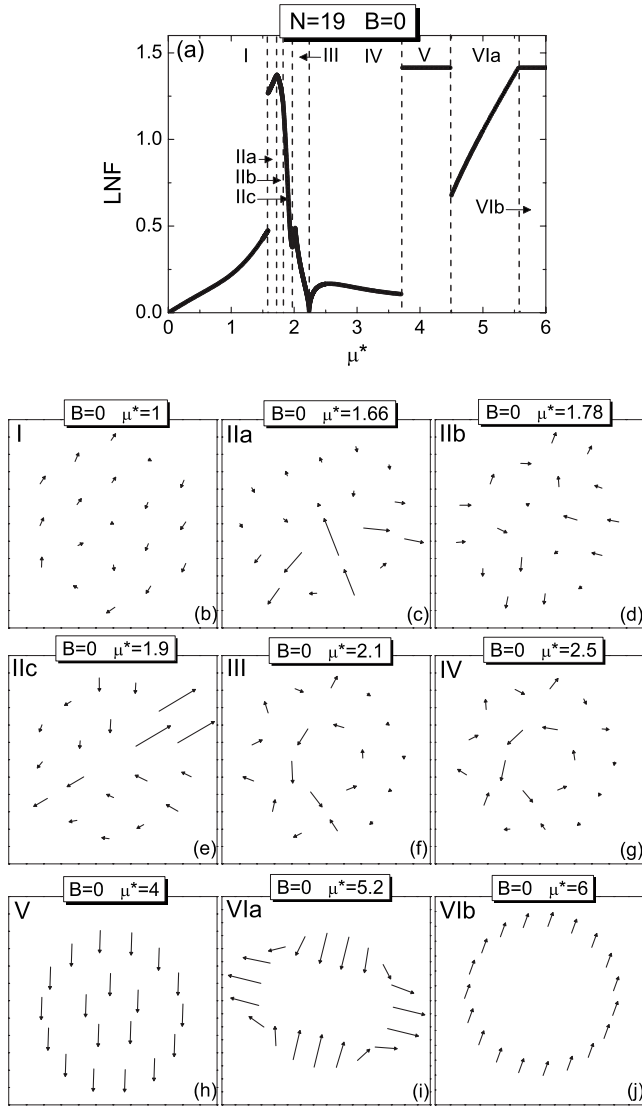


FIG. 2. (a) Lowest nonzero frequency (LNF) as a function μ^* for system with $N=19$ particles and $B=0$. (b)–(j) Normal modes of vibration for each subregion defined in (a).

tational mode, Figs. 3(a)–3(g) show the rotational mode of each dipolar particle for all regions defined in Fig. 2(a). The rotational mode is indicated by colors inside the circles representing the direction and amplitude of oscillation of each particle. The arrows indicate the orientation of the dipoles. When the system has a hexagonal structure (region I), we observe that the direction of oscillation of each particle are symmetric with respect to the center of the confinement potential [Fig. 3(a)]. Specifically, we observe that two particles of the inner shell are oscillating clockwise (light blue circles) while the other two oscillate counter clockwise (yellow circles). The central particle in Fig. 3(a) rotates counterclockwise with a large angular amplitude in order to conserve the total angular momentum of the system where there are few particles oscillating with small angular amplitude (green particles).

Figures 3(a)–3(i) show that the rotational modes of the particles are different for each region of Fig. 2(a). It is also observed that there is no rotation of particles in regions V

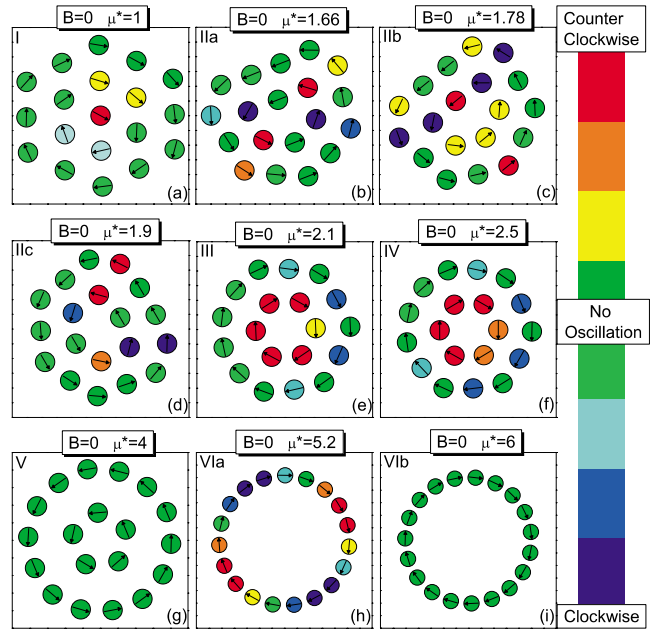


FIG. 3. (Color online) Rotational component of the LNF mode for the system with $N=19$ particles and $B=0$. In each figure the subregions defined in Fig. 2(a) are indicated. The color scale gives the amplitude and the direction of rotation of the particles.

and VIb [Figs. 3(g) and 3(i)] where the modes are associated with the motion of the center of mass of the system. In addition, the rotational component of the LNF reveals a very interesting characteristic in Fig. 2(a). As can be seen, the rotational modes of particles in the regions III and IV [Figs. 3(e) and 3(f)] are different although the configuration and the vibrational components of the mode are similar in these regions. This fact indicates that the second-order structural phase transition of the system between the regions III and IV is exclusively due to the change of the rotational mode of the particles and therefore is essential in the study of the stability of our dipolar system.

2. In the presence of a magnetic field

In the following we present the dependence of the configuration and the normal modes of $N=19$ particles on μ^* in the presence of a magnetic field B applied along the x axis. The magnetic field introduces a preferential direction into the problem which will tend to break the circular symmetry of the ordered structures. Here, we fix B and vary μ^* . In Fig. 4(a) we show the radial position of $N=19$ particles with respect to the center of the confinement potential as a function of μ^* for $B=5$. The system exhibits several structural transitions as a function of μ^* which are indicated in Fig. 4(a) by vertical dashed lines. Such lines separate regions with different ground state configurations shown in Figs. 4(c)–4(n).

For small values of μ^* (region I), the particles are arranged in the same configuration as observed in zero magnetic field [see Fig. 1(c)] but now all dipoles are oriented in the same direction, i.e., parallel to the magnetic field [Fig. 4(c)]. At $\mu^* \approx 1.2$ (region II), the system experiences a first

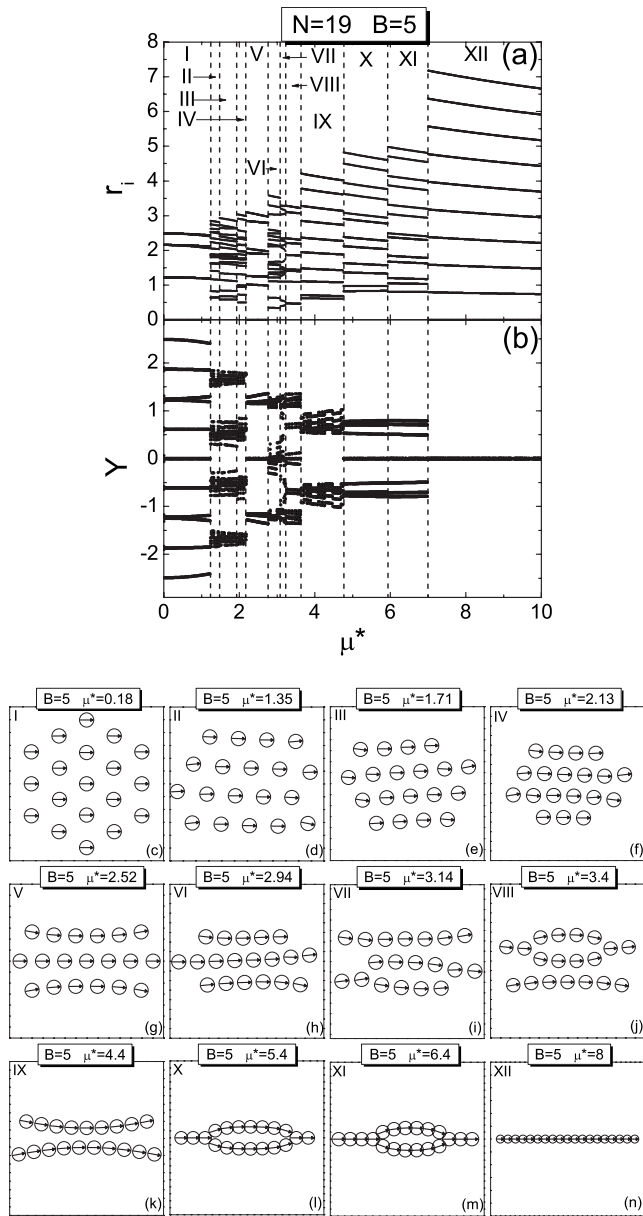


FIG. 4. (a) Radial position and (b) distance of each particles with respect to the x axis of $N=19$ dipolar particles for $B=5$ as a function of dipole moment of particles μ^* . (c)–(n) The ground state configuration of system for each region defined in (a).

structural phase transition and changes from a hexagonal to a four-line configuration as shown in Fig. 4(b). Notice that the chains are parallel to the x axis, which means that the magnetic field adds an additional one-dimensional confinement to the parabolic potential. In order to better observe the symmetry of the system with respect to the B direction, we present in Fig. 4(b) the distance of each particle with respect to the x axis as a function of μ^* . With further increase of μ^* , we observe that particles of the outer chains (with respect to the x direction) successively move to the inner chains, as a consequence decreasing the number of particles in the outer chains after each structural phase transitions. These transitions can be recognized by jumps in Figs. 4(a) and 4(b).

At $\mu^* \approx 3.1$ (region VII), the system turns into an unexpected configuration formed by the quasi-two-lines of particles shown in Figs. 4(i) and 4(j). These configurations are composed of a line of particles and a chain composed by a mixture of one- and two-lines, that is, the system presents a local splitting of a single line into two which we will call a 2Y-shaped configuration. The Y-shaped configuration was analyzed and observed in diverse theoretical and experimental studies in dipole particle systems [8,14,30,31], but here it appears as two connected Y-shaped configurations. This structure is due to the influence of the confinement potential which compresses the system connecting two lines through two dipolar particles. The size of the 2Y-shaped configuration decreases up to $\mu^* \approx 3.64$ when the system transits into two curved lines (region IX). At $\mu^* \approx 4.76$, the system transits to a 2Y-shaped configuration before it exhibits the configuration composed by a line of particles for $\mu^* > 7$. It is important to observe that the Y-shaped configuration appears when the number of chains decreases, i.e., between the configurations with three and two chains (regions VI and IX) and between two and one chains (regions IX and XII). This fact indicates that the appearance of the Y-shaped configuration is due to the high density of particles in the B direction caused by the balance between the confinement potential and the magnetic field.

Figure 5(a) shows the corresponding frequencies of the normal modes where the vertical lines indicate the transitions as shown also in Fig. 4(a). As is apparent, the degeneracy in the frequency spectrum found in the zero-magnetic-field case is lifted due to the preferential direction introduced by the applied field. In general, most of the frequencies increase with increasing μ^* , as was found also in the case with $B=0$. Notice that the μ^* -independent frequency $\omega=0$, which was previously associated with the rotation of the entire cluster, attains a value $\omega \neq 0$ when $\mu^* \neq 0$. This fact is a consequence of the breaking of the rotational invariance introduced by the magnetic field. The system still exhibits one mode with a frequency that is independent of μ^* , namely, the center of mass mode ($\omega = \sqrt{2}$).

The lowest nonzero normal-mode frequency is shown in Fig. 5(b) as a function of μ^* for $B=5$. New subregions separating different μ^* intervals in which the ground state configuration is the same, but the excited normal modes of vibration and/or rotation are different (subregions IXa, IXb, XIIa, and XIIb), are also defined. It is important to note that the LNF value becomes different from zero for small values of B . This fact confirms that the magnetic field influences the system even when it has a hexagonal structure as the ground state configuration. The vibrational components of the LNF mode associated with each region of Fig. 5(b) are shown in Figs. 5(c)–5(p). Figure 5(c) shows the vibrational component of the LNF in the hexagonal structure (region I). Note that this mode differs from the one associated with the rotation of the entire system by one particle motion which is presented by the red arrow. Figures 5(c)–5(p) show that the vibrational components of the modes are different for each configuration presented in Figs. 4(c)–4(n), i.e., they change as a function of μ^* . Nevertheless, the configuration in the regions IX and

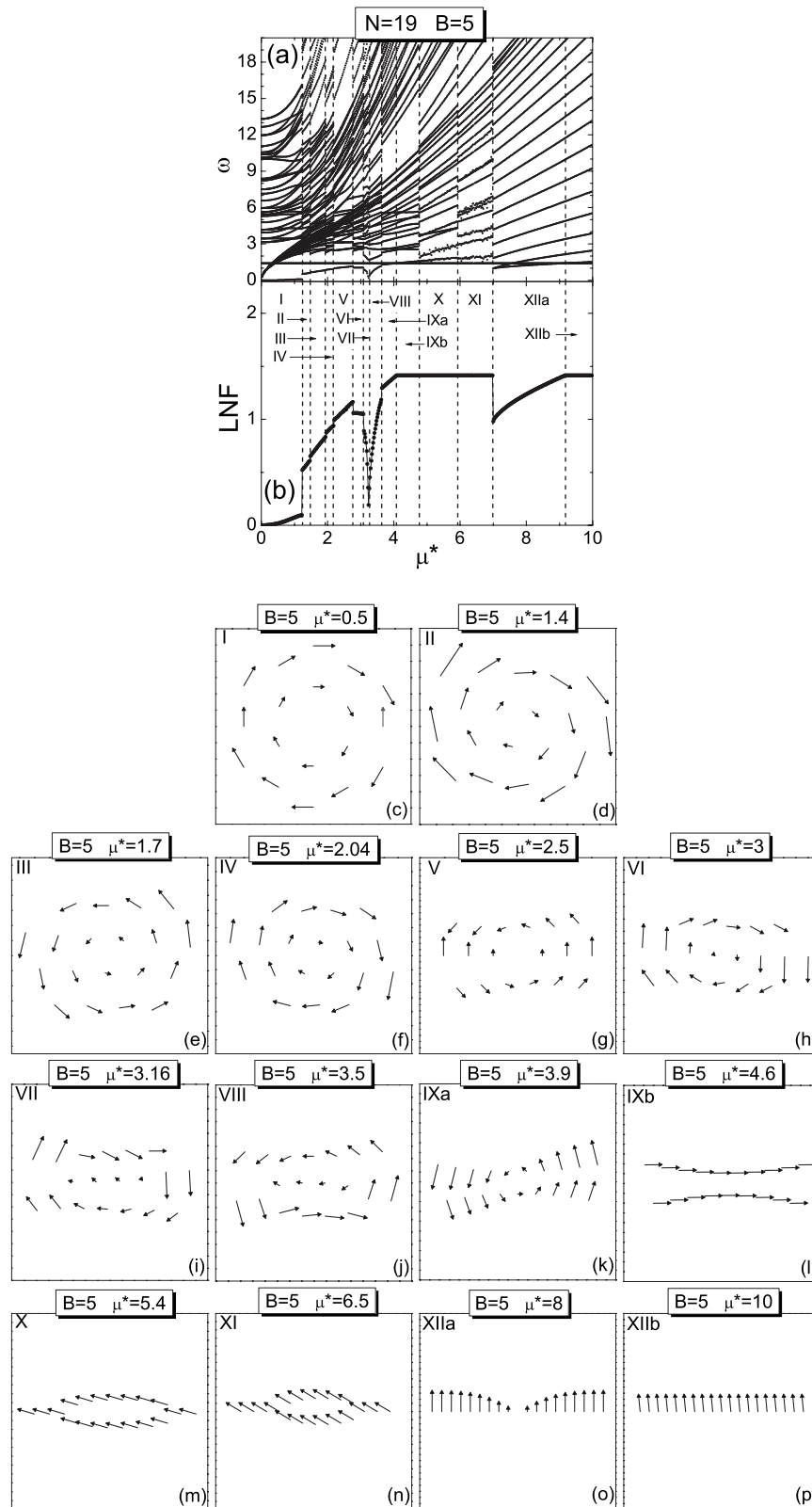


FIG. 5. (a) Normal-mode frequency and (b) lowest nonzero frequency of $N=19$ dipolar particles as a function of the dipole moment of the particles μ^* for $B=5$. (c)–(p) Normal modes of vibration for each subregion defined in (b).

XII of Fig. 5(b) present very different vibrational motions of particles. In addition, the center of mass mode becomes the LNF mode in the configuration of regions IX, X, XI, and

XIIb, where all particles are moving in the same direction with the same amplitude. Notice that in these regions the particles are moving in different directions, indicating that

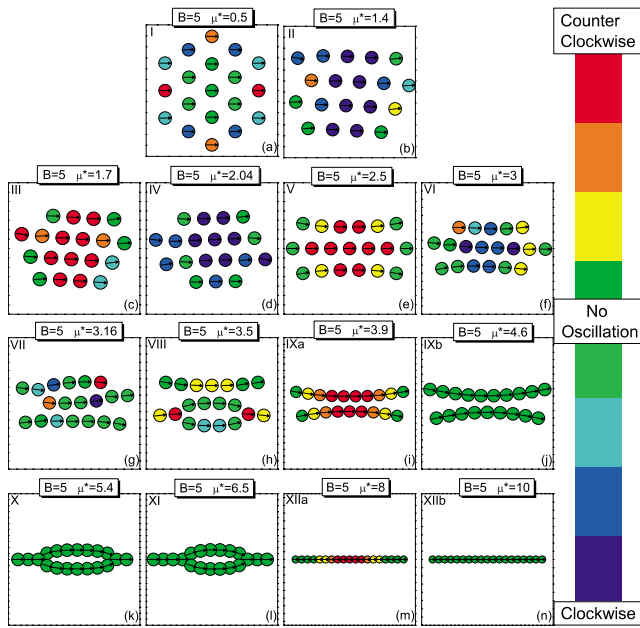


FIG. 6. (Color online) Normal modes of rotation for the system with $N=19$ particles and $B=5$. In each figure the subregions shown in Fig. 5(b) are indicated. The color scale indicates the amplitude and the direction of rotation of the particles.

the magnetic field B does not influence the direction of vibration of particles.

In order to study the influence of the magnetic field in the rotational motion of particles, Figs. 6(a)–6(n) show the rotational components of the LNFs of particles in each region shown in Fig. 5(b). We observe that the particles of the hexagonal configuration present an interesting rotational behavior shown in Fig. 6(a). Unlike in the zero-magnetic-field case, the particles with the lowest rotational amplitude of oscillation are located in the center of the system. In addition, we observe that the particles with the same amplitude of oscillation are located symmetrically with respect to the directions parallel and perpendicular to the magnetic field. In the case of the chain configurations, regions II–VI, the particles with the highest amplitude of oscillation are located in the center of the chains. This scenario is clearly observed for the configuration of region V [Fig. 6(e)]. This behavior is due to the fact that the particles located in the center have more nearest neighbors than those in the extreme of the system and therefore there is more orientational coupling of the dipole moments. In this manner, the center particles rotate with the highest amplitude since they have more neighbor particles to align. This is clearer for the configurations of region V [Fig. 6(e)] because of its perfect symmetry with respect to the x direction which is not observed in the configuration of Figs. 6(b)–6(d) and 6(f). This scenario is not observed when the system presents a 2Y-shaped configuration shown in Figs. 6(g) and 6(h) (regions VII and VIII of Fig. 5(b)). Increasing μ^* further, we observe that the configuration corresponding to regions IX and XII in Fig. 5(b) presents different rotational modes for the same configuration, indicating that the rotational component of the LNF is strongly dependent on the μ^* value. It is important to notice

that the angular amplitude of particles is zero when $\omega = \sqrt{2}$ (i.e., when $\omega = \omega_0$). This behavior is observed in the rotational motion of the system of regions IXb, X, XI, and XIIb which are shown in Figs. 6(j)–6(l) and 6(n), respectively.

B. Dependence on magnetic field B

In this section, we investigate the $N=19$ particle system with fixed dipole moment $\mu^*=5$ as a function of the magnetic field B applied parallel to the x axis of system. In Fig. 7(a) we present the radial distance of each particle with respect to the center of the confinement potential as a function of B for $\mu^*=5$. Despite the constant value of μ^* , the system exhibits several structural phase transitions indicated by vertical dashed lines in Fig. 7(a). Figure 7(b) shows the distance of each particle with respect to the x axis. As can be seen in Fig. 7(b), the symmetry of the configuration with respect to the x axis increases as a function of B . The configurations in each region of Fig. 7(a) are shown in Figs. 7(c)–7(f). Up to $B \approx 2$ (region I), the particles are ordered into a single ring [Fig. 7(c)]. At this B value, the structure changes to an interesting nonsymmetric configuration which is a mixture of a single chain and an elliptic ring around it [Fig. 7(d)]. This nontrivial configuration [Fig. 7(d)] clearly shows the competition between the external forces, i.e., forces due to the magnetic field and the confinement potential.

In $B \approx 2.4$ (region III), the system transits to a 2Y-shaped configuration, which was also observed in the previous section when the system was studied as a function of μ^* . In $B \approx 13$ (region IV), the system configuration changes to two parallel chains with different particles in each one. In order to minimize the energy of the system, the distances of each chain with respect to the x axis are different as can be observed in region IV of Fig. 7(b). In this figure, we clearly observe an increase of the system symmetry with respect to the x axis when the magnetic field is increased. In general, the dependence of the configuration on the magnetic field and on the dipole moment are similar, i.e., the system structure changes from a shell structure to chains as a function of μ^* for B fixed, and vice versa. Nevertheless, the transient configurations found are different when we vary μ^* or B . In addition, we note that the final configuration of the system is composed of two chains [Fig. 7(f)] of particles instead of one [Fig. 4(n)]. This is due to the fact that the attraction between the particles is not large enough to form a single chain. Therefore, we can conclude that the value of the magnetic field B guides the symmetry of the system with respect to the B direction, while the dipole moment μ^* controls the number of chains parallel to it.

In Fig. 8(a), the frequencies of the normal modes of vibration and rotation of the system are shown as a function of B for $\mu^*=5$. It is divided in the same regions as defined in Fig. 7(a). It is important to note that most frequencies do not increase further when the magnetic field B is increased. On the other hand, the frequency associated with the rotation of the whole system, which is directly associated with the confinement potential, increases as a function of B , indicating that the magnetic field also acts as an effective confinement potential in one direction. The behavior of this frequency

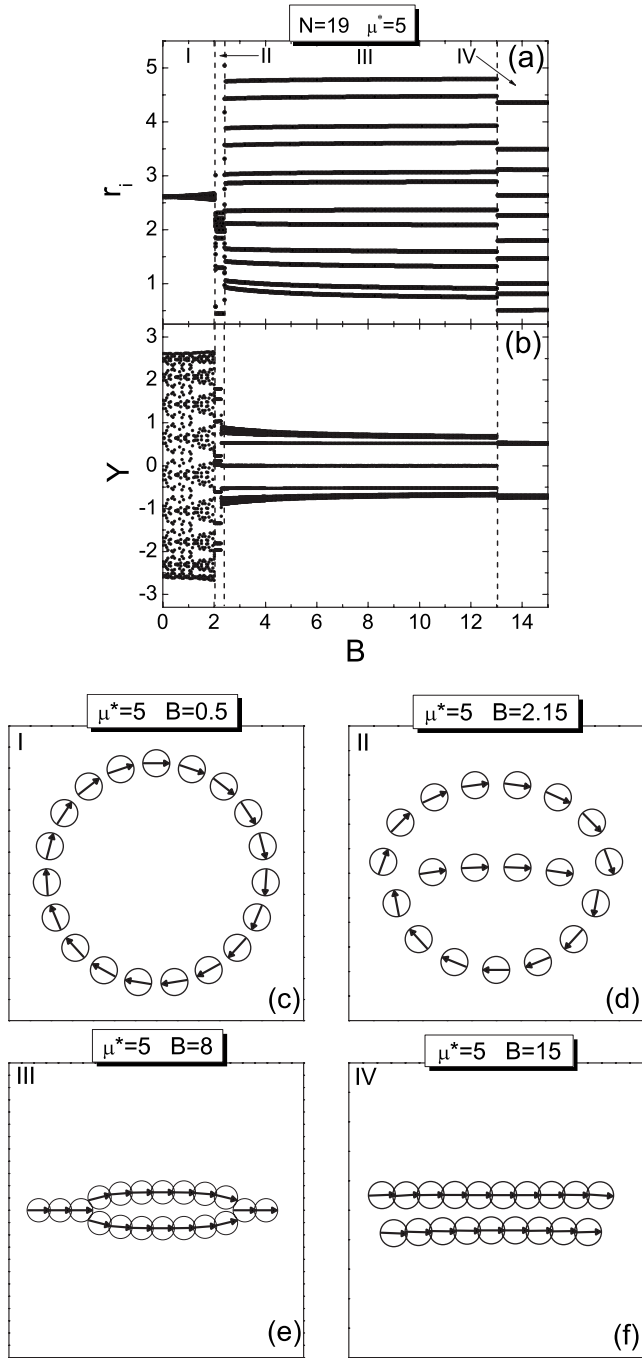


FIG. 7. (a) Radial position and (b) distance of each particle with respect to the x axis of $N=19$ dipolar particles as a function of the magnetic field B for fixed dipole moment $\mu^*=5$. (c)–(f) The ground state configuration of the system in different regions defined in (a).

shows that the energy necessary to excite the mode associated with the rotation of the whole system increases when the magnetic field is increased. This is reasonable since the increase of magnetic field decreases the circular symmetry of the system.

In order to better understand the influence of the magnetic field on the normal modes of the system we plot in Fig. 8(b) the lowest nonzero normal-mode frequency as a function of the magnetic field B . New subregions (IIIa and IIIb) separat-

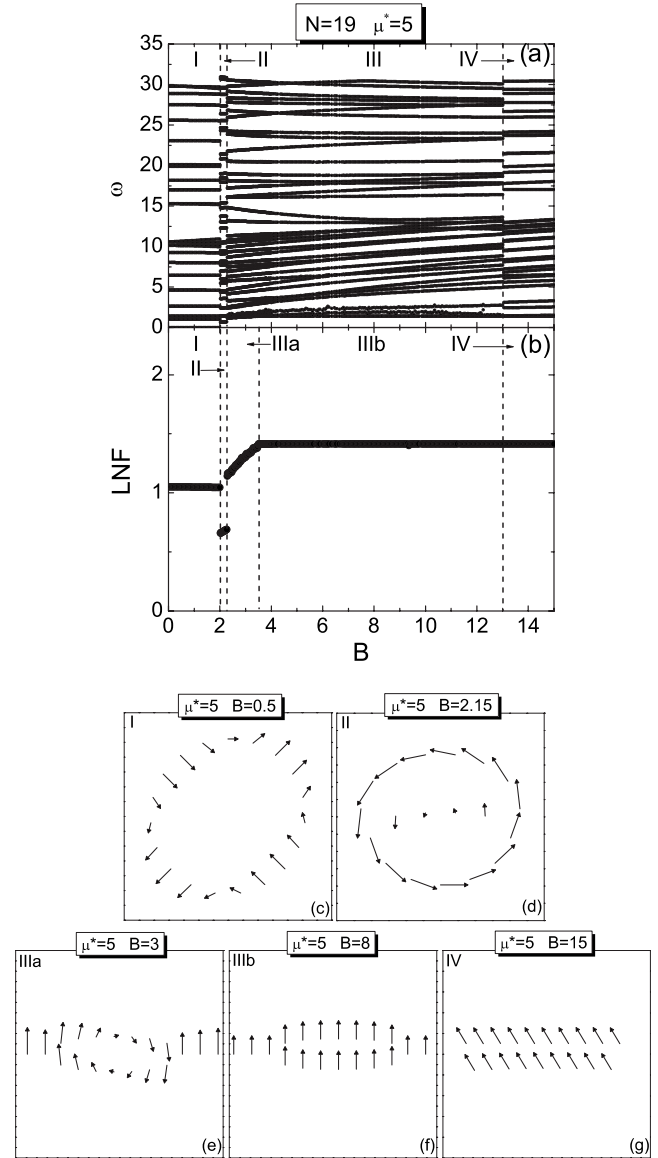


FIG. 8. (a) Normal-mode frequency and (b) lowest nonzero frequency (LNF) of $N=19$ dipolar particles as a function of magnetic field B for fixed dipole moment of particles $\mu^*=5$. (c)–(g) Normal modes of vibration for each subregion defined in (b).

ing different B intervals are defined in addition to the regions defined in Fig. 8(a). The vibrational motion of each particle in each region of Fig. 8(b) are shown in Figs. 8(c)–8(g). At regions IIIb and IV, the LNF corresponds to the mode associated with the motion of the center of mass. In addition, we observe that nontrivial configurations induce an interesting vibrational mode of particles such as, for example, the configuration corresponding to subregion IIIa [Fig. 7(e)]. In order to study the influence of the magnetic field on the angular oscillation of the particles, Figs. 9(a)–9(e) show the rotational component of the LNF mode for each region of Fig. 8(b). Notice that the system exhibits different rotational modes for each configuration. As observed for the vibrations, the rotational mode of the system in region III can be changed by increasing the value of B , leading the system to a scenario without rotation of particles [Fig. 9(d)] which is

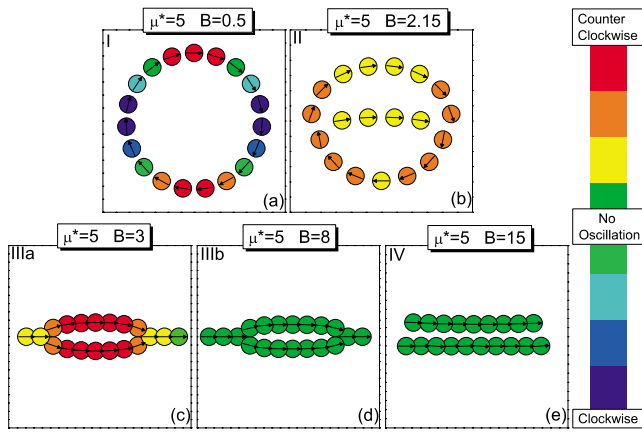


FIG. 9. (Color online) Normal modes of rotation for the system with $N=19$ particles and $\mu^*=5$. In each figure the subregions defined in Fig. 8(b) are indicated. The color scale gives the amplitude and the direction of rotational oscillation of particles.

associated with the frequency of the center of mass [see Fig. 8(b)]. This fact shows the strong dependence of the modes on the magnetic field B .

C. Dependence on the number of particles

Up to now, we have considered the specific example of a system composed of $N=19$ particles. One may wonder how general the conclusions are for systems with different numbers of particles. Therefore, we present now a study of the structure and normal frequencies of the system as a function of the number of particles N for fixed values of the dipole moment μ^* and the magnetic field B .

1. Zero magnetic field

In order to study the self-assembled structure of the system of dipole particles, Fig. 10(a) shows the radial position of the particles in the ground state configuration of systems with different numbers of particles N for $\mu^*=5$ and $B=0$. Figure 10(a) is divided into regions where the system exhibits diverse structures shown in Figs. 10(c)–10(e). As can be observed, region I of Fig. 10(a) is characterized by systems which present a kind of ferromagnetic configuration, i.e., all particles are aligned in the absence of a magnetic field [Fig. 10(c)]. The arrangement of the particles in a line appears as the ground state configuration for systems up to $N=4$ particles (region I). The ring configuration is found in region II, i.e., for $5 \leq N \leq 20$ particles. It is important to note that the late appearance of the ring configuration is due to the fact that the energy between two dipole particles is minimum when they are aligned. The critical value $N=5$, for which the ring structure is obtained, increases with increasing μ^* . In the present case, the line configuration is destroyed because the parabolic confinement folds the chain of particles into a closed line. The interparticle potential between the dipoles also influences the ring configuration which becomes more stable than in a system of charged particles. Indeed, we found that the single ring configuration is the ground state up to $N=20$ particles ($N=5$ particles in the case of charged par-

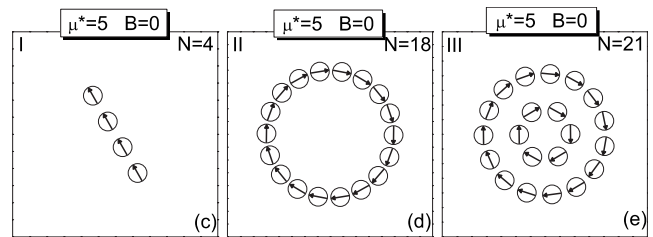
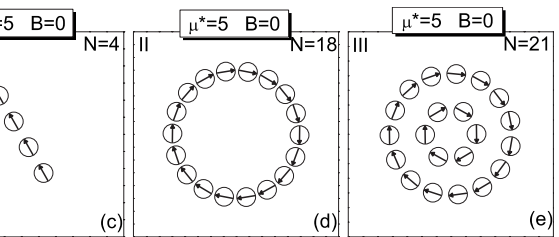
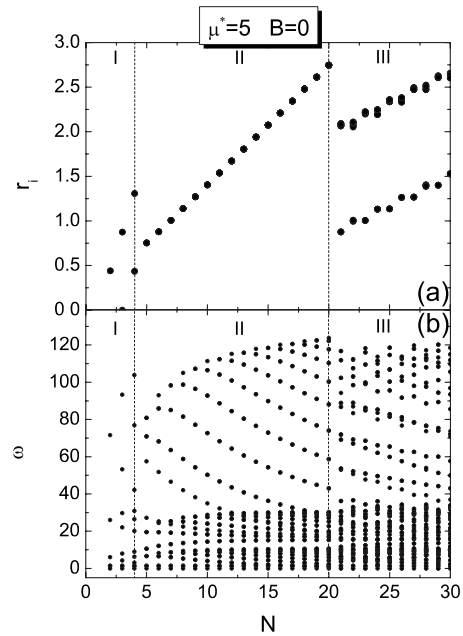


FIG. 10. (a) Radial position and (b) normal-mode frequency as a function of the number of particles N for $\mu^*=5$ and $B=0$. (c)–(e) The ground state configuration of the system for the three regions defined in (a).

ticles [32]). For $N=21$ (region III), a second ring of particles shows up, forming a structure of two rings (6,15) meaning that there are six particles in the inner shell and 15 particles in the outer one [see Fig. 10(e)].

The normal-mode spectrum is presented in Fig. 10(b) as a function of N . As can be observed, the frequencies exhibit jumps when the configuration changes discontinuously. In addition, we observe that the highest value of frequency is reached for a system with only a few particles and it does not increase further with N . Thus, new frequencies arise with values below the highest one, which is opposite to the case of the charged particle system where the highest frequency increases as a function of the number of particles [27].

2. In the presence of a magnetic field

In the following, systems with different numbers of particles N are studied in the case of a nonzero magnetic field B . The radial position as a function of N for $\mu^*=5$ and $B=5$ is shown in Fig. 11(a). For $2 \leq N \leq 12$ (region I), the particles are ordered into a single chain along the direction of \mathbf{B} [Fig. 11(d)]. Note that the line structure is the ground state configuration for clusters with larger numbers of particles than those in the zero-magnetic-field case. This indicates that the number of particles in this structure increases with the mag-

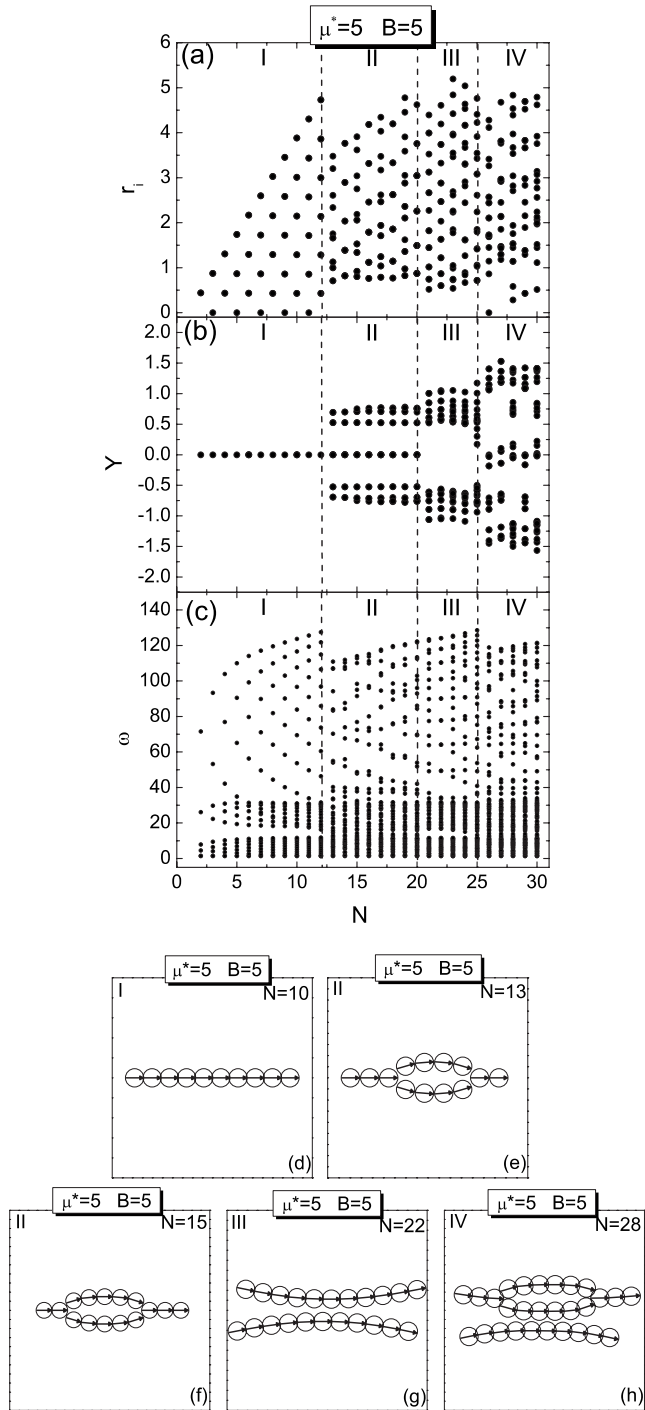


FIG. 11. (a) Radial position, (b) distance of each particles with respect to the x axis, and (c) normal-mode frequency as a function of the number of particles for $\mu^*=5$ and $B=5$. (d)–(h) The ground state configuration of the system for each region defined in (a).

netic field, which stabilizes them in a line shape. When the system is composed of $N=13$ particles (region II), we find a 2Y-shaped configuration which is observed for systems up to $N=20$ particles. Figures 11(e) and 11(f) present this structure for clusters with $N=13$ and 15 particles, respectively. In region III ($21 \leq N \leq 25$), the system consists of two chains [see Fig. 11(g)]. Systems with $25 < N \leq 30$ (region IV) particles

consist of a mixture of a chain and a 2Y-shaped configuration which can be observed in Fig. 11(h).

Although the system is being confined by a circular potential, we found that the flux-closure configurations (e.g., rings) do not appear for any number of particles of the dipole system in the presence of a magnetic field and $\mu^*=5$. This fact indicates that, in the case shown here, the magnetic field determines the configuration of the system, changing the symmetry of the system from circular to one that is parallel to the x axis. In addition, we found that the magnetic field also influences the appearance of the Y-shaped configuration which was observed only in systems in the presence of a magnetic field. It is important to note that the closed Y-shaped configuration precedes the chain structure with a larger number of chains when the number of particles is increased. In other words, we observe that the closed Y-shaped configuration is preferentially formed before a new chain of particles. Therefore, we can conclude that the closed Y-shaped configuration arises due to the increase of the density of particles in a chain, which disappears when a new chain is formed.

Figure 11(c) shows the frequency spectrum as a function of the number of particles N . The qualitative dependence of the frequencies on N in the presence of a magnetic field is similar to that of the system with $B=0$, i.e., the highest value of the frequency is reached for a system with few particles, and new frequencies appear for a larger number of particles below this value. We found in the previous section that most frequencies increase as a function of μ^* and remain practically unaltered as a function of B . Therefore, we conclude that the behavior of the frequencies in Figs. 10(b) and 11(c) is a consequence of the value of the dipole moment of the particles and therefore it is rather similar in a system with or without an applied magnetic field.

IV. CONCLUSION

Systems consisting of a finite number of magnetic dipoles were analyzed as a function of the dipole moment of the particles and the magnitude of an external magnetic field applied parallel to the plane of the particles. The system of dipole particles undergoes several structural phase transitions as a function of the dipole moment and/or the magnetic field. In particular, when the dipole moment of the particles is increased at zero magnetic field, the hexagonal structure, which is the ground state configuration of a system of particles with zero dipole moment, was deformed in order to increase the structure symmetry, i.e., particles organize in rings when the dipole moment of the particles increases. When a magnetic field is applied, several different kinds of configurations are found as a function of the dipole moment of the particles like, for example, chains and Y-shaped structures, which were previously also encountered in experiments on infinite systems.

We found that the system under the influence of a magnetic field changes its circular to line symmetry, showing that the dipole-dipole interaction in a magnetic field dominates over the confinement potential. In addition, the system exhibits a special configuration, namely, a closed Y-shaped

structure which occurs when two Y-shaped configurations are connected. This structure is attributed to the high density in one direction due to the balance between the confinement potential and the magnetic field. The dependence on the magnetic field was also studied. The system presented an interesting mixture of chain and ring structures for some values of the magnetic field.

The normal-mode frequencies were also studied as a function of the dipole moment and/or magnetic field. The vibrational and rotational oscillation of particles, associated with the lowest nonzero frequency, were studied in detail. In the case of zero magnetic field, all frequencies, except those of the center of mass and rotation modes of the system, increase as a function of the dipole moment of particles. In addition, it was found that the behavior of the LNF is also determined by the rotational motion of the particles and the central particle of the hexagonal structure exhibits the highest amplitude of rotation. Therefore, the rotational motion of particles was shown to be very important in determining the behavior of the LNFs and as a consequence in predicting the stability of the system. In the presence of a magnetic field, it was found that, in addition to most of the frequencies, the frequency of rotation of the system also increases as a function of the dipole moment of the particles. In this case, only the frequency associated with the normal mode of the center of mass remains constant. It was observed that the magnetic field induces a chain structure but produces no effect on the direction of oscillation of the particles. In the hexagonal

structure, the particles with the highest amplitude of rotational oscillation are located at the edge of the system. When the magnetic field is varied, the frequencies remain practically unaltered except the one associated with the rotation of the whole system, which changes its value as a function of the magnetic field.

The dependence on the number of particles was also investigated. In the zero-magnetic-field case, the system with few number of particles ($N < 5$) showed a stable line configuration. In addition, in a dipolar system the maximum number of particles in a single ring ($N = 20$ when $\mu^* = 5$) was found to be larger than that for Coulomb interparticle interaction ($N = 5$). Systems with a large number of particles ($20 < N < 30$ for $\mu^* = 5$) show a structure composed of two rings. In the nonzero-magnetic-field case, the system exhibits chains that are more stable and therefore they can hold a larger number of particles ($N = 12$ for $\mu^* = 5$ and $B = 5$). Due to the fact that the magnetic field acts also as a unidirectional confinement potential, ring structures were not observed.

ACKNOWLEDGMENTS

F.F.M., W.P.F., and G.A.F. were supported by the Brazilian National Research Councils CNPq and CAPES and the Ministry of Planning (FINEP). Part of this work was supported by the Flemish Science Foundation (FWO-VI) and the bilateral program between Flanders and Brazil.

-
- [1] Q. A. Pankhurst, J. Connolly, S. K. Jones, and J. Dobson, *J. Phys. D* **36**, R167 (2003).
 - [2] G. Cheng, D. Romero, G. T. Fraser, and A. R. H. Walker, *Langmuir* **21**, 12055 (2005).
 - [3] A. Yethiraj and A. Van Blaaderen, *Nature (London)* **421**, 513 (2003).
 - [4] A. S. Lubbe, C. Alexiou, and C. Bergemann, *J. Surg. Res.* **95**, 200 (2001).
 - [5] A. Yu. Zubarev and L. Yu. Iskakova, *Physica A* **376**, 38 (2007).
 - [6] K. Raj and R. Moskowicz, *J. Magn. Magn. Mater.* **85**, 233 (1990).
 - [7] K. Raj, B. Moskowicz, and R. Casciari, *J. Magn. Magn. Mater.* **149**, 174 (1995).
 - [8] P. D. Duncan and P. J. Camp, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 107202 (2006).
 - [9] M. Klokkenburg, B. H. Erne, A. Wiedenmann, A. V. Petukhov, and A. P. Philipse, *Phys. Rev. E* **75**, 051408 (2007).
 - [10] L. Assoud, R. Messina, and H. Löwen, *Europhys. Lett.* **80**, 48001 (2007).
 - [11] V. F. Puentes, K. M. Krishnan, and A. P. Alivisatos, *Science* **291**, 2115 (2001).
 - [12] K. Butter, P. H. H. Bomans, P. M. Frederik, G. J. Vroege, and A. P. Philipse, *Nat. Mater.* **2**, 88 (2003).
 - [13] K. Butter, P. H. Bomans, P. M. Frederik, G. J. Vroege, and A. P. Philipse, *J. Phys.: Condens. Matter* **15**, S1451 (2003).
 - [14] M. Klokkenburg, R. P. A. Dullens, W. K. Kegel, B. H. Erne, and A. P. Philipse, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 037203 (2006).
 - [15] P. D. Duncan and P. J. Camp, *J. Chem. Phys.* **121**, 11322 (2004).
 - [16] K. Van Workum and J. F. Douglas, *Phys. Rev. E* **73**, 031502 (2006).
 - [17] E. M. Claesson, B. H. Erne, and A. P. Philipse, *J. Phys.: Condens. Matter* **19**, 286102 (2007).
 - [18] W. P. Ferreira, F. F. Munarin, K. Nelissen, R. N. Costa Filho, F. M. Peeters, and G. A. Farias, *Phys. Rev. E* **72**, 021406 (2005).
 - [19] F. F. Munarin, W. P. Ferreira, G. A. Farias, and F. M. Peeters, *Phys. Rev. B* **76**, 035336 (2007).
 - [20] M. Klindworth, A. Melzer, A. Piel, and V. A. Schweigert, *Phys. Rev. B* **61**, 8404 (2000); W.-T. Juan, Z.-H. Huang, J.-W. Hsu, Y.-J. Lai, and L. I, *Phys. Rev. E* **58**, R6947 (1998).
 - [21] A. Melzer, M. Klindworth, and A. Piel, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 115002 (2001); A. Melzer, *Phys. Rev. E* **67**, 016411 (2003).
 - [22] R. Bubeck, P. Leiderer, and C. Bechinger, *Europhys. Lett.* **60**, 474 (2002).
 - [23] W. P. Ferreira, F. F. Munarin, G. A. Farias, and F. M. Peeters, *J. Phys.: Condens. Matter* **18**, 9385 (2006).
 - [24] L. Baraban, D. Makarov, M. Albrecht, N. Rivier, P. Leiderer, and A. Erbe, *Phys. Rev. E* **77**, 031407 (2008).
 - [25] R. Bubeck, C. Bechinger, S. Naser, and P. Leiderer, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3364 (1999).
 - [26] I. V. Schweigert, V. A. Schweigert, and F. M. Peeters, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 4381 (2000).
 - [27] V. A. Schweigert and F. M. Peeters, *Phys. Rev. B* **51**, 7700 (1995).

- [28] M. Klokkenburg, B. H. Erne, J. D. Meeldijk, A. Wiedenmann, A. V. Petukhov, R. P. A. Dullens, and A. P. Philipse, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 185702 (2006).
- [29] B. Partoens and F. M. Peeters, *J. Phys.: Condens. Matter* **9**, 5383 (1997).
- [30] T. Tlusty and S. A. Safran, *Science* **90**, 1328 (2000).
- [31] A. Yu. Zubarev and L. Yu. Iskakova, *Phys. Rev. E* **76**, 061405 (2007).
- [32] V. M. Bedanov and F. M. Peeters, *Phys. Rev. B* **49**, 2667 (1994).

Referências

- [1] LEIDERER, P.; EBNER, W.; SHIKIN, V. B. *Surf. Sci.*, v. 113, p. 405, 1987.
- [2] MELZER, A. *Phys. Rev. E*, v. 67, p. 016411, 2003.
- [3] DREWSEN, M.; JENSEN, I.; LINDBALLE, J.; NISSEN, N.; MARTINUSSEN, R.; MORTENSEN, A.; STAANUM, P.; VOIGT, D. *International Journal of Mass Spectrometry*, v. 229, p. 83, 2003.
- [4] SEUL, M.; SAMMON, M. *Phys. Rev. Lett.*, v. 64, p. 1903, 1990.
- [5] CHANG, H. C.; LIN, T. L.; CHANG, G. G. *Biophysical Journal*, v. 78, p. 2070, 2000.
- [6] CHEN, W.; TAN, S.; HUANG, Z.; NG, T.-K.; FORD, W. T.; TONG, P. *Phys. Rev. E*, v. 74, p. 021406, 2006.
- [7] GAO, J.; ZHANG, W.; HUANG, P.; ZHANG, B.; ZHANG, X.; XU, B. *J. Am. Chem. Soc.*, v. 130, p. 3710, 2008.
- [8] PRASAD, N.; RATHINASAMY, K.; PANDA, D.; BAHADUR, D. *J. Mater. Chem.*, v. 17, p. 5042, 2007.
- [9] HU, S.-H.; TSAI, C.-H.; LIAO, C.-F.; LIU, D.-M.; ; CHEN, S.-Y. *Langmuir*, v. 24, p. 11811, 2008.
- [10] SCHWEIGERT, V. A.; PEETERS, F. M. *Phys. Rev. B*, v. 51, p. 7700, 1995.
- [11] YETHIRAJ, A.; BLAADEREN, A. V. *Nature (London)*, v. 421, p. 513, 2003.
- [12] MURRAY, C. A.; WENK, R. A. *Phys. Rev. Lett.*, v. 62, p. 1643, 1989.
- [13] MIRACLE, D. *Nature Materials*, v. 3, p. 697, 2004.
- [14] SCHALL, D. W. P.; SPAEPEN, F. *Science*, v. 318, p. 1895, 2007.
- [15] CRANDALL, R. S.; WILLIAMS, R. *Phys. Lett. A*, v. 34, p. 404, 1971.
- [16] GRIMES, C. C.; ADAMS, G. *Phys. Rev. Lett.*, v. 42, p. 795, 1979.
- [17] ASHOORI, R. C. *Nature*, v. 379, p. 413, 1996.
- [18] BUBECK, R.; BECHINGER, C.; NESER, S.; LEIDERER, P. *Phys. Rev. Lett*, v. 82, p. 3364, 1999.
- [19] CHU, J. H.; I, L. *Phys. Rev. Lett.*, v. 72, p. 4009, 1994.
- [20] MERLINO, R. L.; GOREE, J. A. *Physics Today*, 2004.

- [21] SELWYN, G. S.; SINGH, J.; BENNETT, R. S. *J. Vac. Sci. Technol. A*, v. 7, p. 2758, 1989.
- [22] SELWYN, G. S.; MCKILLOP, J. S.; HALLER, K.; WU, J. *J. Sci. Technol. A*, v. 8, p. 1726, 1990.
- [23] THOMAS, H.; MORFILL, G. E.; DEMMEL, V.; GOREE, J.; FEUERBACHER, B.; MÖHLMANN, D. *Phys. Rev. Lett.*, v. 73, p. 652, 1994.
- [24] MELZER, A.; TROTTENBERG, T.; PIEL, A. *Phys. Lett. A*, v. 191, p. 301, 1994.
- [25] DIEDRICH, F.; PEIK, E.; QUINT, J. M. C. and W.; WALTHER, H. *Phys. Rev. Lett.*, v. 59, p. 2931, 1987.
- [26] WINNELAND, D. J.; BERQUIST, J. C.; ITANO, W. M.; BOLLINGER, J. J.; MANNEY, C. H. *Phys. Rev. Lett.*, v. 59, p. 2935, 1987.
- [27] KELLER, S. L.; MCCONNELL, H. M. *Phys. Rev. Lett.*, v. 82, p. 1602, 1999.
- [28] LARSEN, A. E.; GRIER, D. G. *Nature (London)*, v. 385, p. 230, 1997.
- [29] HAN, Y.; GRIER, D. G. *Phys. Rev. Lett.*, v. 91, p. 038302, 2003.
- [30] GELBART, W. M.; BRUINSMA, R. F.; PINCUS, P. A.; PARSEGIAN, V. A. *Phys. Today*, v. 53, n. 9, p. 38, 2000.
- [31] GAO, J.; XU, B. *Nano today*, v. 4, p. 37, 2009.
- [32] SCIORTINO, F. *Nature Mater.*, v. 1, p. 145, 2002.
- [33] CAMPBELL, A. I.; ANDERSON, V. J.; DUIJNEVELDT, J. S. van; BARTLETT, P. *Phys. Rev. Lett.*, v. 94, p. 208301, 2005.
- [34] LU, P. J.; CONRAD, J. C.; WYSS, H. M.; SCHOFIELD, A. B.; WEITZ, D. A. *Phys. Rev. Lett.*, v. 96, p. 028306, 2006.
- [35] GRZYBOWSKI, B. A.; STONE, H. A.; WHITESIDES, G. M. *Nature*, v. 405, p. 1033, 2000.
- [36] GRZYBOWSKI, B. A.; WILES, J. A.; WHITESIDES, G. M. *Phys. Rev. Lett.*, v. 90, n. 8, p. 083903, 2003.
- [37] GULLUP, J.; LANGER, J. *Rev. Mod. Phys.*, v. 71, p. 396, 1999.
- [38] HOOG, E. H. A. de; KEGEL, W. K.; BLAANDEREN, A. van; LEKKERKERKER, H. N. W. *Phys. Rev. E*, v. 64, p. 021407, 2001.
- [39] ZEE, J. van der. *Ann. Oncol.*, v. 13, p. 1173, 2002.
- [40] FRENKEL, D.; SMIT, B. *Understanding Molecular Simulation*. [S.l.]: Academic Press, 1996.
- [41] HEERMANN, D. W. *Computer Simulation Methods*. [S.l.]: Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1990.

- [42] RAPAPORT, D. C. *The Art of Molecular Dynamics Simulation*. [S.l.]: Cambridge University Press, 1995.
- [43] OOSAWA, F.; ASAKURA, S. *Thermodynamics of the Polymerization of Protein*. [S.l.]: Academic Press, 1975.
- [44] BUXTON, R. B.; ULUDAG, K.; DUBOWITZ, D. J.; LIU, T. T. *NeuroImage*, v. 23, p. S220, 2004.
- [45] BEEMAN, D. *J. Comp. Phys.*, v. 20, p. 130, 1976.
- [46] PRESS, W.; TEUKOLSKY, S. A.; VETTERLING, W. T.; FLANNERY, B. P. *Numerical Recipes*. [S.l.]: Cambridge University Press, 1986.
- [47] NOSÉ, S. *J. Chem. Phys.*, v. 81, p. 511, 1984.
- [48] ANDERSON, H. C. *J. Chem. Phys.*, v. 72, p. 2384, 1980.
- [49] PARRINELLO, M.; RAHMAN, A. *Phys. Rev. Lett.*, v. 45, p. 1196, 1980.
- [50] PARRINELLO, M.; RAHMAN, A. *J. Appl. Phys.*, v. 52, p. 7182, 1981.
- [51] EWALD, P. P. *Ann. Physik*, v. 64, p. 253, 1921.
- [52] ARFKEN, G. *Mathematical Methods for Physicists*. [S.l.]: Academic Press, 1985.
- [53] METROPOLIS, N.; ROSENBLUTH, A. W.; TELLER, A. H.; TELLER, E. *J. Chem. Phys.*, v. 21, p. 1087, 1953.
- [54] PANKHURST, Q. A.; CONNOLLY, J.; JONES, S. K.; DOBSON, J. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, v. 36, p. R167, 2003.
- [55] CHENG, G.; ROMERO, D.; FRASER, G. T.; WALKER, A. R. H. *Langmuir*, v. 21, n. 26, p. 12055, 2005.
- [56] LUBBE, A. S.; ALEXIOU, C.; BERGEMANN, C. *J. Surg. Res.*, v. 95, p. 200, 2001.
- [57] ZUBAREV, A. Y.; ISKAKOVA, L. Y. *Physica A*, v. 376, p. 38, 2007.
- [58] RAJ, K.; MOSKOWITZ, R. *J. Magn. Magn. Mater*, v. 85, p. 233, 1990.
- [59] RAJ, K.; MOSKOWITZ, B.; CASCIARI, R. *J. Magn. Magn. Mater*, v. 149, p. 174, 1995.
- [60] SCHWEIGERT, I. V.; SCHWEIGERT, V. A.; PEETERS, F. M. *Phys. Rev. Lett.*, v. 84, p. 4381, 2000.
- [61] KLOKKENBURG, M.; ERNE, B. H.; MEELDIJK, J. D.; WIEDENMANN, A.; PETUKHOV, A. V.; DULLENS, R. P. A.; PHILIPSE, A. P. *Phys. Rev. Lett.*, v. 97, p. 185702, 2006.
- [62] PARTOENS, B.; PEETERS, F. M. *J. Phys.: Condens. Matter*, v. 9, p. 5383, 1997.
- [63] FERREIRA, W. P.; MUNARIN, F. F.; FARIAS, G. A.; PEETERS, F. M. *J. Phys.: Condens. Matter*, v. 18, n. 9385, 2006.

- [64] TLUSTY, T.; SAFRAN, S. A. *Science*, v. 90, p. 1328, 2000.
- [65] DUNCAN, P. D.; CAMP, P. J. *Phys. Rev. Lett.*, v. 97, p. 107202.
- [66] KLOKKENBURG, M.; DULLENS, R. P. A.; KEGEL, W. K.; ERNE, B. H.; PHILIPSE, A. P. *Phys. Rev. Lett.*, v. 96, p. 037203, 2006.
- [67] ZUBAREV, A. Y.; ISKAKOVA, L. Y. *Phys. Rev. E*, v. 76, p. 061405, 2007.
- [68] BEDANOV, V. M.; PEETERS, F. M. *Phys. Rev. B*, v. 49, p. 2667, 1994.
- [69] KONG, M.; PARTOENS, B.; PEETERS, F. M. *Phys. Rev. E*, v. 65, p. 046602, 2002.
- [70] FERREIRA, W. P.; MATULIS, A.; FARIAS, G. A.; PEETERS, F. M. *Phys. Rev. E*, v. 67, p. 046601, 2003.
- [71] FERREIRA, W. P.; PEETERS, F. M.; FARIAS, G. A. *Phys. Rev. E*, v. 68, p. 066405, 2003.
- [72] FILINOV, A. V.; BONITZ, M.; LOZOVIK, Y. E. *Phys. Rev. Lett.*, v. 86, p. 3851, 2001.
- [73] FARIAS, G. A.; PEETERS, F. M. *Solid State Commun.*, v. 100, p. 711, 1996.
- [74] FERREIRA, W. P.; PARTOENS, B.; PEETERS, F. M.; FARIAS, G. A. *Phys. Rev. E*, v. 71, p. 021501, 2005.
- [75] HARJU, A.; SILJAMÄKI, S.; NIEMINEN, R. M. *Phys. Rev. B*, v. 65, p. 075309, 2002.
- [76] SZAFRAN, B.; PEETERS, F. M.; BEDNAREK, S. *Phys. Rev. B*, v. 70, p. 205318, 2004.
- [77] PARTOENS, B.; SCHWEIGERT, V. A.; PEETERS, F. M. *Phys. Rev. Lett.*, v. 79, p. 3990, 1997.
- [78] MARLO, M.; ALATALO, M.; HARJU, A.; NIEMINEN, R. M. *Phys. Rev. B*, v. 66, p. 155322, 2002.
- [79] MESSINA, R.; HOLM, C.; KREMER, K. *Phys. Rev. E*, v. 64, p. 021405.
- [80] KOSTERLITZ, J. M.; THOULESS, D. J. *J. Phys. C*, v. 6, p. 1181, 1973.
- [81] NELSON, D. R.; HALPERIN, B. I. *Phys. Rev. B*, v. 19, p. 2457, 1979.
- [82] YOUNG, A. P. *Phys. Rev. B*, v. 19, p. 1855, 1979.
- [83] GLATTLI, D. C.; ANDREI, E.; DEVILLE, G.; POITRENAUD, J.; WILLIAMS, F. I. B. *Phys. Rev. Lett.*, v. 54, p. 1710, 1985.
- [84] MARCUS, A. H.; RICE, S. A. *Phys. Rev. Lett.*, v. 77, p. 2577, 1996.
- [85] SESHADRI, R.; WESTERVELT, R. M. *Phys. Rev. Lett.*, v. 66, p. 2774, 1991.
- [86] ZAHN, K.; MARET, G. *Phys. Rev. Lett.*, v. 85, p. 3656, 2000.

- [87] LINDERMANN, F. A. *Z. Phys.*, v. 11, p. 609, 1910.
- [88] LOZOVIK, Y. E.; FARTZDINOV, V. M. *Solid State Commun.*, v. 54, p. 725, 1985.
- [89] BEDANOV, V. M.; GADIYAK, G. V.; LOZOVIK, Y. E. *Phys. Lett.*, v. 109A, p. 289, 1985.
- [90] COUPIER, G.; GUTHMANN, C.; NOAT, Y.; JEAN, M. S. *Phys. Rev. E*, v. 71, p. 046105, 2005.
- [91] NELISSEN, K.; PARTOENS, B.; PEETERS, F. M. *Phys. Rev. E*, n. 69, p. 046605, 2004.
- [92] GRZYBOWSKI, B. A.; JIANG, X.; STONE, H. A.; WHITESIDES, G. M. *Phys. Rev. E*, v. 65, p. 011603, 2001.
- [93] FERREIRA, W. P.; MUNARIN, F. F.; NELLISEN, K.; FILHO, R. N. C.; PEETERS, F. M.; FARIAS, G. A. *Phys. Rev. E*, v. 72, n. 0021406, 2005.
- [94] DROCCO, J. A.; REICHHARDT, C. J. O.; REICHHARDT, C.; JANKÓ, B. *Phys. Rev. E*, v. 68, p. 060401, 2003.
- [95] NELISSEN, K.; PARTOENS, B.; SCHWEIGERT, I.; PEETERS, F. M. *Europhys. Lett.*, v. 74, p. 1046, 2006.
- [96] TOMECKA, D.; PARTOENS, B.; PEETERS, F. M. *Phys. Rev. E*, v. 71, p. 062401, 2005.
- [97] PHILP, D.; STODDART, J. F. *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.*, v. 35, p. 1154, 1996.
- [98] SEAR, R. P.; GELBART, W. M. *J. Chem. Phys.*, v. 110, p. 4582, 1999.
- [99] STOJKOVIĆ, B. P.; YU, Z. G.; CHERNYSHEV, A. L.; BISHOP, A. R.; NETO, A. H. C.; GRØNBECH-JENSEN, N. *Phys. Rev. B*, v. 62, p. 4353, 2000.
- [100] STOJKOVIĆ, B. P.; YU, A. R. B. Z. G.; NETO, A. H. C.; GRØNBECH-JENSEN, N. *Phys. Rev. Lett.*, v. 82, n. 4679, 1999.
- [101] BUBECK, R.; BECHINGER, C.; NESER, S.; LEIDERER, P. *Phys. Rev. Lett.*, v. 82, p. 3364, 1999.
- [102] WEI, Q. H.; BECHINGER, C.; RUDHARDT, D.; LEIDERER, P. *Phys. Rev. Lett.*, v. 81, p. 2606, 1998.
- [103] FRADKIN, E.; KIVELSON, S. A. *Phys. Rev. B*, v. 59, p. 8065, 1999.
- [104] SCHMALIAN, J.; WOLYNES, P. G. *Phys. Rev. Lett.*, v. 85, p. 836, 2000.
- [105] MLADEK, B. M.; GOTTWALD, D.; KAHL, G.; NEUMANN, M.; LIKOS, C. N. *Phys. Rev. Lett.*, v. 96, p. 045701, 2006.
- [106] NELISSEN, K.; PARTOENS, B.; PEETERS, F. M. *Phys. Rev. E*, v. 71, p. 066204, 2005.

-
- [107] BECHINGER, C.; WEI, Q. H.; LEIDERER, P. *J. Phys.: Condens. Matter*, v. 12, p. A425, 2000.
- [108] REICHHARDT, C. J. O.; REICHHARDT, C.; BISHOP, A. R. *Europhys. Lett.*, v. 72(3), p. 444, 2005.
- [109] ASHCROFT, N. W.; MERMIN, N. D. *Solid State Physics*. [S.l.]: Saunders College, 1976.