

D

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO GRANDE DO SUL

INSTITUTO DE FÍSICA

ESTUDO DA INTERAÇÃO HIPERFINA MAGNÉTICA
SÔBRE OS NÚCLEOS DE ^{181}Ta EM NÍQUEL PELO
MÉTODO DA CORRELAÇÃO ANGULAR DIFERENCIAL

Rogério Pohlmann Livi

PORTO ALEGRE

— 1971 —

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO GRANDE DO SUL

Instituto de Física

ESTUDOS DA INTERAÇÃO HIPERFINA MAGNÉTICA SOBRE
OS NÚCLEOS DE ^{181}Ta EM NIQUEL PELO MÉTODO DA
CORRELAÇÃO ANGULAR DIFERENCIAL*

Rogério Pohlmann Livi

Trabalho realizado sob orientação dos Drs. F.C.Zawislak e J.D.Rogers, apresentado ao Instituto de Física da Universidade Federal do Rio Grande do Sul, em preenchimento parcial dos requisitos para obtenção do grau de Mestre em Ciências.

*Trabalho parcialmente financiado pelas seguintes Instituições: Conselho Nacional de Pesquisas, Banco Nacional de Desenvolvimento Econômico, Programa Regional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico da OEA, Agência Internacional de Energia Atômica, Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado do Rio Grande do Sul, Coordenação do Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior e Conselho de Pesquisas da Universidade Federal do Rio Grande do Sul.

Porto Alegre

- 1971 -

SINOPSE

O presente trabalho consta de três partes. Na primeira discutimos a correlação angular direcional gama-gama, suas aplicações e seu desempenho frente a outras técnicas. Na segunda parte procuramos resumir a situação atual do estudo de interações hiperfinas magnéticas em matrizes ferromagnéticas. Na terceira parte descrevemos e apresentamos os resultados da medida, à temperatura ambiente, de campos magnéticos hiperfinos atuando nos núcleos de ^{181}Ta difundidos em matriz de Níquel. O método empregado foi o da correlação angular diferencial gama-gama.

ABSTRACT

The present work has three parts. In the first we discuss the directional gamma-gamma angular correlations and the applications of this technique. A comparison is made between perturbed angular correlations (PAC) and other techniques used to measure hyperfine interactions. In the second part we make a resume of the magnetic hyperfine interactions studies in ferromagnetic matrices. The experimental data of our measurements of magnetic hyperfine fields in the ^{181}Ta Ni system at room temperature are described in the third part. All the measurements were performed by gamma-gamma differential angular correlation technique.

INDICE

	página
I	CORRELAÇÕES ANGULARES DIRECIONAIS GAMA-GAMA
I - 1	Correlações Angulares não Perturbadas 1
I - 2	Correlações Angulares Perturbadas 4
I - 3	Tipos de Perturbação, Técnicas de medida e Aplicações 6
I - 4	Comparação da Correlação Angular com outras Técnicas 12
II	INTERAÇÕES HIPERFINAS MAGNÉTICAS
	Introdução 14
II - 1	O Campo Magnético Efetivo no Núcleo da Impureza e o Hamiltoniano da Interação 16
II - 2	O Campo Hiperfino sôbre o Núcleo de Ferro em Matriz de Ferro. 17
II - 3	Descrição Teórica da Variação dos Campos Hiperfinos Magnéticos como Função do Número Atômico da Impureza 20
II - 4	Leis Empíricas Seguidas pelos Campos Hiperfinos Magnéticos no Núcleo de Impurezas em Matrizes Ferromagnéticas 24
II - 5	Comentários 28
III	MEDIDA DOS CAMPOS HIPERFINOS NOS NÚCLEOS DE ^{181}Ta EM MATRIZ DE NÍQUEL
	Introdução 29

	página
III - 1 Atividade	30
III - 2 Preparação da Amostra Ferromagnética	31
III - 3 Equipamento	32
III - 4 Apresentação e Tratamento dos Dados Experimentais	39
III - 5 Resultados Experimentais	57
III - 6 Comentários	59
 REFERÊNCIAS	 62

I - CORRELAÇÕES ANGULARES DIRECIONAIS GAMA-GAMA

I - 1 Correlações Angulares não Perturbadas

Uma descrição teórica completa das distribuições angulares de radiações nucleares requer o uso de técnicas de operadores de momentum angular e álgebra de Racah. Vamos limitar-nos a expor as idéias físicas básicas envolvidas e a descrever de maneira geral os resultados mais importantes. Um estudo detalhado pode ser encontrado na referência 1.

A probabilidade de emissão de uma partícula ou foton por um núcleo excitado depende em geral do ângulo entre a direção do spin nuclear e a de emissão. Medindo o fluxo de radiação em diversos pontos equidistantes de uma amostra radioativa veremos que este é isotrópico. Isto se dá porque na amostra temos um grande número de núcleos orientados aleatoriamente. Para se obter anisotropia na emissão é necessário que, de alguma forma, consiga-se uma certa quantidade de núcleos com a mesma orientação. Podemos preparar uma orientação de spins nos casos em que o núcleo excitado decai emitindo dois ftons em cascata, como mostrado na figura I.1. Usando dois detetores, um fixo e outro móvel, detetamos seletivamente γ_1 no primeiro e γ_2 no segundo. Contando o número de coincidências (pares de radiações γ_1 e γ_2 provenientes do mesmo núcleo) como função do ângulo θ entre os detetores, veremos que sua distribuição é quase sempre anisotrópica, dependendo dos spins envolvidos. A probabilidade de emissão de γ_1 seguido de γ_2 a um ângulo θ com relação à primeira direção de emissão depende de θ . Um esquema deste tipo de experiência pode ser visto na figura I.2. Neste caso obtém-se anisotropia pelo fato de que, fixando o detector que conta os raios gama da primeira transição, seleciona

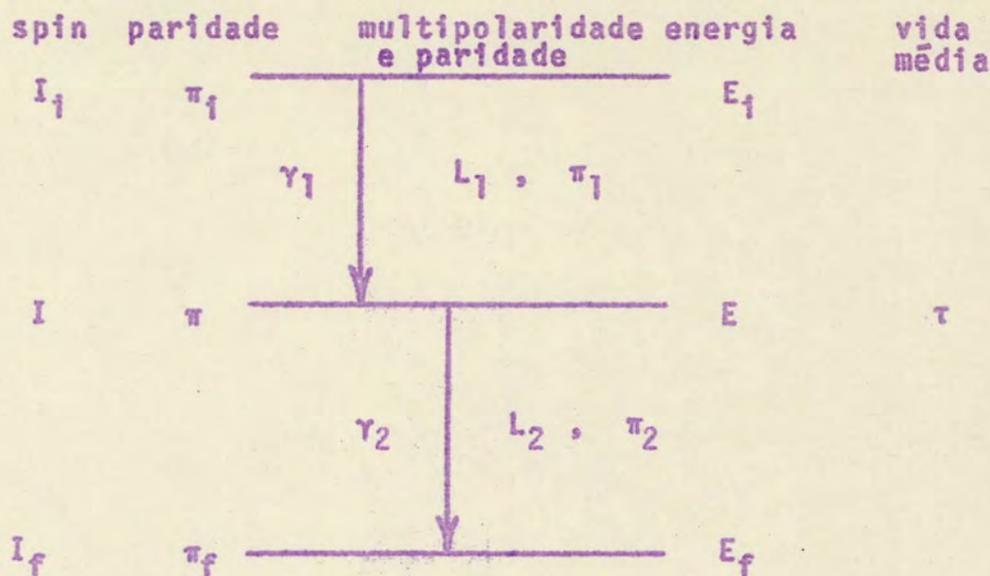


Figura I - 1 Esquema típico de níveis de energia de um núcleo e os parâmetros mais importantes para a correlação angular.

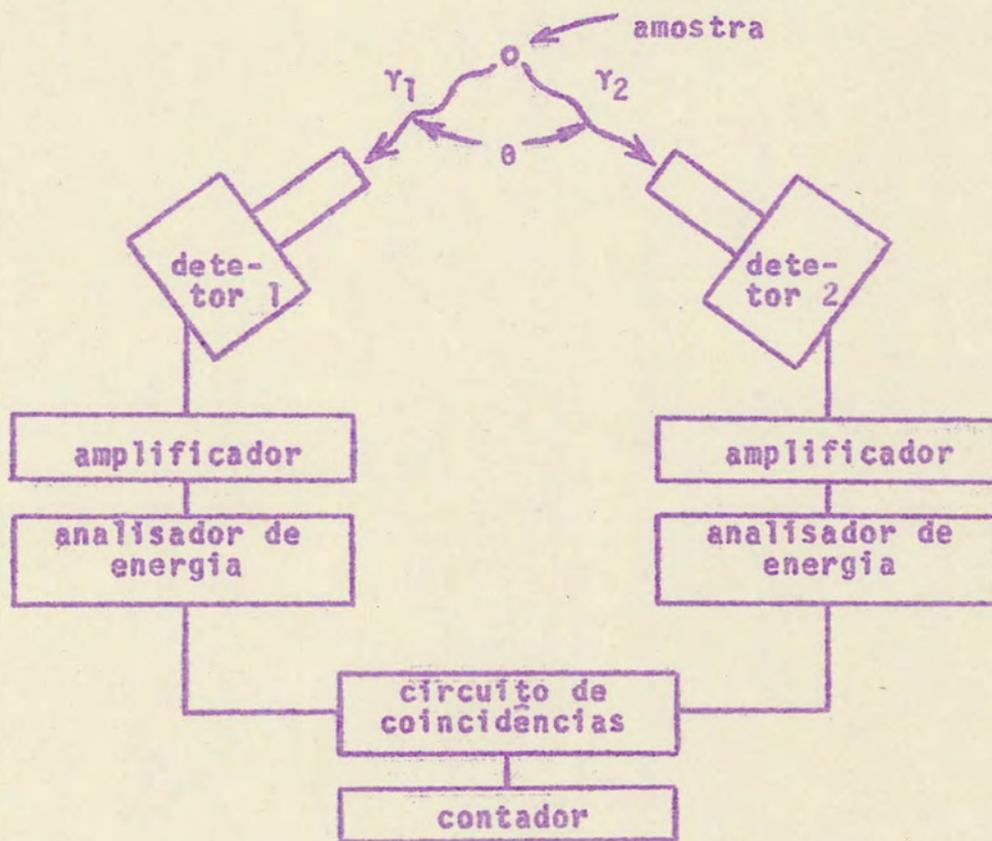


Figura I - 2 Esquema básico de uma experiência de correlações angulares direcionais.

mos um conjunto de núcleos que no estado intermediário têm os spins alinhados, sendo portanto anisotrópica a emissão de γ_2 .

A função que descreve a distribuição angular das coincidências é chamada de correlação angular direcional e pode ser expressa na forma:

$$W(\theta) = \sum_{k(\text{par})} A_{kk} P_k(\cos \theta)$$

onde $k_{\text{máx}} \cong \min(2I, 2L_1, 2L_2)$ e $P_k(\cos \theta)$ são os polinômios de Legendre. Os coeficientes A_{kk} são separáveis em um produto de dois coeficientes,

$$A_{kk} = A_k^{(1)} \cdot A_k^{(2)},$$

os quais dependem dos spins dos níveis e das multipolaridades das radiações envolvidas.

Na maioria dos casos a correlação angular é convenientemente descrita usando-se somente dois parâmetros, A_{22} e A_{44} . Além disso, costuma-se normalizar a função correlação angular considerando $A_{00} = 1$, donde

$$W(\theta) = 1 + A_{22} P_2(\cos \theta) + A_{44} P_4(\cos \theta)$$

A função acima descreve o caso particular em que o núcleo não sofre perturbação alguma enquanto está no estado intermediário da cascata, sendo por isso chamada de função correlação angular não perturbada.

I - 2 Correlações Angulares Perturbadas

Em geral a correlação angular de uma cascata é alterada quando o núcleo, no seu estado intermediário, sofre interações. Estas podem mudar as populações dos subníveis do estado intermediário. Com isso a orientação produzida com a detecção da primeira radiação é modificada, acontecendo o mesmo com a distribuição angular do segundo gama. Diz-se então que a correlação angular é perturbada. Por exemplo, quando a amostra for policristalina e os núcleos não estiverem orientados, temos:

$$W(\theta, t) = \sum_{k(\text{par})} A_{kk} G_{kk}(t) P_k(\cos \theta)$$

onde os $G_{kk}(t)$ são os fatores de perturbação.

Na seção seguinte veremos os diversos tipos de interação que um núcleo pode sofrer. Um estudo completo sobre o assunto pode ser visto na referência 2.

Dispondo de um circuito que nos dê na saída, além da indicação de cada coincidência, o intervalo de tempo decorrido entre a chegada dos dois ftons da cascata (figura I-3), podemos medir a dependência temporal da correlação angular. A função medida neste caso é a chamada função correlação angular diferencial, pois detetamos γ_2 num intervalo de tempo entre t e $t + \Delta t$ depois da detecção do γ_1 .

O estado intermediário da cascata tem uma vida média τ , portanto a probabilidade de emissão de uma radiação gama num tempo t é expressa por $\exp(-t/\tau)$. Então, para a medida de correlações angulares diferenciais o tempo de resolução τ_R do equipamento deve ser menor que a vida média do estado intermediário.

No caso oposto, quando $\tau_R > \tau$, medimos a correlação an-

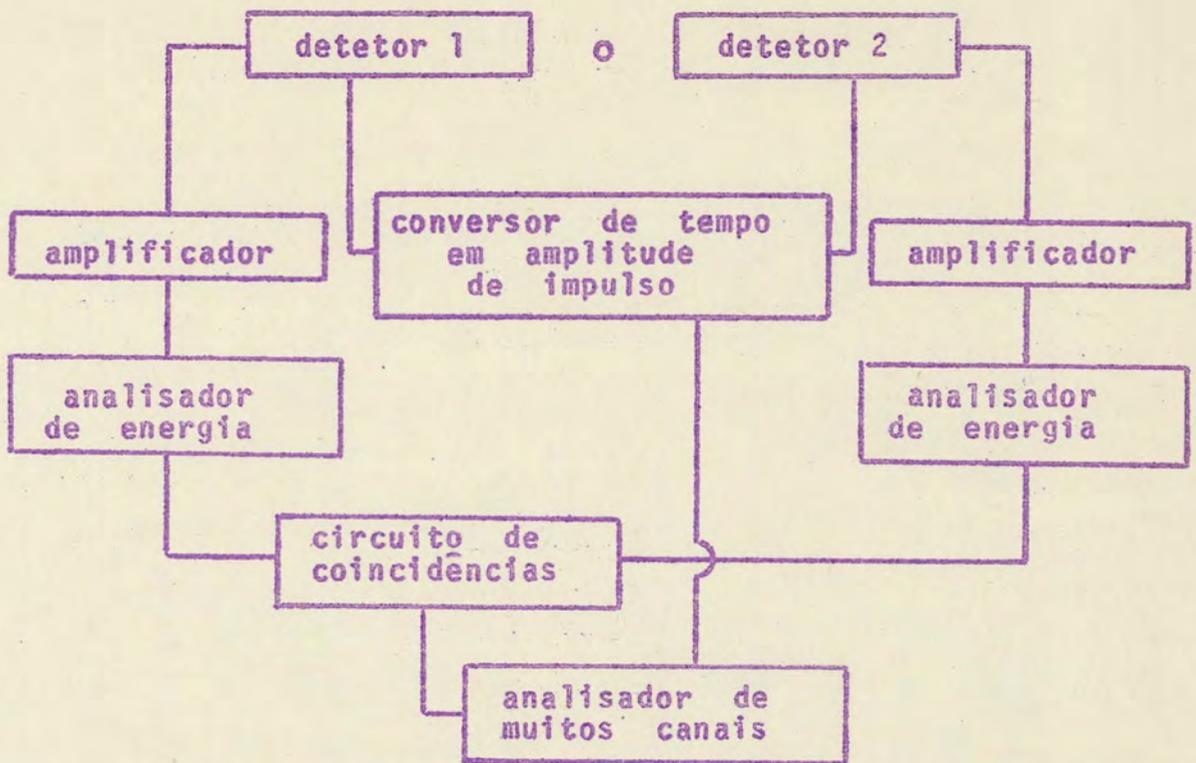


Figura I-3 Esquema básico de uma experiência para a medida de correlações angulares diferenciais.

gular integral. Neste caso, quando a correlação angular for perturbada, os fatores de perturbação determinados são uma média de todas as perturbações ocorridas durante a vida do estado intermediário da cascata. Podemos então expressar a função $W(\theta, t=\infty)$ na seguinte forma:

$$W(\theta, t=\infty) = \frac{1}{\tau} \int_0^{\infty} \sum_{k(\text{par})} A_{kk} G_{kk}(t) P_k(\cos \theta) e^{-t/\tau} dt$$

ou

$$W(\theta, t=\infty) = \sum_{k(\text{par})} A_{kk} \overline{G_{kk}(\infty)} P_k(\cos \theta)$$

I - 3 Tipos de perturbação, técnicas de medida e aplicações

O método da correlação angular é uma das ferramentas mais importantes para a determinação de propriedades de níveis nucleares excitados e multipolaridades das radiações envolvidas no processo de decaimento.

Nas experiências usa-se geralmente amostras radioativas no estado líquido ou sólido, portanto os núcleos sentem campos extranucleares, de caráter elétrico ou magnético, que interagem com os respectivos momentos. Tal interação perturba a correlação angular e a torna dependente do tempo. Se o propósito da experiência for determinar spins e multipolaridades, torna-se importante reduzir a perturbação a valores pequenos ou negligíveis. Se os spins e multipolaridades forem conhecidos é possível estudar a interação em si. No caso magnético a interação depende de $\langle \vec{\mu} \cdot \vec{H} \rangle$, onde $\vec{\mu}$ é o momento de dipolo magnético do estado intermediário e \vec{H} o campo magnético no sítio onde está o núcleo. No caso elétrico a interação depende de $\langle Q \cdot \nabla \vec{E} \rangle$, onde Q é o momento de quadrupolo elétrico e $\nabla \vec{E}$ é o gradiente do campo elétrico no sítio do núcleo. Se, finalmente, conhecermos também os momentos nucleares, podemos determinar os campos extranucleares e estudar a natureza dos diferentes mecanismos de interação causados pela estrutura física e química da amostra.

Os campos extranucleares podem ser constantes no tempo (estáticos) ou dependentes do tempo. Do ponto de vista semi-clássico, o núcleo, sob ação de um campo estático, precessiona em torno do eixo de simetria do campo com a frequência de Larmor no caso magnético ou com uma ou mais frequências, conforme seja o valor do spin do nível intermediário, no caso elétrico.

Campos dependentes do tempo podem ser criados por um átomo ionizado durante o seu processo de recombinação; por átomos em um líquido onde o movimento browniano faz os campos flutuarem aleatoriamente no tempo ou por movimentos moleculares e outros mecanismos. Estudos detalhados podem ser vistos nas referências 3,4,5 e 6. Nesses casos, a interação estatística força os subníveis do estado intermediário a equipopulação, tornando a correlação angular isotrópica depois de um certo tempo. Semi-clássicamente pode-se pensar que os núcleos sofrem precessões instantâneas em torno de direções que mudam aleatoriamente no tempo e aos poucos, durante a vida do estado intermediário, desviam-se da orientação inicial, fazendo com que a correlação angular tenda a isotropia. Se a vida média do nível intermediário da cascata for bastante longa, pode-se observar a variação da anisotropia como função do tempo, sendo então possível estudar o processo de relaxação nuclear. Neste caso os fatores de perturbação são dados por:

$$G_{kk}(t) = e^{-\lambda_k t}$$

Consideremos o caso de uma correlação angular perturbada por um campo magnético estático. A função correlação angular não perturbada é expressa por:

$$W(\theta) = \sum_{k(\text{par})} A_{kk} P_k(\cos \theta)$$

ou

$$W(\theta) = \sum_{k(\text{par})} b_{kk} \cos k\theta$$

Se um campo magnético estático for aplicado perpendicularmente ao plano dos detetores, no intervalo de tempo $0 \rightarrow t$,

o núcleo precessiona de um $\Delta\theta = \omega_L t$ e temos que

$$W(\theta, \pm H, t) = \sum_{k(\text{par})} b_{kk} \cos k(\theta \mp \omega_L t)$$

onde ω_L é a frequência de Larmor que é expressa por

$$\omega_L = - \frac{\vec{\mu} \cdot \vec{H}}{I \hbar} = - g \mu_N \frac{H}{\hbar} = 4,79 \times 10^3 \text{ g H}$$

onde g é o fator giromagnético nuclear, I o spin do nível intermediário, μ_N o magneton nuclear e H o valor do campo magnético em gauss. A frequência ω_L pode ser medida experimentalmente e se conhecermos \vec{H} podemos calcular o momento de dipolo magnético $\vec{\mu}$ e vice-versa.

Nos casos em que $\tau_R \gg \tau$ (medida integral) e sem outras perturbações além do campo magnético estático \vec{H} , temos que:

$$W(\theta, \pm H, t \rightarrow \infty) = \frac{1}{\tau} \int_0^{\infty} \sum_{k(\text{par})} b_{kk} \cos k(\theta \mp \omega_L t) e^{-t/\tau} dt$$

$$W(\theta, \pm H, t \rightarrow \infty) = \sum_{k(\text{par})} \frac{b_{kk} \cos k(\theta \mp \Delta\theta_k)}{[1 + (k\omega_L \tau)^2]^{1/2}}$$

onde $k\Delta\theta_k = \text{arc tg}(k\omega_L \tau)$. Vemos então que a função correlação angular tem a mesma forma, mas está multiplicada por um fator de atenuação $[1 + (k\omega_L \tau)^2]^{-1/2}$ e defasada de um ângulo $\Delta\theta_k$ em relação à expressão sem a perturbação magnética estática.

Existem diversas técnicas de medida da rotação $\Delta\theta_k$. Uma delas consiste em medir a função correlação angular com o campo magnético "para cima", $+H$ e "para baixo", $-H$. O resultado pode ser visto na figura 1-4 para um caso onde $k_{\text{máx.}} = 2$. Note-se que da medida de $\Delta\theta_k$ extraímos o valor de ω_L .

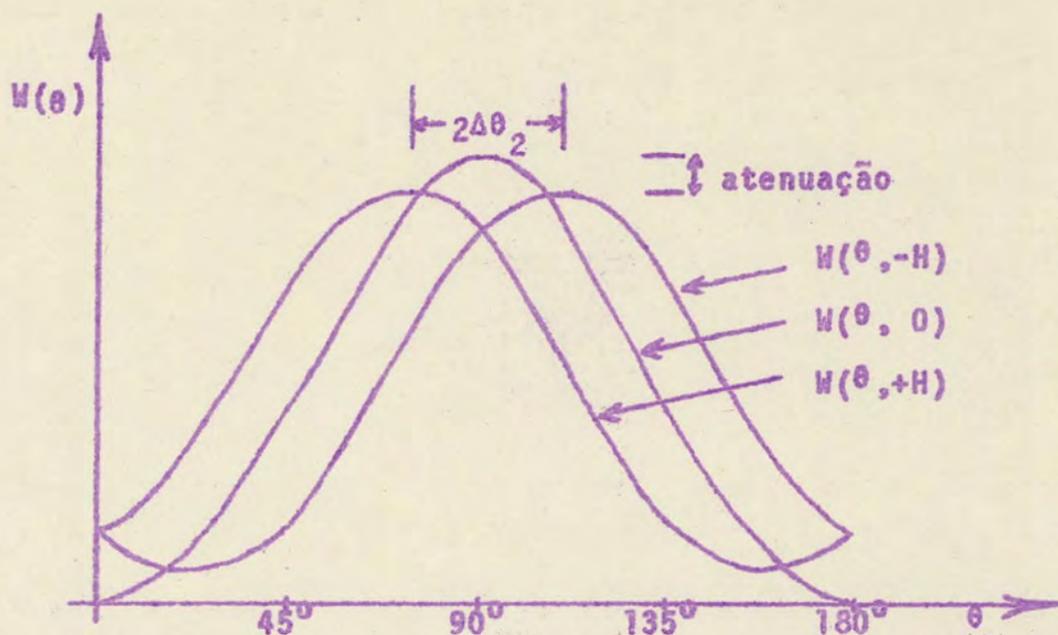


Figura I-4 As curvas expressam o resultado de medidas de correlações angulares integrais sem campo magnético e com campo "para cima", +H e "para baixo", -H, num caso onde $k_{\text{máx.}} = 2$.

Outra maneira de obter a rotação $\Delta\theta_k$ é medir coincidências com campos "para cima" e "para baixo", num ângulo onde $dW(\theta)/d\theta$ seja máxima e calcular a razão

$$R = 2 \frac{[W(\theta, +H, t=\infty) - W(\theta, -H, t=\infty)]}{W(\theta, +H, t=\infty) + W(\theta, -H, t=\infty)}$$

Se na função correlação angular tivermos $k_{\text{máx.}} = 2$, medindo a razão acima para $\theta = 45^\circ, 135^\circ, 225^\circ$ ou 315° , obteremos

$$R = \pm 4 b_{22} \overline{G_{22}} \omega_L \tau$$

onde o sinal + se refere aos ângulos de 135° e 315° e o sinal - aos ângulos 45° e 225° . Neste método, apesar de se medir a razão em um ângulo fixo, é necessário medir a correlação angular para se obter o coeficiente b_{22} e o fator de atenuação $\overline{G_{22}}$.

Os ângulos de rotação $\Delta\theta_k$ mensuráveis estão entre 1° e 45° e o fator de atenuação $[1 + (k\omega_L\tau)^2]^{-1/2}$ destrói a anisotropia para grandes campos magnéticos. A perturbação experimentalmente medida pelo método integral é um efeito de segunda ordem, sendo também uma média de todas as perturbações que ocorrem durante a vida do nível intermediário.

O método que nos permite uma medida direta da frequência de Larmor e que também permite separarmos os diferentes tipos de interação é o da correlação angular diferencial perturbada. Nestas medidas a correlação angular aparece modulada por uma função dependente do tempo. Quando a única perturbação for um campo magnético constante, perpendicular ao plano dos detetores, a modulação será sinusoidal e a sua amplitude proporcional à anisotropia da correlação angular. À cada porção da curva compreendida entre dois máximos sucessivos chamaremos de um ciclo. Este método pode ser usado sempre que $\tau_R < \tau$, quando pudermos medir ao menos um ciclo da oscilação (limite inferior de frequência) e quando o tempo de resolução for menor que um período da oscilação (limite superior de frequência). Neste caso, se \vec{H} for perpendicular ao plano dos detetores, temos

$$W(\theta, \pm H, t) = \sum_{k(\text{par})} b_{kk} \cos k(\theta \mp \omega_L t) e^{-t/\tau}$$

quando $k_{\text{máx}} = 2$ e sem outra perturbação além do campo magnético estático, a função correlação angular tem a seguinte expressão:

$$W(\theta, \pm H, t) = [1 + b_{22} \cos (2\theta \mp 2\omega_L t)] e^{-t/\tau}$$

Na figura I-5 podemos ver a forma da curva $\text{Log } W(\theta, \pm H, t)$ contra tempo.

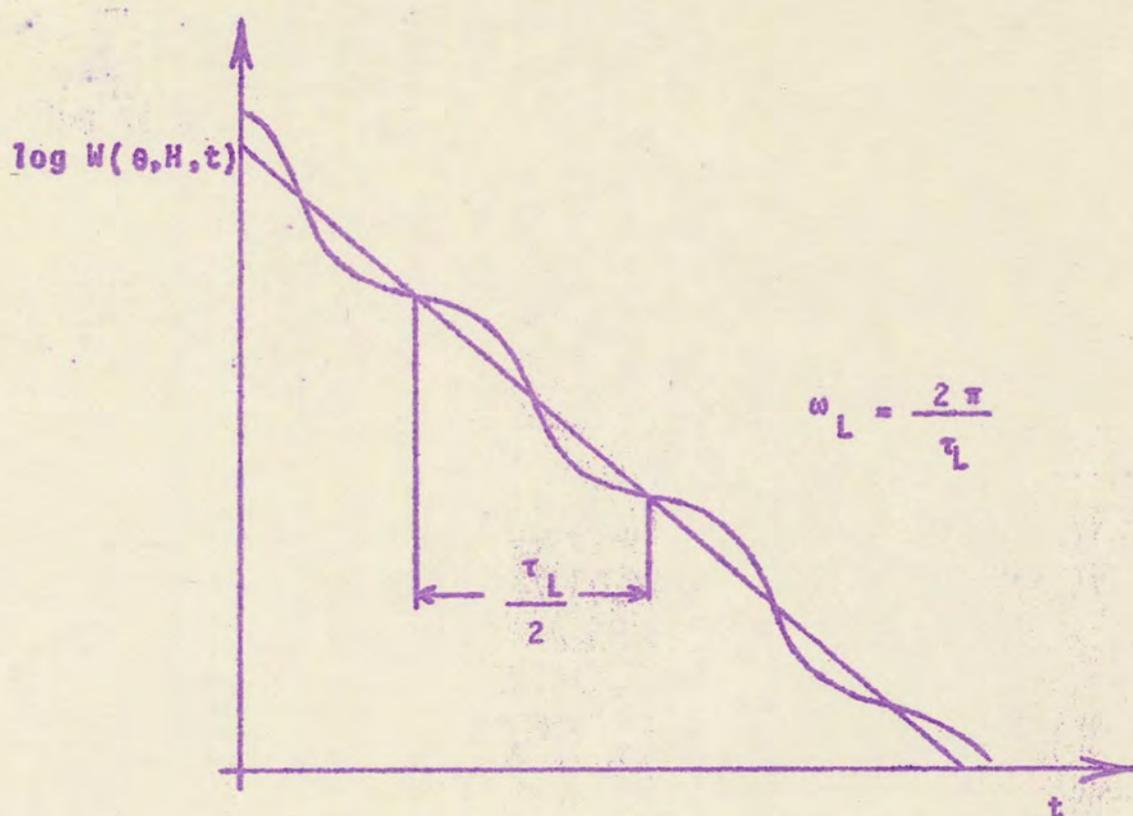


Figura I-5 O gráfico nos mostra a forma da curva $\log W(\theta, H, t)$ contra tempo.

As vantagens do método diferencial sobre o integral são inúmeras. Pode-se observar em certos casos muitos ciclos da correlação angular perturbada, o que aumenta muito a precisão na determinação da frequência. A medida não é afetada por efeitos independentes do tempo, como espalhamentos preferenciais, uma vez que não é necessário medir-se a correlação angular. Através de uma análise de Fourier dos dados pode-se separar as diversas interações superpostas, nos casos em que haja mais de um campo hiperfino local. Podemos também, quando existirem interações dependentes do tempo, separá-las das interações estáticas e calcular os tempos de relaxação. Outro fato importante é que a medida de ω_L independe do erro na determinação da vida média do nível intermediário.

Uma aplicação muito importante do método de correlações angulares é a medida de campos hiperfinos locais. Quando temos um radioisótopo com parâmetros nucleares bem conhecidos e com uma cascata favorável, podemos difundí-lo numa matriz e usá-lo como "ponteira de prova" para a medida de campos hiperfinos nos sítios onde estiverem os núcleos da impureza.

I - 4 Comparação da correlação angular com outras técnicas

As experiências de correlações angulares perturbadas, CAP, onde são medidas frequências magnéticas e elétricas, estão relacionadas com experiências de ressonância nuclear magnética (NMR) e de ressonância nuclear de quadrupolo elétrico (NQR). Existem duas diferenças principais entre as técnicas. Em primeiro lugar o limite da precisão na determinação da frequência, na CAP é da ordem de 1^o/o enquanto que por ressonância podemos ter até 10⁻⁵ 0/o. Em segundo lugar, os tempos de vida dos níveis nucleares podem ser relativamente curtos para CAP, de 10⁻⁵ a 10⁻¹² segundos, enquanto que a técnica de ressonância é utilizada principalmente para níveis nucleares estáveis ou de vida longa. Sob este ponto de vista as duas técnicas são complementares, pois a CAP não pode ser utilizada em níveis de vida muito longa. Um problema que existe com a técnica de NMR é o da atenuação do sinal de radiofrequência se a amostra for metálica (efeito pelicular) o que torna o método aplicável somente a pequenas partículas. Tal não acontece com a CAP que pode ser aplicada em cristais grandes. Outra vantagem do método de CAP frente à ressonância é o fato de não se aplicar campo de radiofrequência sobre a amostra.

Outro método de medida de interações hiperfinas é o da absorção ressonante de radiação gama ou efeito Mössbauer.

Nas medidas Mössbauer necessita-se de um número bastante grande de núcleos para que a seção de choque de absorção seja razoável. Isto não se dá no caso da CAP que é muito sensível, podendo-se realizar experiências com amostras da ordem de 10^8 átomos. Este fato é muito importante no estudo de interações hiperfinas em ligas onde muitas vezes se necessita pequenas concentrações de impureza, a fim de garantir que os vizinhos mais próximos da impureza sejam somente átomos da matriz. A seção de choque para o efeito Mössbauer decresce rapidamente com a energia do gama, sendo aplicável para energias menores do que 150 kev, enquanto que as experiências de CAP são feitas com energias de 10 kev a alguns Mev. Quando, numa experiência Mössbauer, a interação provoca uma separação de linhas igual à largura intrínseca do nível (limite de medida da interação), o correspondente ângulo de rotação da função correlação angular é de aproximadamente 100° . Como através de CAP integrais podemos medir rotações de até 1° , este último método é duas ordens de grandeza mais sensível do que o efeito Mössbauer. Os dois métodos competem em igualdade de condições se o tempo de vida do nível for maior do que 10 nanosegundos. Em altas temperaturas o efeito de absorção ressonante diminui, enquanto que para a técnica de CAP não existe nenhum problema.

II - INTERAÇÕES HIPERFINAS MAGNÉTICAS

Introdução

O momento magnético nuclear interage com os campos magnéticos produzidos pelas correntes orbitais e de spin dos elétrons atômicos. Estas interações (chamadas hiperfinas magnéticas), no átomo ou íon livre, são classificadas de acordo com o tipo de elétron atômico envolvido; assim sendo temos:

- a. Interação de contato de Fermi (elétrons s)
- b. Interação dipolar de spin (elétrons não s)
- c. Interação com o momentum angular orbital (elétrons não s)

Existe agora uma considerável quantidade de dados experimentais sobre campos hiperfinos magnéticos em núcleos de elementos s-p e de transição dissolvidos em matrizes ferromagnéticas (ferro, cobalto e níquel) que apresentam ferromagnetismo à temperatura ambiente. A análise teórica destes resultados tem sido muito limitada, devido às consideráveis dificuldades de interpretação e de cálculo. Como as tentativas de fazer teoria a partir de princípios primeiros não têm tido o desejável sucesso, pode-se dizer inclusive que nesta área, até o presente, as experiências têm guiado as interpretações teóricas. Um exemplo deste fato é o caso da polarização dos elétrons s das camadas fechadas. A importância deste mecanismo nos elementos de transição, só foi descoberta quando o campo hiperfino no núcleo do ferro em matriz de ferro foi medido como sendo negativo ⁷. Nenhum outro mecanismo conhecido poderia produzir uma contribuição negativa tão grande.

Além dos elétrons s do "caroço", os elétrons de condução que têm caráter s também contribuem para o campo hiperfi-

no. Uma das possíveis maneiras de se estudar esta última contribuição é determinar o campo efetivo no núcleo de impurezas não magnéticas (não de transição) dissolvidas em matriz magnética. Nesses casos, a melhor tentativa de interpretação teórica foi a inicialmente proposta por Daniel e Friedel⁸ que foi depois melhorada por outros autores^{9,10 e 11}. Como veremos numa das seções seguintes, este modelo é baseado no espalhamento dos elétrons de condução pelos átomos da impureza.

Existem também tentativas semi-empíricas para descrever os resultados das medidas dos campos hiperfinos como função do número atômico da impureza. Algumas o fazem bastante bem para grande número de casos, como por exemplo a referência 12. No entanto, apesar de que várias novas medidas tenham concordado com estas previsões empíricas, outros resultados divergem bastante e até agora não puderam ser explicados.

Presentemente o que se está tentando fazer é um estudo sistemático dos campos hiperfinos nas impurezas, variando-se as condições físicas do sistema, isto é, mudando a concentração da impureza e a temperatura da amostra, por exemplo. As curvas de campo local contra temperatura são comparadas com a curva de magnetização da matriz contra temperatura e das discrepâncias pode-se estudar a interação local na impureza. Outro estudo que parece ser interessante é o dos campos hiperfinos como função da pressão sobre a amostra, uma vez que a variação dos parâmetros da rede cristalina afetam em maior escala os elétrons mais externos dos átomos. Pode acontecer também que o núcleo da impureza sofra relaxação a qual pode ser causada por flutuações no campo magnético local. O mecanismo responsável por estas flutuações não é bem conhecido, mas alguns estudos sugerem que a interação de troca entre elétrons d ferromagnéticos e ele

trons s de condução dá uma importante contribuição ¹³.

Procuraremos a seguir tratar resumidamente os principais mecanismos que dão origem aos campos magnéticos hiperfinos e algumas tentativas de interpretação teórica.

II - 1 O campo magnético efetivo no núcleo da impureza e o Hamiltoniano da interação.

O campo magnético efetivo no sítio do núcleo de uma impureza dissolvida em matriz ferromagnética é devido a quatro contribuições:

a) O campo magnético existente na região onde está situado o átomo da impureza, que consiste do campo magnético externo aplicado, do campo de Lorentz e do campo de demagnetização. Estes campos geralmente são pequenos, da ordem de alguns milhares de gauss e são mais ou menos constantes em toda a amostra.

b) A contribuição da parte orbital do momentum angular eletrônico. Nos elementos de transição, quando o momentum angular orbital não está completamente atenuado (quenched), é da ordem de 10^4 gauss. Nas terras raras, uma vez que o momentum angular orbital não é atenuado, é da ordem de 10^6 a 10^7 gauss, sendo esta contribuição dominante.

c) A contribuição dipolar de spin dos íons circunvizinhos, que é da ordem de 10^4 gauss. Se o cristal tiver simetria cúbica esta contribuição se anula.

d) A contribuição de contato de Fermi que vem da densidade de spin existente no núcleo, sendo não nula somente para eletrons s. Este termo é da ordem de 10^5 gauss e pode ser dividido em três partes:

1. Contribuição de elétrons s de camadas fechadas
2. Contribuição de elétrons s ligados covalentemente
3. Contribuição de elétrons de condução com caráter s

Com isso, o Hamiltoniano para a interação hiperfina magnética é expresso por:

$$\mathcal{H} = -g_I \mu_N \hat{I} \cdot (\hat{H}_{\text{local}} + \hat{H}_{\text{eletrônico}})$$

onde
$$\hat{H}_{\text{local}} = \hat{H}_{\text{externo}} + \frac{4\pi}{3} \hat{M}' - D 4\pi \hat{M}$$

$$\hat{H}_{\text{eletrônico}} = -2 \mu_B \left[\frac{\hat{L}}{r^3} + \left(\frac{\hat{S}}{r^3} - \frac{3\hat{r}(\hat{r} \cdot \hat{S})}{r^5} \right) + \frac{8\pi}{3} \hat{S} \delta(\hat{r}) \right]$$

onde g_I é o fator g nuclear, μ_B e μ_N são os magnetons de Bohr e nuclear, \hat{M} é a magnetização macroscópica, \hat{M}' é a magnetização do domínio e D o fator de demagnetização da amostra. Se a amostra estiver saturada temos

$$\hat{H}_{\text{local}} = \hat{H}_{\text{externo}} + \frac{4\pi}{3} \hat{M}_s + D 4\pi \hat{M}_s$$

II - 2 O campo hiperfino sobre os núcleos de Fe em matriz de Fe.

Os elétrons s das camadas fechadas, em primeira ordem não produzem campo hiperfino, uma vez que estão todos pareados. Em segunda ordem, existe uma interação de troca entre os elétrons s e os elétrons 3d, que não estão pareados. Este mecanismo é estudado com detalhes nas referências 14 e 15. É usada a seguinte convenção de sinal na descrição deste mecanismo: o cam

po hiperfino magnético é dito ser positivo quando for paralelo à magnetização \vec{M} . Com isso, se o campo for positivo o spin resultante será anti-paralelo a \vec{M} . Pelo princípio de Pauli, existe em média um afastamento maior entre eletrons de spins paralelos que entre eletrons de spins anti-paralelos. Isto vale se não existir a interação coulombiana entre os eletrons. No momento em que esta for "ligada", a interação será maior entre os eletrons de spins antiparalelos. Assim, devido à polarização dos eletrons s das camadas fechadas internas, temos uma densidade negativa de spin no núcleo, que produz um campo hiperfino negativo. Para os eletrons das camadas externas vale o contrário. Um esquema do mecanismo acima descrito ¹⁶ pode ser visto na figura II-1. O sinal do campo hiperfino total depende de qual das contribuições é maior, a dos eletrons internos ou a dos eletrons externos. Na tabela II-1 podemos ver o resultado do cálculo de Watson e Freeman ¹⁴ e ¹⁵ para os campos hiperfinos produzidos pelas diversas camadas s dos íons Mn^{2+} e Fe^{2+} . Neste cálculo foi usado o método de Hartree-Fock não restrito, onde a restrição levantada foi a de que a função radial deveria ser igual para as duas direções de spin, possibilitando assim uma polarização de spin no núcleo. Nos resultados da tabela II-1 vemos que os eletrons 2s são mais polarizados que os eletrons 1s. Isto se dá porque os primeiros têm uma maior superposição com os eletrons 3d. Por outro lado, embora os eletrons 3s se superponham ainda mais com os 3d, a sua contribuição positiva não é tão grande porque eles estão parcialmente mais para dentro e parcialmente mais para fora que os da camada 3d. No final, o efeito dos eletrons internos predomina e temos um campo magnético hiperfino negativo.

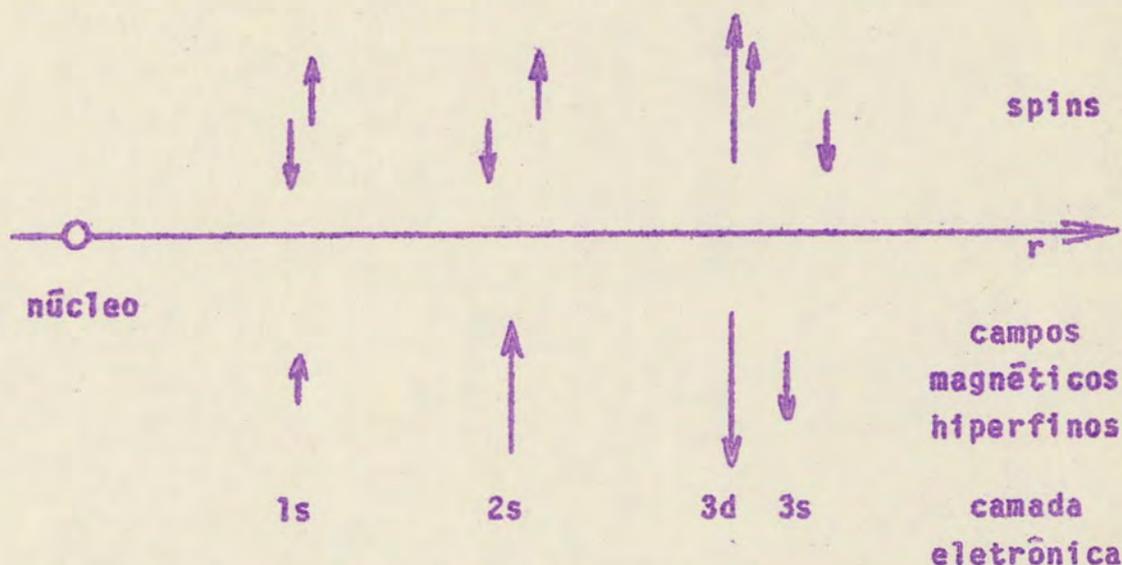


Figura II - 1 Esquema da polarização dos elétrons s do Fe através da interação de troca com os elétrons 3d.

	Mn ²⁺ (3d ⁵)	Fe ²⁺ (3d ⁶)
1s ↑	2502840	-30
1s ↓	-2502870	-30
2s ↑	226670	-1310
2s ↓	-228080	-1410
3s ↑	31210	+790
3s ↓	-30470	+740
Total	-700	-550

Tabela II - 1 Resultado dos cálculos de Watson e Freeman para os campos magnéticos hiperfinos produzidos pelos diversos elétrons s dos íons Mn²⁺ e Fe²⁺. A seta para cima indica os elétrons com spin paralelo ao spin total da camada 3d e a seta para baixo os de spins antiparalelos. Os campos da tabela estão todos em kilogauss.

II - 3 Descrição teórica da variação dos campos hiperfinos magnéticos como função do número atômico da impureza.

O estudo sistemático dos campos magnéticos produzidos no sítio dos núcleos de impurezas dissolvidas em matriz ferromagnética mostra que estes campos são bastante sensíveis ao número atômico do átomo da impureza. Este fato pode ser visto na figura II-2. O modelo que mais se aproxima da realidade e que tem um bom embasamento físico parece ser o de Daniel e Friedel⁷. Devido à interação de troca entre os elétrons d não pareados da matriz e os elétrons s da banda de condução, estes estão ligeiramente polarizados. A figura II-3 nos mostra como a interação de troca baixa de e o fundo da semi-banda dos elétrons de spin para cima e sobe de e o fundo da semi-banda dos elétrons de spin para baixo. Como o nível de Fermi é o mesmo para as duas semi-bandas, teremos um excesso de elétrons com spin para cima em relação aos de spin para baixo, o que significa uma polarização dos elétrons da banda de condução. Se a valência do átomo da impureza for maior que a do átomo da matriz, no local da impureza teremos um poço de potencial atrativo para os elétrons de condução. O efeito deste potencial será diferente nos elétrons de spin para cima e nos elétrons de spin para baixo, pois não existe interação de troca s - d no sítio da impureza não magnética. No modelo que estamos tratando considera-se que no átomo da impureza atuam, nos elétrons de condução de spin \uparrow e spin \downarrow , potenciais quadrados $V\uparrow$ e $V\downarrow$ respectivamente. Para impurezas s - p os potenciais são determinados autoconsistentemente por duas condições: a) as energias no fundo dos poços de potencial são iguais, pois não existe momento magnético d no sítio da impureza; b) a mudança total no número de elétrons abai-

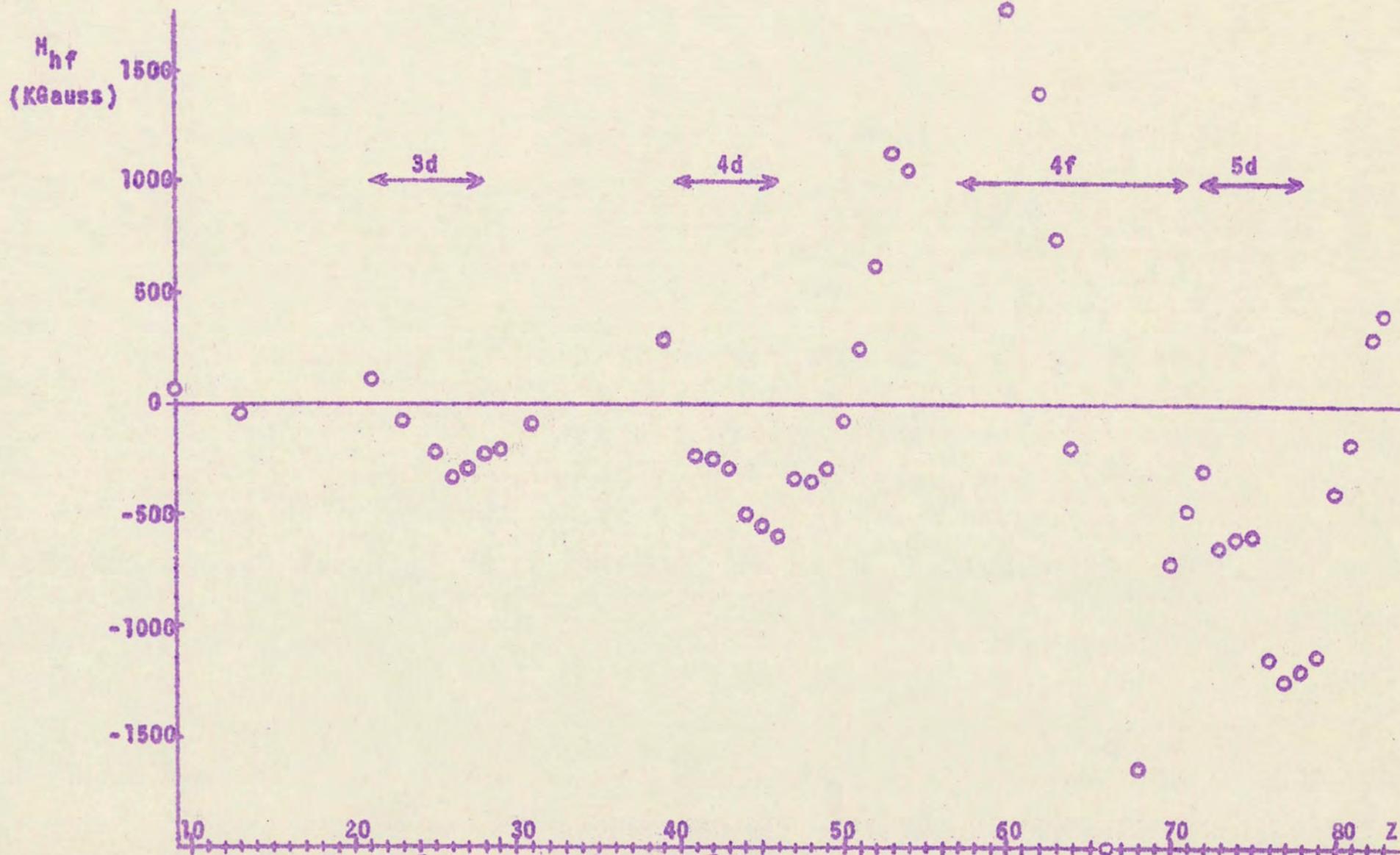


Figura II - 2 Gráfico dos campos magnéticos hiperfinos em impurezas dissolvidas em matriz de ferro contra o número atômico da impureza.

xo do nível de Fermi compensa a diferença Z_1 de carga nuclear entre a impureza e a matriz. Na figura II-4 vemos os potenciais sentidos pelos elétrons de condução de spin \uparrow e de spin \downarrow , no sítio da impureza s-p.

Levando em conta as expressões para o espalhamento de elétrons livres por um poço de potencial quadrado, foram calculados os deslocamentos de fase das ondas s para as duas sub-bandas (spin \uparrow e spin \downarrow). O resultado é uma polarização negativa de spin e (por interação de contato de Fermi) um campo magnético hiperfino negativo no núcleo de uma impureza com $Z_1 = 0$. Além disso os resultados descrevem corretamente a mudança de sinal do campo hiperfino para $Z_1 \approx 3$. Nos seus cálculos, Daniel e Friedel consideraram que havia um elétron s por átomo na banda de condução da matriz e com isso as polarizações dos elétrons de condução na impureza e na matriz têm sinal contrário. Sabemos agora, das comparações de "Knight shifts" e susceptibilidades de Pauli em metais nobres ¹⁷, que somente uma terça parte dos elétrons no nível de Fermi destes metais têm caráter s. Levando isso em consideração, Campbell ¹¹ calculou novamente as polarizações usando o modelo de Daniel e Friedel e encontrou resultados que se ajustam melhor com os dados experimentais e que predizem que as polarizações na matriz e na impureza são paralelas. O cálculo de Campbell é essencialmente igual ao de Daniel e Friedel, somente que leva em consideração uma hibridização s-d pois este mecanismo reduz o caráter s dos elétrons de condução e leva os mesmos a uma polarização negativa.

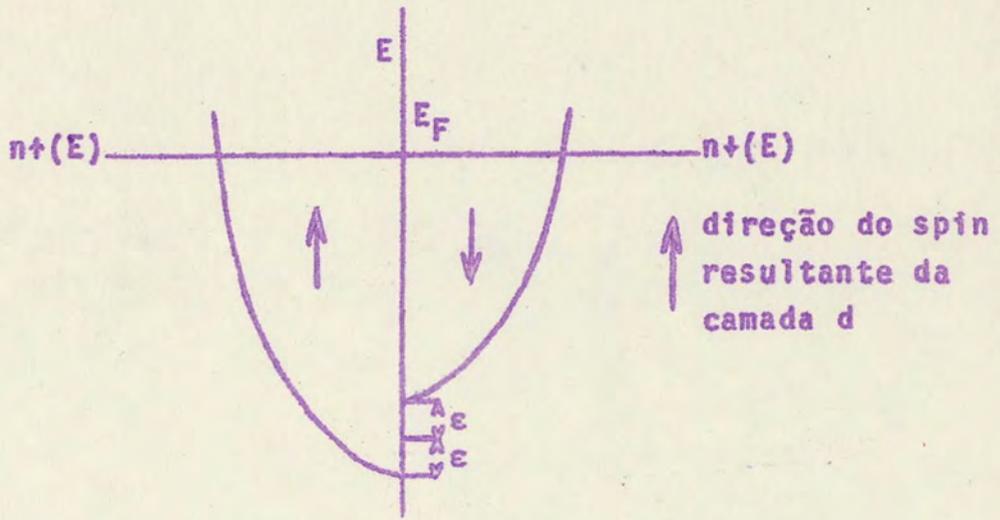


Figura II - 3 Polarização de spins dos eletrons de condução de um metal ferromagnético.

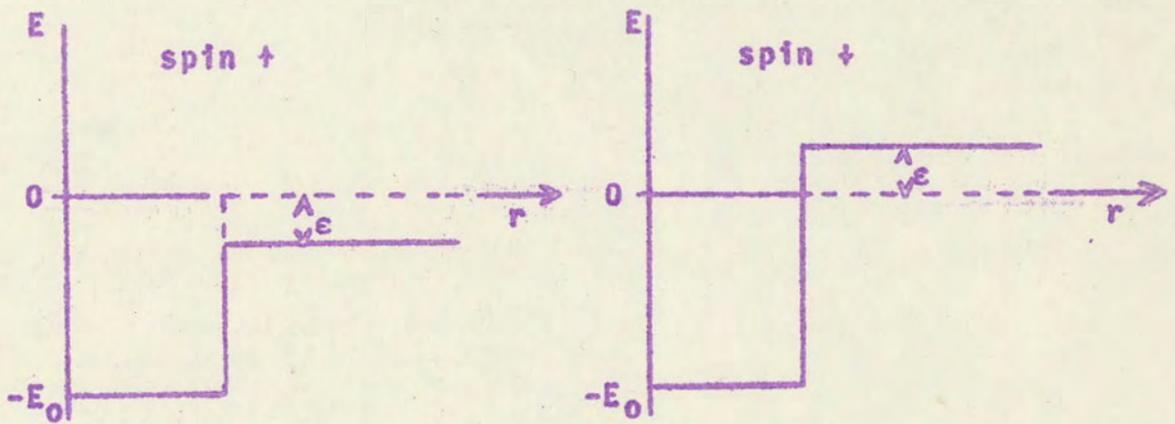


Figura II - 4 Potenciais que atuam sôbre os eletrons de spin ↑ e de spin ↓ no sítio de uma impureza s-p.

II - 4 Leis empíricas seguidas pelos campos magnéticos hiper-finos no núcleo de impurezas em matrizes ferromagnéticas.

Na análise dos dados experimentais nota-se algumas regularidades seguidas pelos campos locais em impurezas diluídas em metais ferromagnéticos ¹², as quais podem ser expressas pelas seguintes leis empíricas:

1. O campo magnético hiperfino no núcleo de uma determinada impureza é proporcional ao momento magnético dos átomos da matriz.

O grau de precisão com que esta lei é seguida é bastante bom, sendo o quociente do campo hiperfino H pelo momento magnético μ dos átomos da matriz ($\mu=2,2$; 1,7 e 0,6 para Fe, Co e Ni respectivamente) constante dentro de 10 a 20 %/o. Este fato nos diz que, pelo menos em primeira aproximação, o campo depende do valor de μ , sendo sensível em menor grau a detalhes da estrutura eletrônica da matriz e das interações entre o átomo da impureza e os da matriz. Devido à proporcionalidade entre H e μ , podemos estudar simultaneamente as regularidades dos campos hiperfinos em matrizes diferentes, usando o campo magnético reduzido H/μ .

2. O campo magnético hiperfino depende do número de elétrons nas camadas externas do átomo da impureza.

Esta regularidade é expressa por:

$$H/\mu = a + b(v - 9)^2$$

onde v é o número de elétrons nas camadas externas do átomo de impureza (ou seja, o número total de elétrons d na camada $n-1$ e de elétrons s e p na camada n , onde $n=4,5$ e 6 respectivamente

para os elementos dos períodos IV, V e VI da tabela periódica). As constantes a e b são obtidas pelo ajuste da curva empírica aos dados experimentais. Na figura II-5 vemos um gráfico dos campos reduzidos sobre elementos do período VI contra o número de eletrons externos e a curva cheia correspondendo à equação citada acima. A simetria em torno de $\nu=9$ nos mostra que um certo número de eletrons externos produz o mesmo campo hiperfino que igual número de lacunas.

3. O campo magnético hiperfino depende do número do período da tabela periódica a que o átomo da impureza pertence.

Para um dado número de eletrons externos ν , o valor do campo hiperfino cresce com o aumento do número do período da impureza. Isto parece ser normal no caso de supormos que a contribuição principal para o campo hiperfino no núcleo da impureza vem da polarização dos eletrons das camadas internas preenchidas. Na aproximação de Thomas-Fermi o campo magnético no núcleo devido às camadas internas preenchidas com Z_0 eletrons é proporcional a $Z_0^{1,3}$. Temos então que a relação empírica que descreve a variação dos campos hiperfinos com o momento magnético dos átomos da matriz, com o período da tabela periódica a que pertence a impureza e com o número de eletrons externos é dada por:

$$\frac{H}{\mu Z_0^{1,3}} = - 2,48 + 0,113 (\nu - 9)^2$$

O ajuste desta curva aos dados experimentais pode ser visto na figura II - 6.

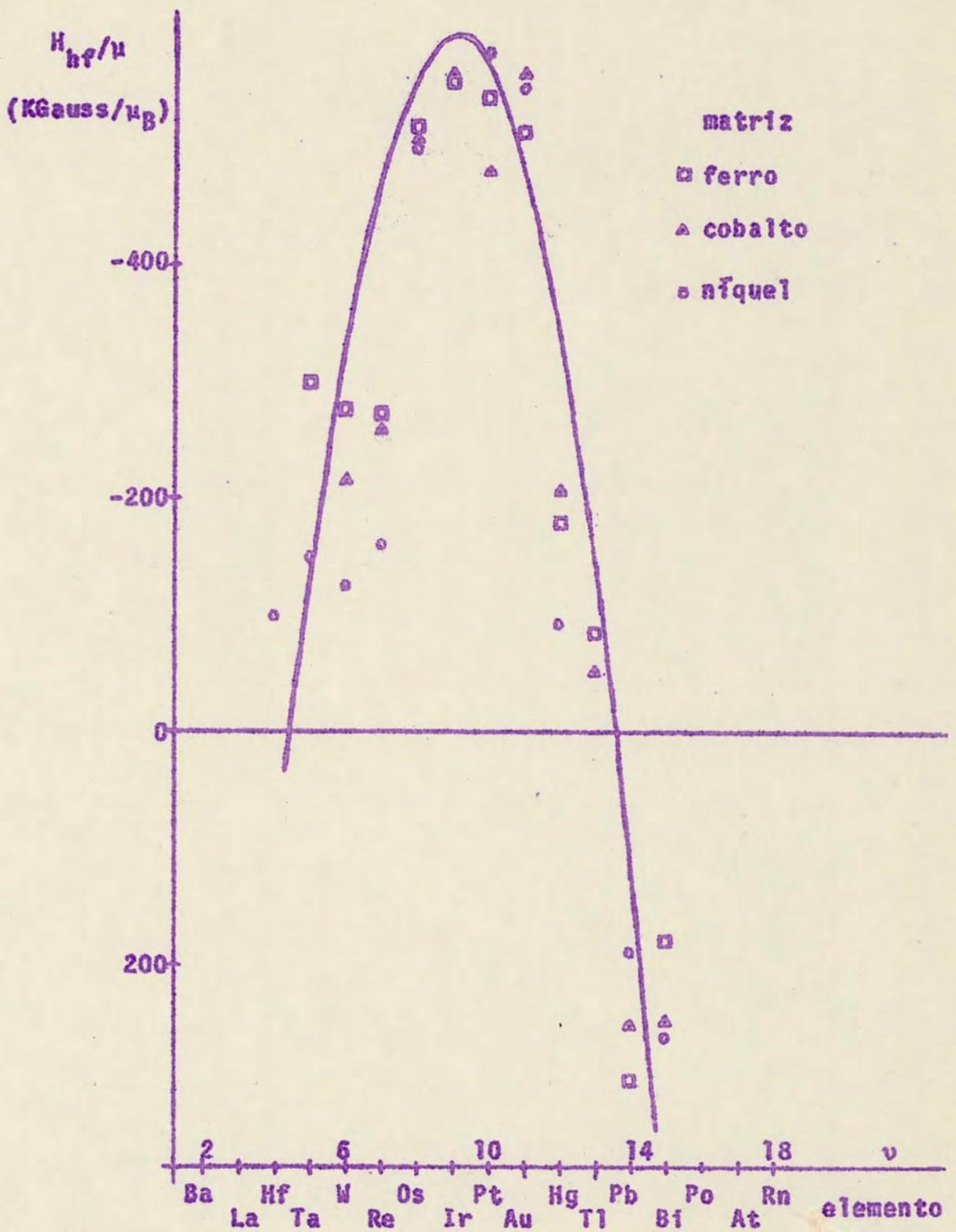


Figura II - 5 Gráfico dos campos reduzidos para elementos do período VI, em matrizes de Fe, Co e Ni, contra o número de eletrons externos v .

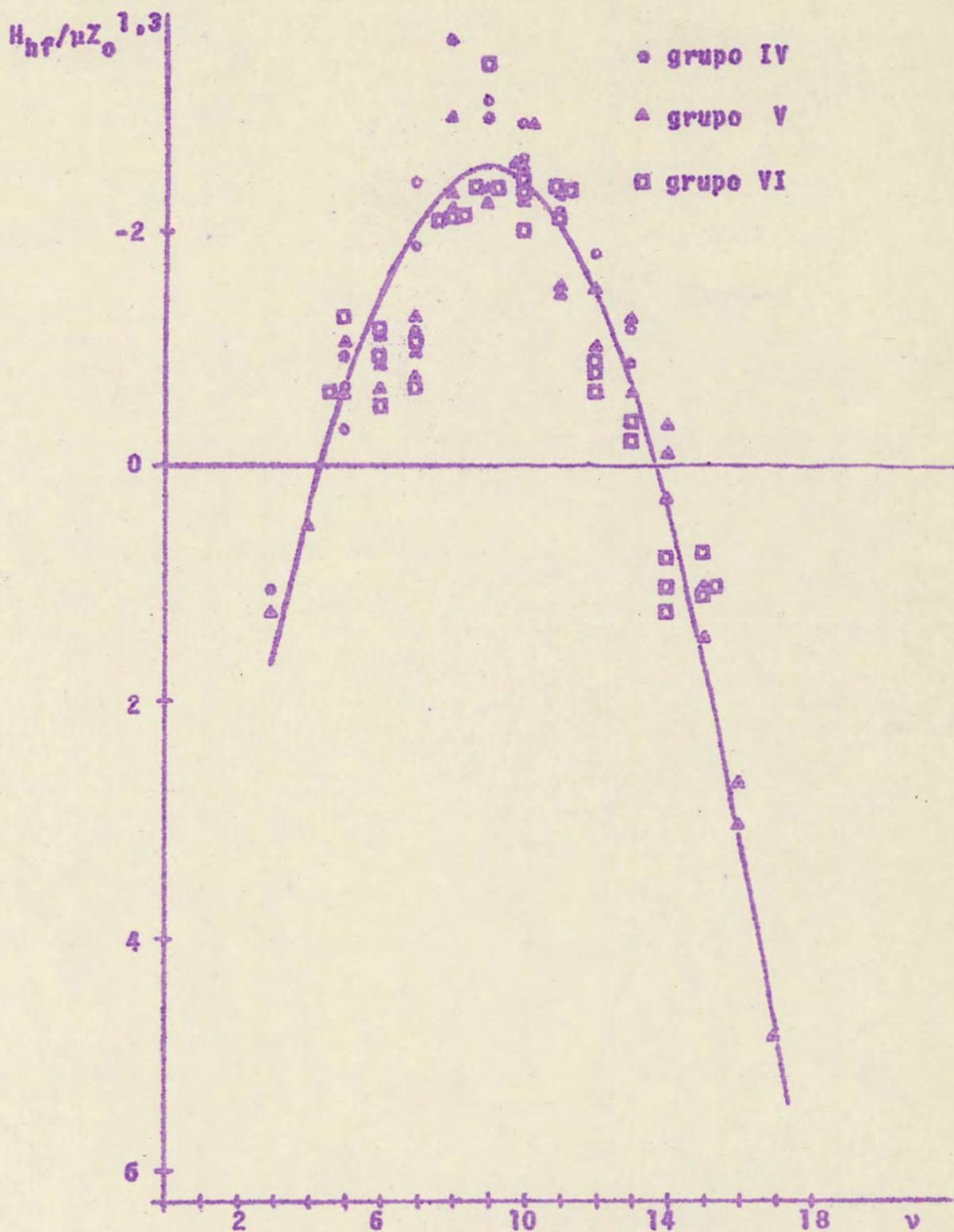


Figura II - 6 Gráfico dos campos reduzidos divididos por $Z_0^{1,3}$ contra o número de eletrons externos v . Z_0 é o numero de eletrons nas camadas fechadas.

II - 5 Comentários

Estas considerações mostram quão complexo é o problema do estudo dos mecanismos que produzem os grandes campos magnéticos hiperfinos. Isto é verdade principalmente no caso de impurezas difundidas em matrizes ferromagnéticas, uma vez que não conhecemos bem a própria origem do ferromagnetismo. A introdução de átomos estranhos deve complicar mais ainda o estudo, contudo espera-se que medidas sistemáticas deverão auxiliar um melhor entendimento desta área, como já foi dito no início.

III MEDIDA DO CAMPO HIPERFINO NOS NÚCLEOS DE ^{181}Ta EM MATRIZ DE NÍQUEL

Introdução

No estudo de campos hiperfinos locais em impurezas dissolvidas em matrizes ferromagnéticas, um problema fundamental é o da localização do soluto. Recentes estudos indicam que, para amostras feitas por implantação, a impureza se situa em geral substitucionalmente na matriz, pelo menos à temperatura ambiente. Em amostras feitas por fusão ou difusão a altas temperaturas existe possibilidade de que a impureza fique intersticialmente na rede cristalina.

Segundo revelaram estudos anteriores, o sistema ^{181}Ta Ni é muito interessante. Medidas do campo hiperfino em amostras policristalinas feitas por fusão¹⁸ e por implantação¹⁹ apuraram o mesmo valor para o campo local, mas a amplitude da curva de $R(t) = A \sin \omega t$ difere por um fator aproximadamente vinte. Uma das hipóteses para esta diferença é a existência, no caso da amostra que apresentou amplitude menor, feita por fusão, de um outro campo hiperfino maior, devido a outra posição do Ta na rede cristalina. Devido à resolução em tempo do equipamento utilizado não foi possível medir este campo e isto poderia ter mascarado a anisotropia. Decidimos então medir o campo hiperfino no ^{181}Ta em níquel, numa amostra feita por fusão, com resolução em tempo melhor do que a da medida anterior, o que tornaria possível medir campos hiperfinos maiores.

III - 1 Atividade

Na experiência foi utilizado ^{181}Hf obtido de ^{180}Hf , por reação n,γ , no reator do I.E.A. em São Paulo. Este núcleo decai, segundo o esquema abaixo, para ^{181}Ta . Na figura III-1 ressaltamos a cascata $1/2 + (133\text{keV})5/2 + (482\text{keV})7/2 +$, que foi utilizada nas presentes medidas e os parâmetros que nos interessam.

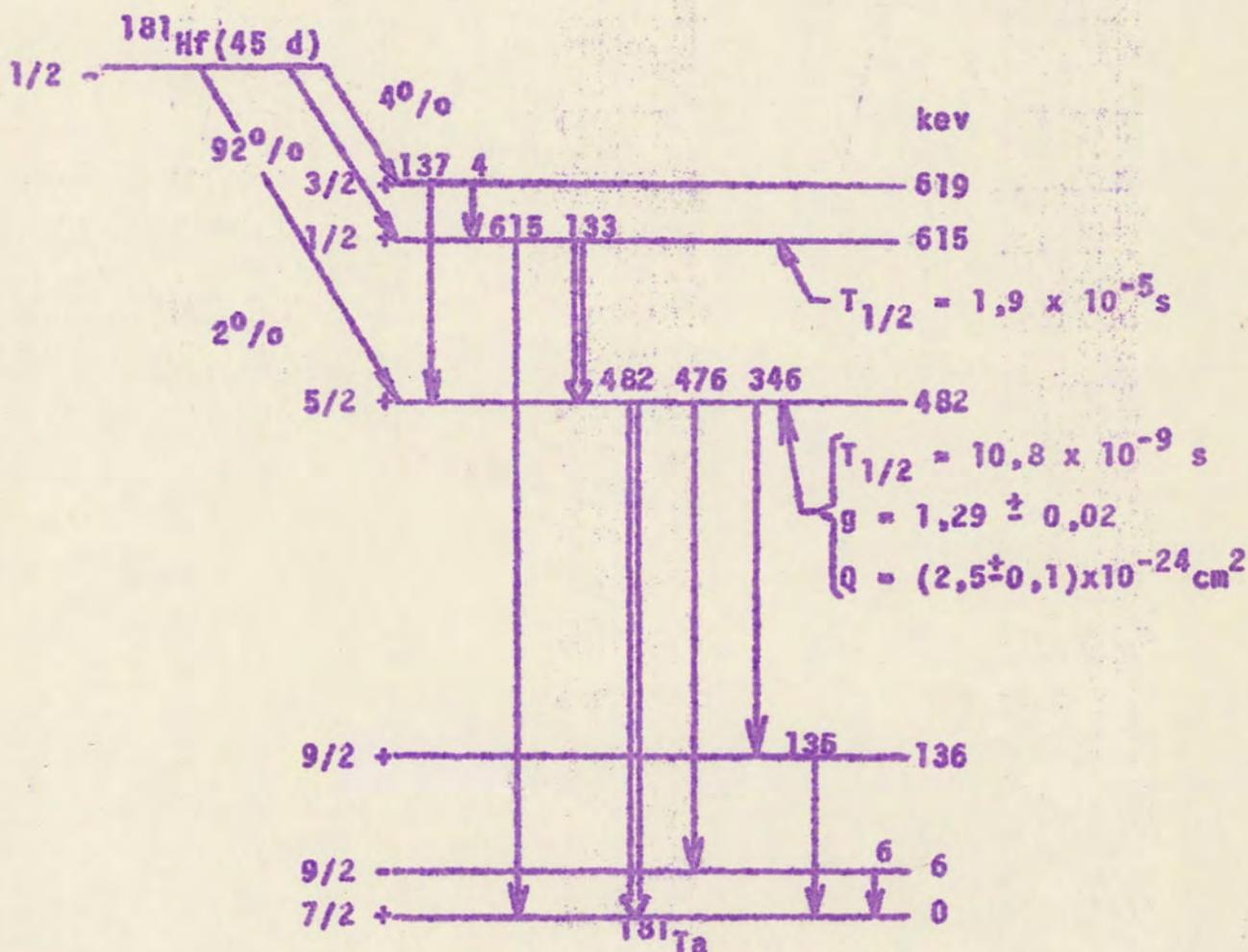


Figura III-1 Esquema de níveis de energia do ^{181}Ta onde ressaltamos a cascata utilizada.

III - 2 Preparação da amostra ferromagnética

Existem diversas maneiras de se obter ligas diluídas para a medida de campos hiperfinos, dentre as quais citamos:

- a. o método de difusão
- b. o método de fusão
- c. o método de implantação

A escolha do método mais adequado é feita depois de se estudar o diagrama de fases da liga em questão, onde se pode ver a solubilidade da impureza na matriz, como função da temperatura. Se a solubilidade for grande e a impureza difundir-se rapidamente na matriz, pode-se simplesmente depositar uma certa quantidade da impureza na superfície da matriz (eletroliticamente por exemplo) e através de aquecimento fazê-la difundir-se na mesma. Depois, através de ataques sucessivos com ácido, pode-se retirar a camada de impureza restante na superfície e verificar se a difusão foi uniforme. Se o coeficiente de difusão não for grande, mas a solubilidade for razoável, pode-se misturar a impureza com o material da matriz e fundi-los, distribuindo assim a impureza por toda a matriz. Quando a solubilidade for pequena torna-se necessário resfriar rapidamente a amostra para que a impureza fique "congelada", não sendo segregada e não formando aglomerados dentro da matriz. Quando a impureza não for solúvel na matriz só resta uma maneira: implantá-la usando um acelerador de íons ou aproveitando o recuo do átomo da impureza depois de uma reação nuclear ou emissão de uma partícula pesada.

Na medida em questão, o método empregado para a confecção da amostra foi o seguinte:

Inicialmente foram feitos um pote e um pino cônico para o fechamento do mesmo, ambos de níquel puro (99,999⁰/o), que

podem ser vistos na figura III-2. A impureza (Hf metálico ativado) foi colocada no pote, numa proporção de um átomo de Hf para cada cem de Ni e a seguir o mesmo foi fechado em vácuo. A amostra foi fundida num bote prateado²⁰, resfriado a água e em atmosfera inerte (argônio), colocado no centro das espiras de um gerador de radio-frequência. Depois da fusão foi feito um resfriamento rápido para evitar segregação ou formação de aglomerados de impureza. A seguir a amostra foi atacada sucessivamente com ácido e foram controladas a diminuição de atividade e de massa. Como o decréscimo de massa era proporcional ao decréscimo de atividade, concluiu-se que a impureza estava uniformemente distribuída na matriz de Ni. Para que a amostra ficasse com uma forma axialmente simétrica, foi prensada a 1200 atmosferas em uma bucha de aço tungstênio, como mostrado na figura III-3. Depois deste tratamento a forma da amostra era cilíndrica com 5mm de diâmetro e 6 mm de altura.

III - 3 Equipamento

Para a polarização dos átomos de Ni (magnetização até a saturação) foi utilizado um mini-eletroímã coaxial. Este, além de possuir simetria cilíndrica, eliminando assim o problema de espalhamentos preferenciais, tem baixíssimo campo disperso, permitindo o uso de fotomultiplicadoras de alto ganho sem guias de luz e sem efeito de campo mensurável. O eletro-ímã foi alimentado por uma bateria de 12 volts e refrigerado por um ventilador comum. Detalhes do eletro-ímã podem ser vistos na referência 21. A curva de magnetização da amostra como função da corrente aplicada no mini-eletroímã pode ser vista na figura III - 4, onde também está assinalado o ponto de trabalho.

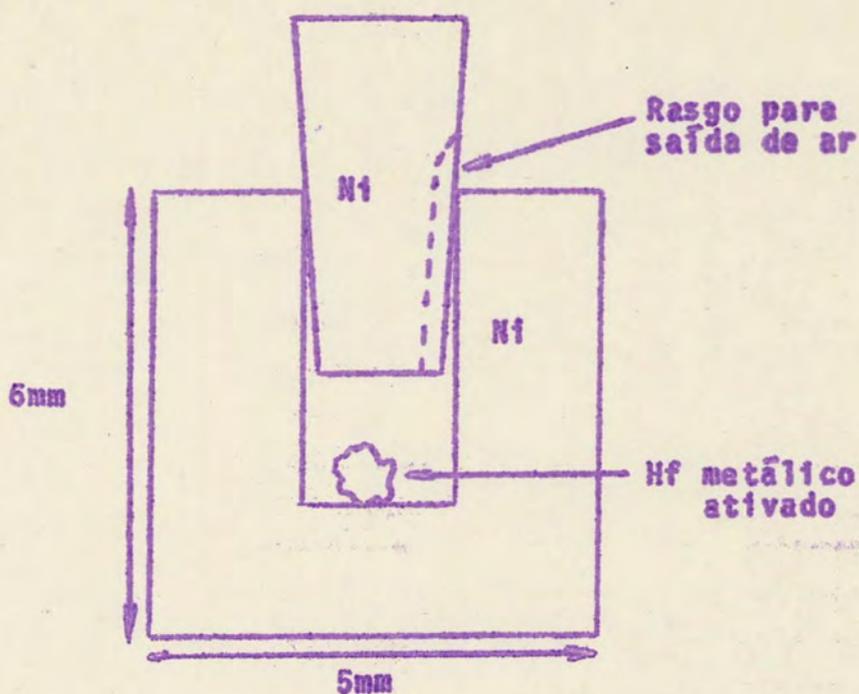


Figura III-2 - Corte do pote e pino cônico de níquel utilizados para encapsular a impureza em vácuo, garantindo assim que o soluto esteja no centro da massa de níquel na fusão.

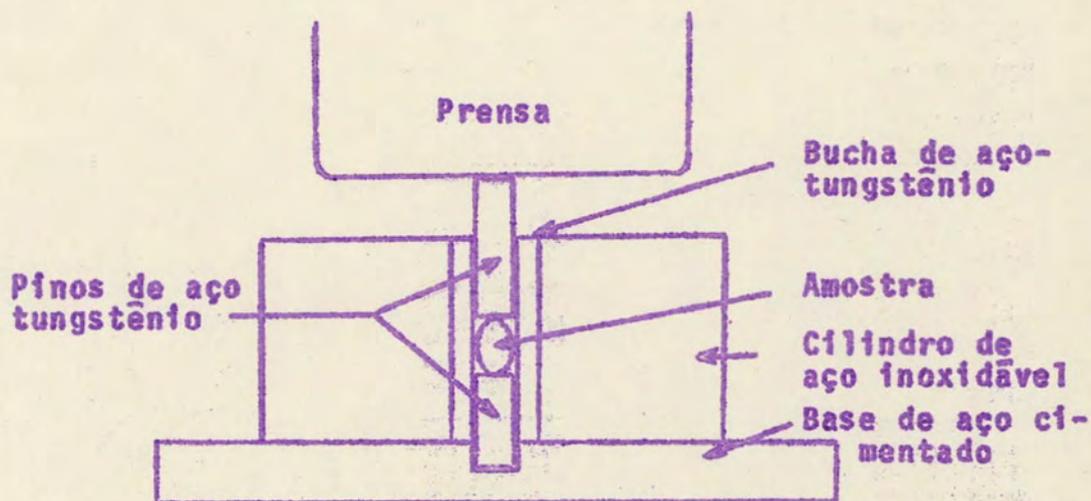


Figura III-3 - Corte do dispositivo utilizado para dar forma cilíndrica à amostra.

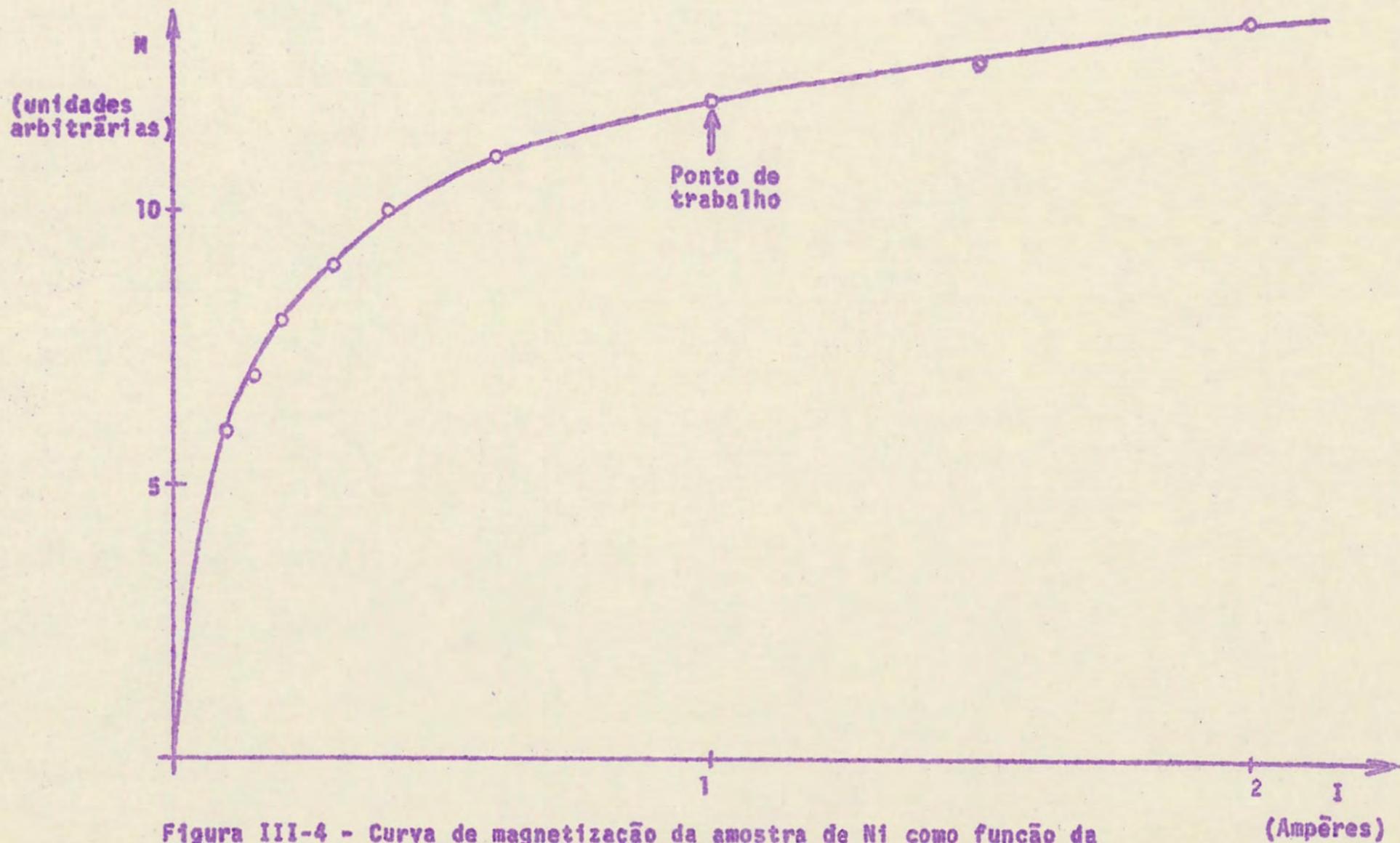


Figura III-4 - Curva de magnetização da amostra de Ni como função da corrente aplicada no Mini-Eletroímã.

A radiação gama de maior energia foi detetada em um cintilador de NaI(Tl) de 2" X 1"1/2 acoplado a um tubo Amperex XP-1021. A radiação de baixa energia foi detetada num cintilador de NaI(Tl) de 1" X 1"1/2 acoplado a um tubo RCA-8850. O equipamento foi montado de acordo com o esquema da figura III-5. A aparelhagem apresentou grande estabilidade, o que foi comprovado pelos frequentes cortes de força, tendo o equipamento sempre retornado às condições de medida rapidamente após ser novamente ligado.

A resolução em tempo do sistema de coincidências (largura a meia altura) para energias de 511 kev dos gamas de aniquilação do ^{22}Na era de 1,3 nanosegundos quando se usou cintiladores de NaI(Tl) e da ordem de 0,5 nanosegundos quando usamos cintiladores plásticos dopados com 5 % de chumbo. Nas energias da cascata $1/2 + (133 \text{ kev})5/2 + (482 \text{ kev})7/2 +$ do ^{181}Ta , a resolução era de 2,3 nanosegundos, com cintiladores de NaI(Tl), podendo passar a 2 nanosegundos com o uso de discriminadores diferenciais e a 1 nanosegundo com o uso de cintilador plástico para a detecção dos gamas de 133 kev. As figuras III - 6 e III - 7 mostram resultados de medidas de meias vidas de níveis nucleares com o equipamento descrito acima e utilizando-se cintiladores plásticos dopados com chumbo tendo 4 cm de comprimento e 5,5 cm de diâmetro. Note-se que no caso do ^{75}As conseguiu-se medir a meia vida do nível a 280 kev ($T_{1/2} = 0,265$ nanosegundos) através da inclinação da curva de coincidências contra tempo. Um problema que surge com a utilização de cintiladores plásticos é que os tempos de medida devem ser mais longos devido à baixa eficiência na detecção de radiação gama.

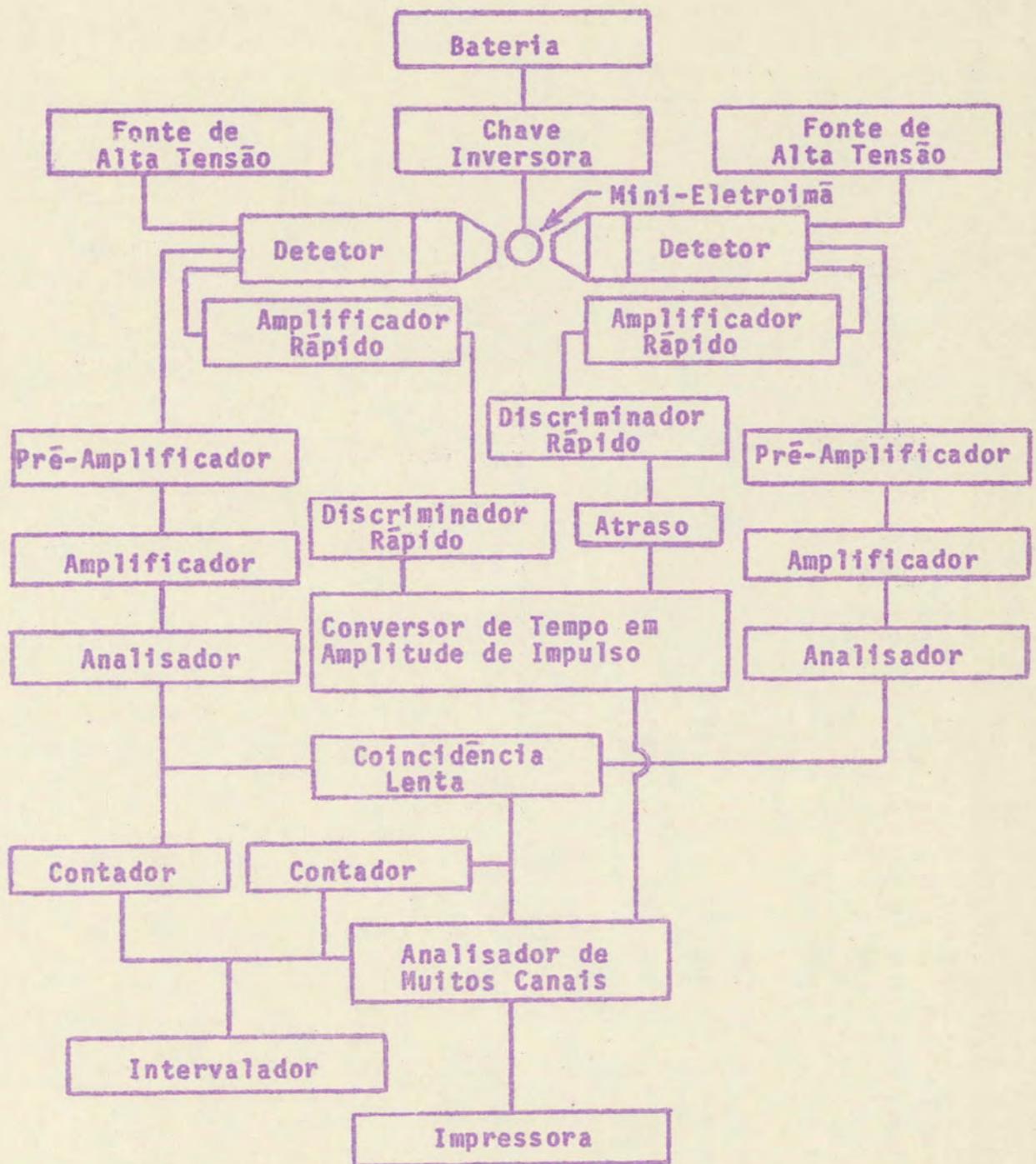
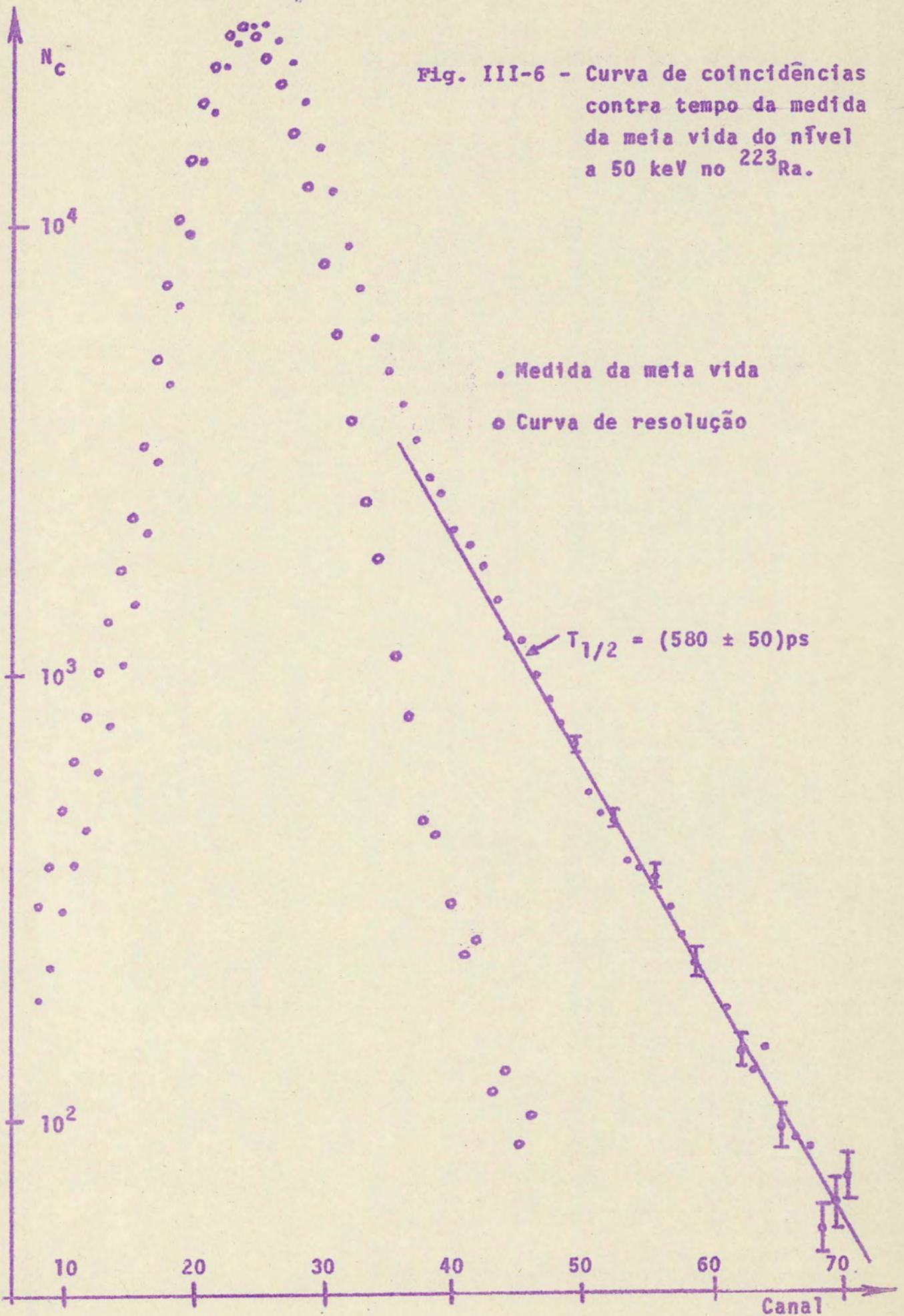


Figura III-5 - Diagrama em bloco do equipamento utilizado para a medida de correlações angulares diferenciais.

Fig. III-6 - Curva de coincidências
contra tempo da medida
da meia vida do nível
a 50 keV no ^{223}Ra .



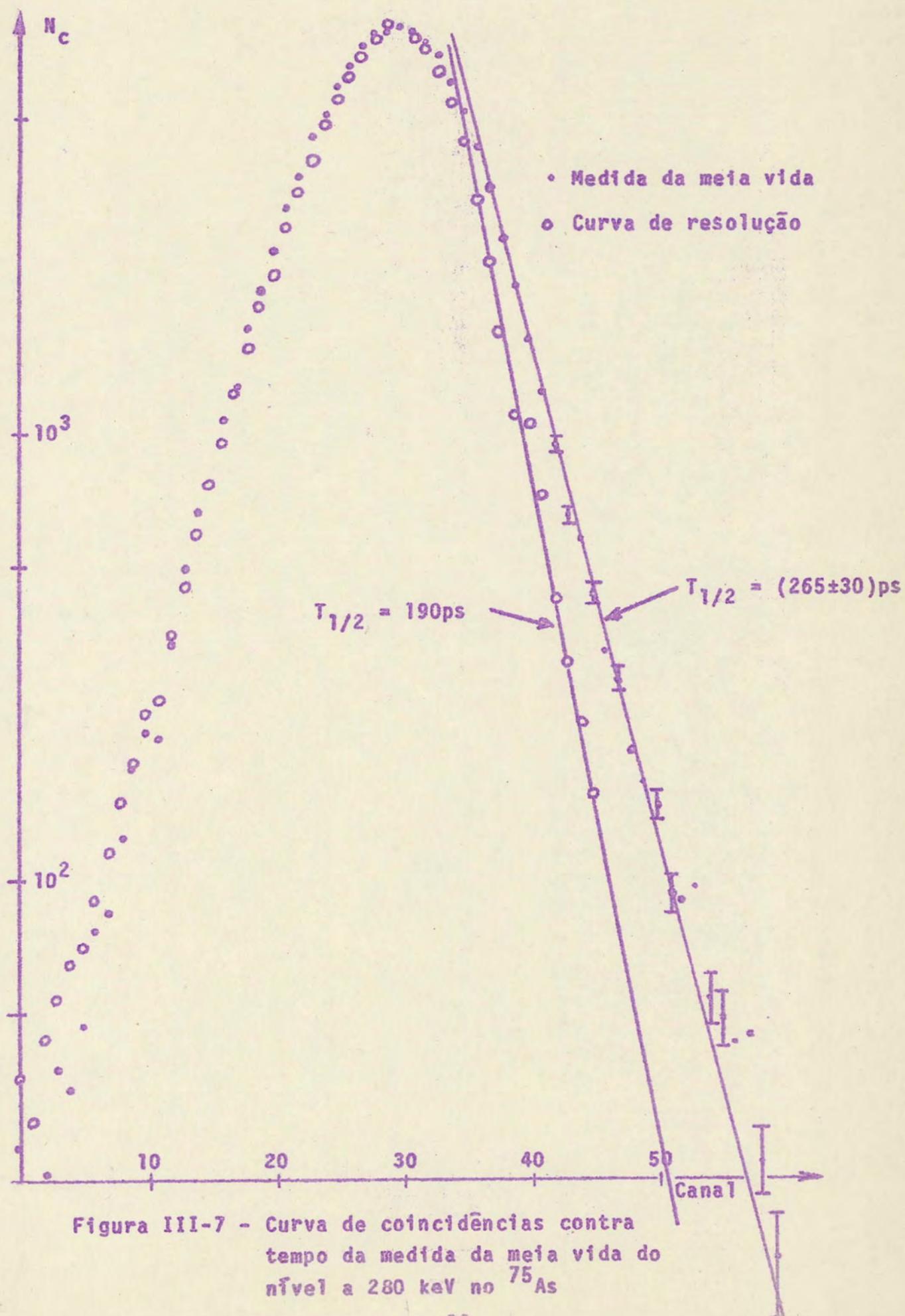


Figura III-7 - Curva de coincidências contra tempo da medida da meia vida do nível a 280 keV no ^{75}As

III - 4 Apresentação e tratamento dos dados experimentais

O estudo da interação hiperfina magnética no sistema $^{181}\text{Ta-Ni}$ foi realizado através da técnica de Correlação Angular Diferencial gama-gama. Foram feitos dois tipos de medidas. No primeiro manteve-se os detetores fixos e mediram-se coincidências como função do tempo com o campo magnético polarizador "para cima" e "para baixo". No outro, manteve-se o campo polarizador constante e mediram-se coincidências como função do tempo com os detetores a 90° e 180° .

Com os dados experimentais do primeiro tipo de medida usualmente se calcula a razão $R(t)$ definida como:

$$R(t) = \frac{W(\theta, +H, t) - W(\theta, -H, t)}{1/2 [W(\theta, +H, t) + W(\theta, -H, t)]}$$

Se a função correlação angular perturbada for expressa na forma

$$W(\theta, \pm H, t) = \sum_{k(\text{par})} b_{kk} \cos k(\theta \mp \omega_L t)$$

e considerando $k_{\text{máx}} = 4$, temos que

$$R(t) = - \frac{2 b_{22} \text{sen}(2\omega_L t)}{1 + b_{44} \text{cos}(4\omega_L t)}$$

que se reduz a $R(t) = - 2 b_{22} \text{sen}(2\omega_L t)$

quando $b_{44} \ll b_{22} < 1$.

Como vemos, da curva de $R(t)$ pode-se extrair diretamente a frequência de Larmor com que o núcleo precessiona sob efeito do campo magnético efetivo no seu sítio. Em geral, faz-se estas medidas para $\theta = 135^\circ$ ou 225° , pois nêstes ângulos, se

$k_{\text{m\grave{a}x}} = 2$, $dW(\theta)/d\theta$ \u00e9 m\u00e1xima. N\u00e9ste caso pode-se f\u00e1cilmente verificar para que lado deslocou-se a fun\u00e7\u00e3o correla\u00e7\u00e3o angular, atrav\u00eas da varia\u00e7\u00e3o de $R(t)$ nas proximidades de $t=0$, e determinar o sinal do campo magn\u00e9tico hiperfino.

\u00c0 partir dos resultados das medidas com campo magn\u00e9tico fixo e em \u00e2ngulos de 90° e 180° , pode-se calcular a raz\u00e3o $\epsilon(t)$, definida como:

$$\epsilon(t) = \frac{W(180^\circ, H, t) - W(90^\circ, H, t)}{1/2 [W(180^\circ, H, t) + W(90^\circ, H, t)]}$$

Se a fun\u00e7\u00e3o correla\u00e7\u00e3o angular for expressa na forma:

$$W(\theta, \pm H, t) = \sum_{k(\text{par})} A_{kk} P_k(\cos(\theta \mp \omega_L t))$$

considerando ainda $k_{\text{m\grave{a}x}} = 2$ e $A_{00} = 1$, temos que

$$\epsilon(t) = \frac{3 A_{22} \cos(2\omega_L t)}{2 - A_{22}/2}$$

Em t\u00f3das as medidas os espectros de coincid\u00eancias como fun\u00e7\u00e3o do tempo foram acumulados em 256 canais (correspondendo a um intervalo de aproximadamente 80 nanosegundos) para cada \u00e2ngulo ou sentido do campo magn\u00e9tico polarizador. Na figura III - 8 vemos a curva de $W(225^\circ, \pm H, t)$ (pontos experimentais) contra tempo. Estes dados j\u00e1 est\u00e3o corrigidos para as coincid\u00eancias acidentais e foi tamb\u00e9m verificado que as pendentes coincidem com o valor $T_{1/2} = 10,8$ nanosegundos (meia vida do n\u00edvel intermedi\u00e1rio da cascata utilizada). \u00c0 partir dos dados acima citados foi calculada a raz\u00e3o $R(t)$, cujos pontos experimentais podem ser vistos na figura III - 9. Para o ajuste da melhor cur

va que passa pelos pontos experimentais de $R(t)$ é necessário conhecermos aproximadamente as frequências de Larmor envolvidas. Fizemos então uma análise de Fourier dos pontos experimentais de $R(t)$ e na figura III - 10 pode ser vista a curva de $|P(\nu)|^2$ contra a frequência ν . A função $P(\nu)$ é proporcional à amplitude com que cada frequência contribui para a formação da curva analisada através de uma série de Fourier. Com as frequências correspondentes aos dois picos proeminentes da curva de $|P(\nu)|^2$ foi ajustada aos pontos experimentais da figura III-9 a curva

$$R'(t) = \sum_i A_i \text{ sen } \omega_i (t-t_0) + C$$

onde A_i é a amplitude da i ésima senoide, $\omega_i = 2\omega_L^i$ a i ésima frequência angular medida, t o número do canal, t_0 o número do canal zero (correspondente a tempo igual a zero) e C uma constante de normalização. A curva $R'(t)$ (ajustada) pode ser vista na figura III - 9 (curva cheia). Na figura III - 11 vemos o seu espectro de Fourier.

A figura III - 12 mostra os pontos experimentais de $W(180^\circ, H, t)$ e $W(90^\circ, H, t)$ contra tempo. A partir destes dados foi calculada a razão $\epsilon(t)$, cujos pontos experimentais podem ser vistos na figura III - 13. A análise de Fourier destes pontos experimentais também mostrou dois picos proeminentes no gráfico de $|P(\nu)|^2$, como pode ser visto na figura III - 14. O ajuste da melhor curva passando pelos pontos experimentais foi feito com as frequências correspondentes a estes dois picos, utilizando a expressão

$$\epsilon'(t) = \sum_i A_i \text{ cos } \omega_i (t-t_0) + C$$

A figura III - 13 também nos mostra a curva ajustada $\epsilon'(t)$ (curva cheia) e o seu espectro de Fourier $\bar{\epsilon}$ mostrado na figura III - 15. Nos espectros de Fourier de $\epsilon(t)$ e $\epsilon'(t)$ a frequência baixa não aparece resolvida porque, sendo o termo constante C diferente de zero, aparece no espectro de Fourier um pico correspondente à frequência zero.

Depois das medidas relatadas acima, foi feito um recozimento na amostra, durante quatro horas, a 800°C e em atmosfera de hidrogênio. A seguir foram medidos novamente espectros de coincidências contra tempo com campo magnético polarizador "para cima" e "para baixo", que podem ser vistos na figura III - 16, sendo também calculada a razão $R(t)$. Na análise de Fourier desta curva apareceram também dois picos proeminentes e o ajuste da melhor curva passando pelos pontos experimentais foi também feito através da função

$$R'(t) = \sum_i A_i \text{sen } \omega_i(t-t_0) + C$$

Na figura III - 17 podemos ver os pontos experimentais de $R(t)$ e a curva $R'(t)$ ajustada (curva cheia). As figuras III - 18 e III - 19 mostram respectivamente os espectros de Fourier de $R(t)$ e de $R'(t)$.

Na tabela III - 1 vemos as amplitudes A_i e as frequências angulares ω_i encontradas para cada uma das medidas descritas acima. Conforme observa-se nesta tabela, os resultados das medidas de $R(t)$ e de $\epsilon(t)$ antes do recozimento são coerentes, pois as frequências magnéticas são praticamente iguais, o mesmo acontecendo com as razões das amplitudes extraídas das curvas ajustadas aos pontos experimentais. Observa-se também na tabela que o resultado após o recozimento, mostra a mesma

frequência alta, enquanto que a frequência mais baixa diminui. Estes resultados são discutidos na seção seguinte.

Os cálculos e ajustes foram todos feitos no computador Hewlett-Packard 2114-A do Instituto de Física. Nos programas para o ajuste das curvas foi usado o método de mínimos quadrados e levou-se em conta o erro experimental de cada ponto. Ao cabo de cada iteração o computador fornecia o desvio quadrático médio, de maneira que se podia ver a convergência do ajuste. Utilizando um osciloscópio acoplado ao computador, ao cabo de cada iteração podíamos ver na sua tela os pontos experimentais e a curva ajustada superposta, permitindo assim a visualização imediata dos resultados.

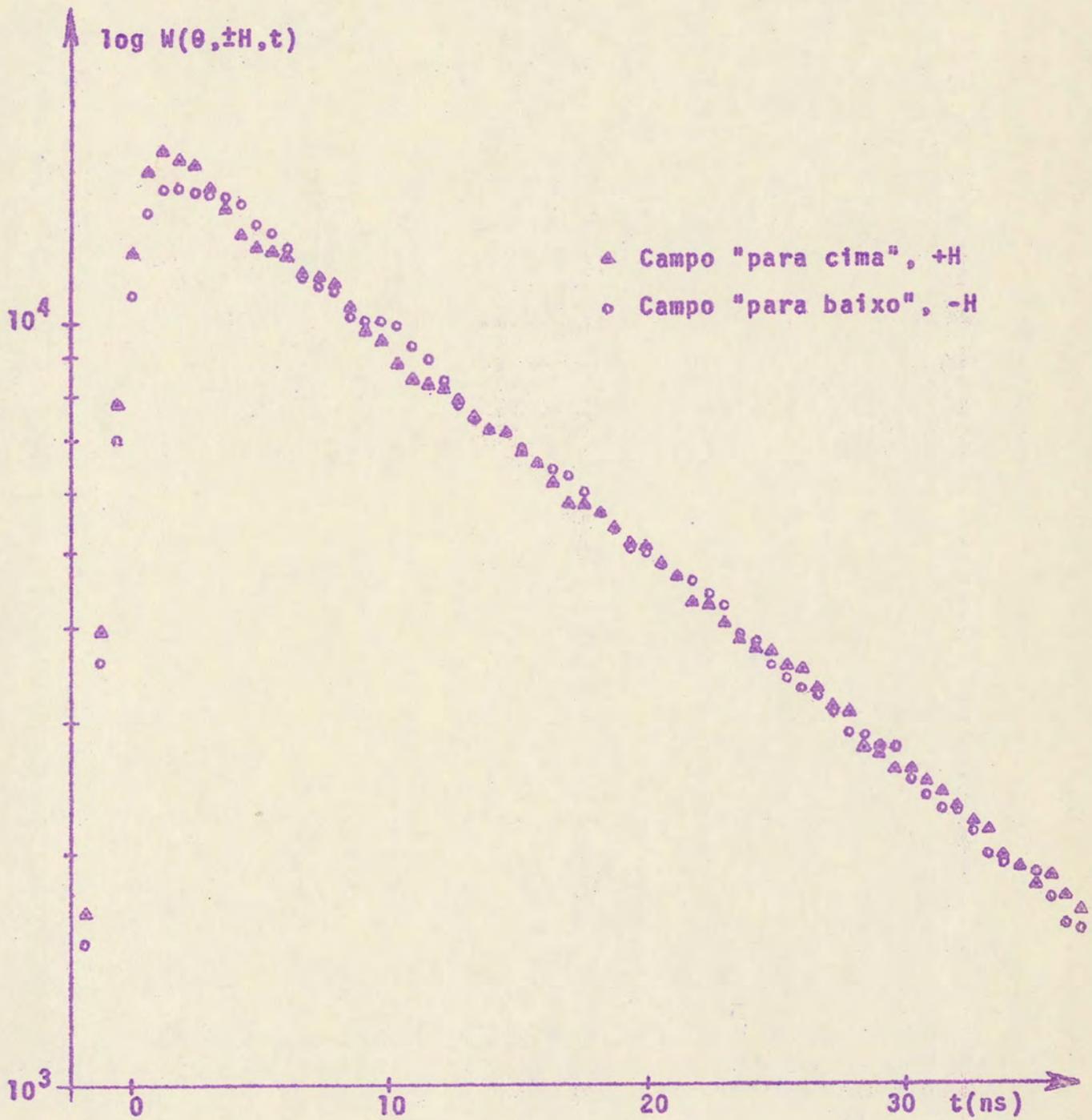


Figura III-8 - Espectros de coincidências contra tempo com campo magnético polarizador "para cima" e "para baixo", medidos antes do recozimento.

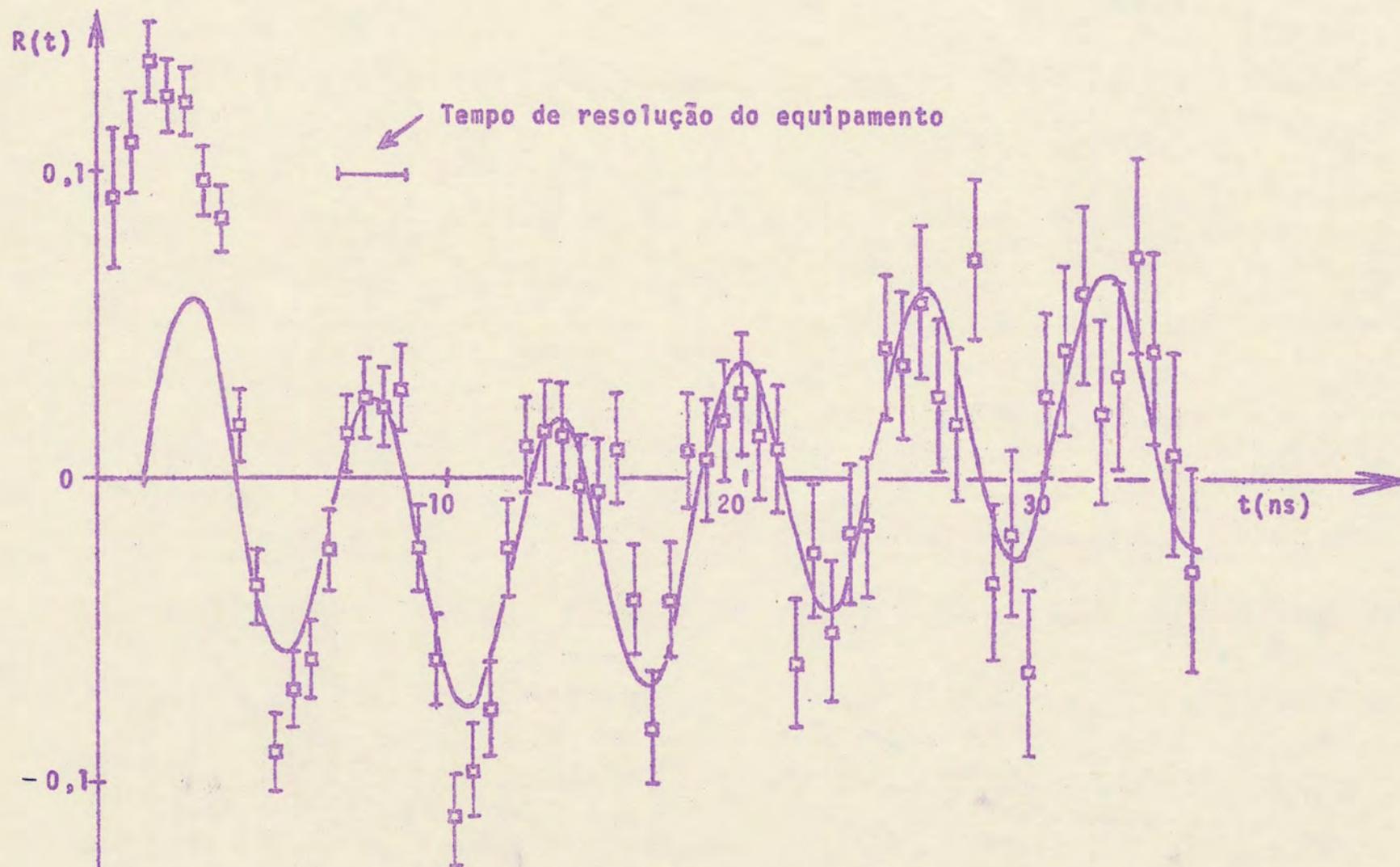


Figura III-9 - Os pontos experimentais correspondem aos valores de $R(t)$ calculados a partir dos pontos da figura III-8. A curva cheia foi ajustada aos pontos experimentais utilizando-se duas frequências.

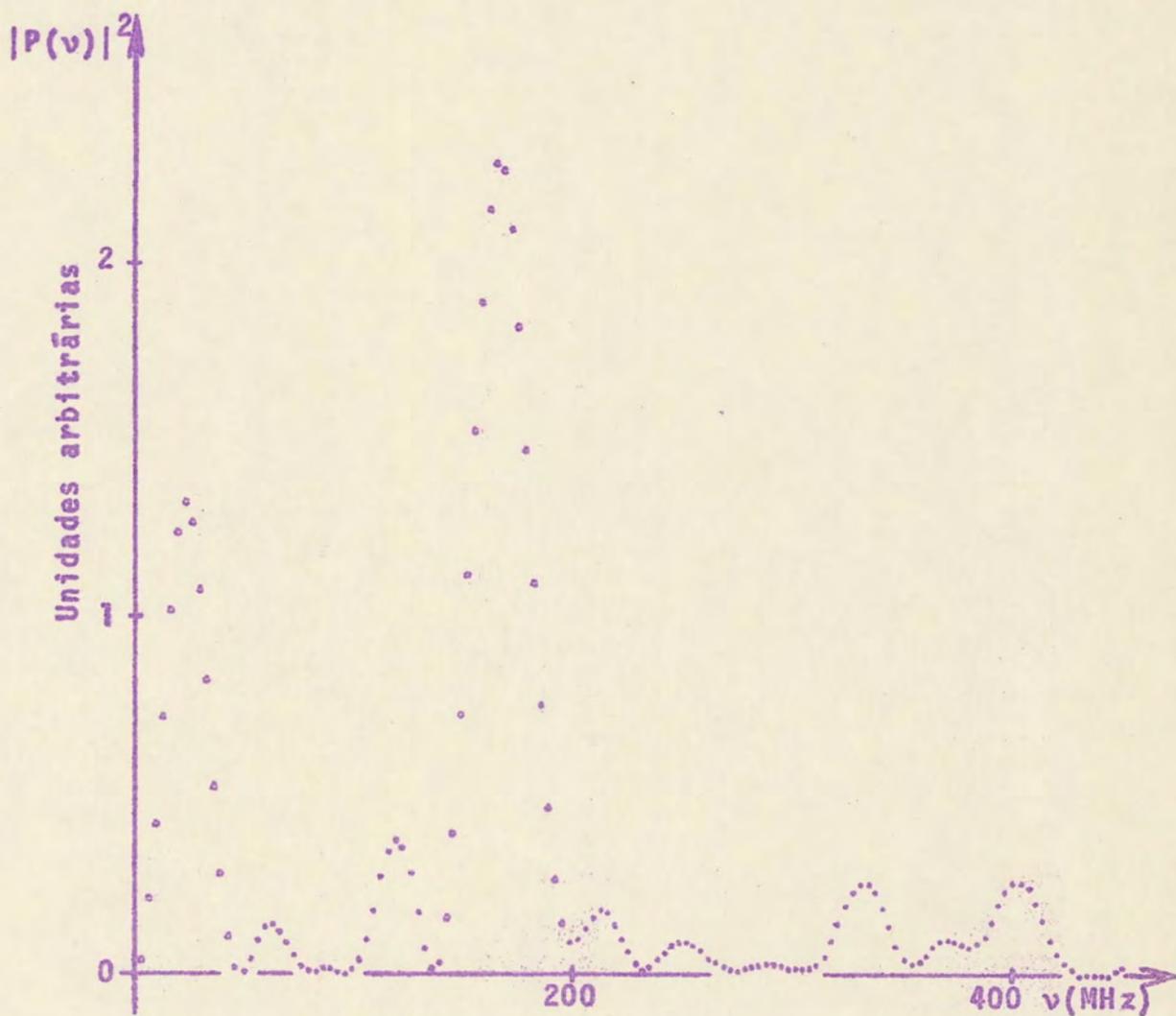


Figura III-10 - Espectro de Fourier dos pontos experimentais de $R(t)$ mostrados na figura III-9.

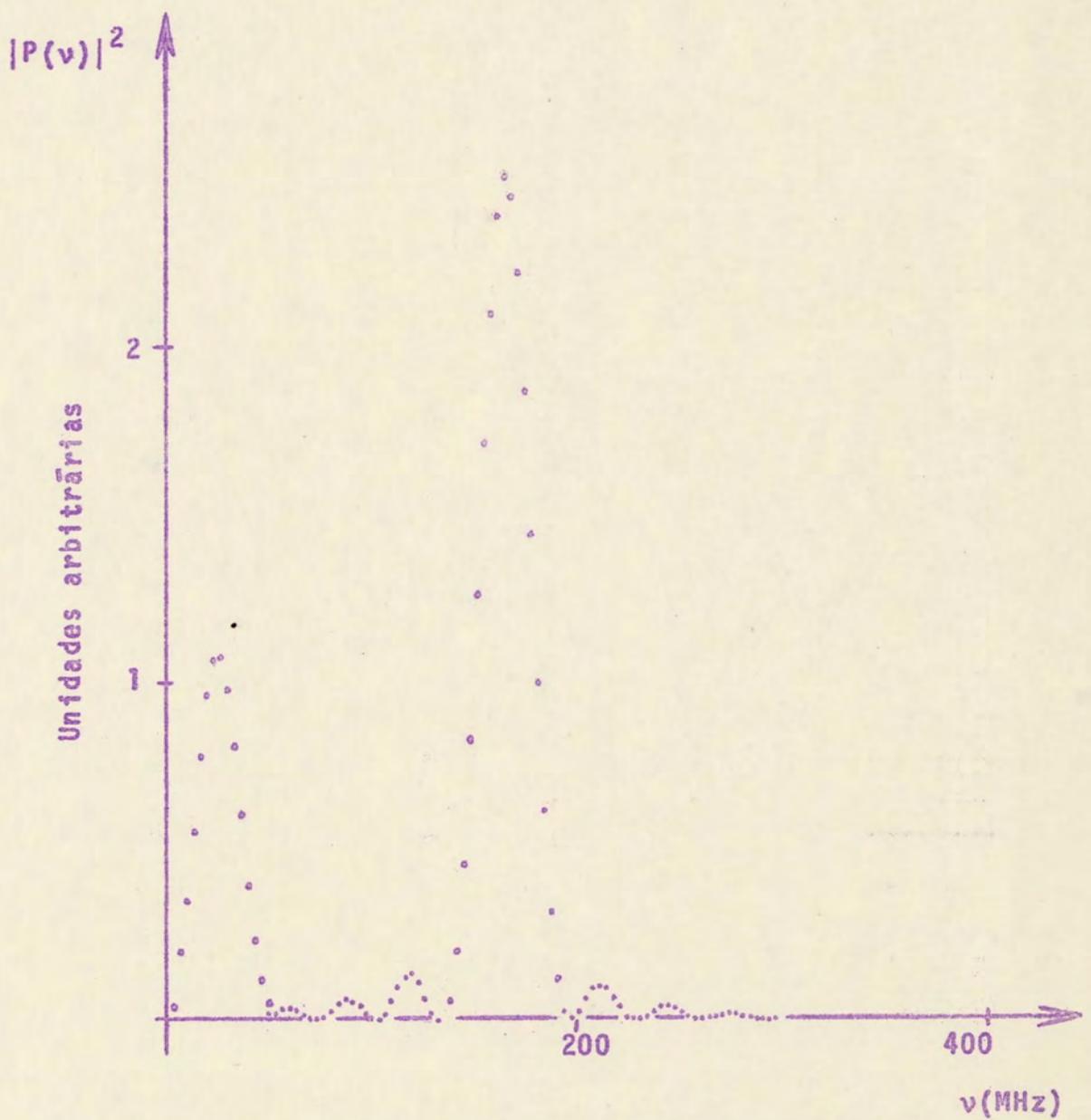


Figura III-11 - Espectro de Fourier da curva ajustada aos pontos experimentais (curva cheia na figura III-9).

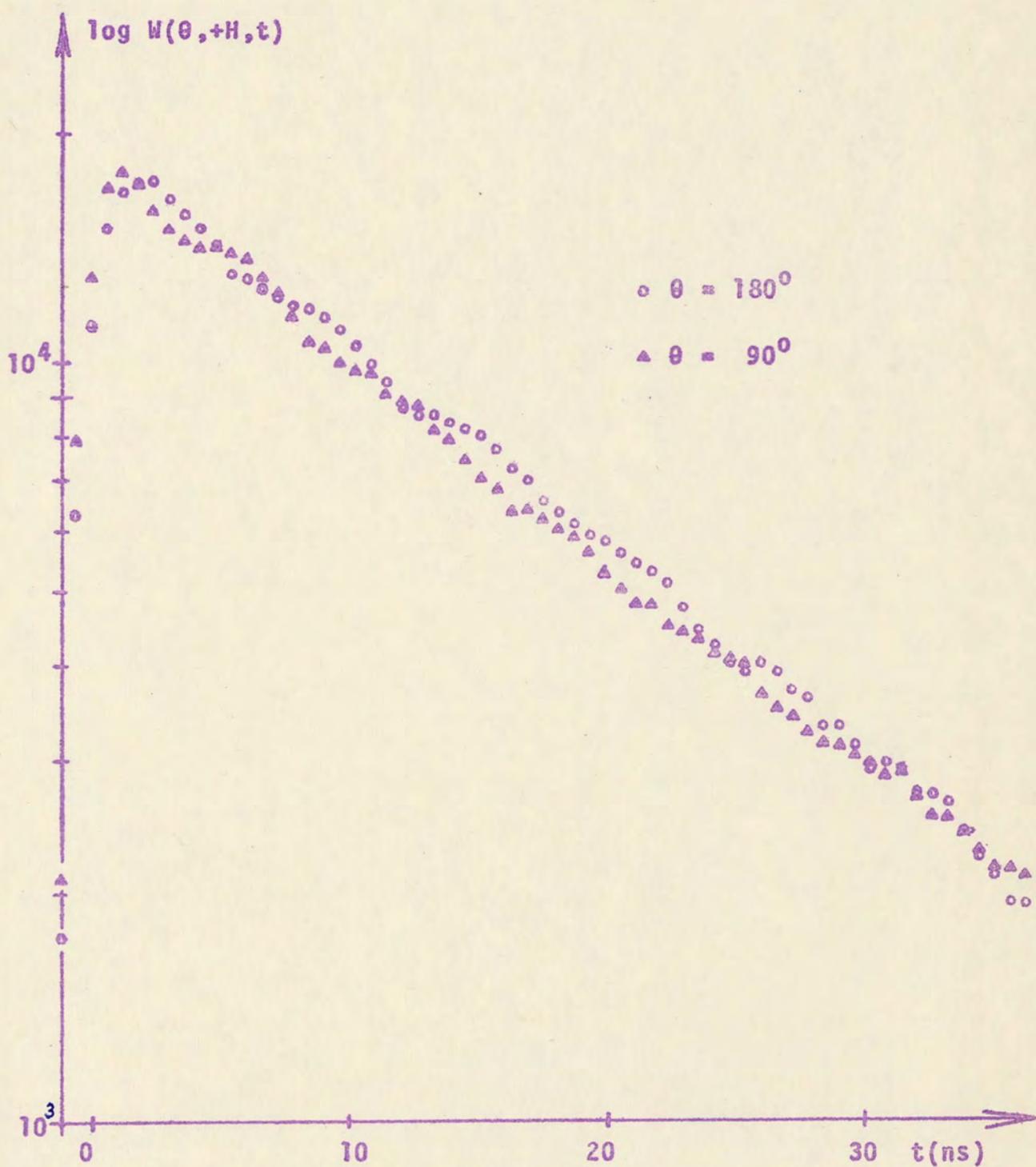


Figura III-12 - Espectros de coincidências contra tempo, com campo magnético polarizador fixo e ângulos de 90° e 180° entre os detetores, antes do recozimento da amostra.

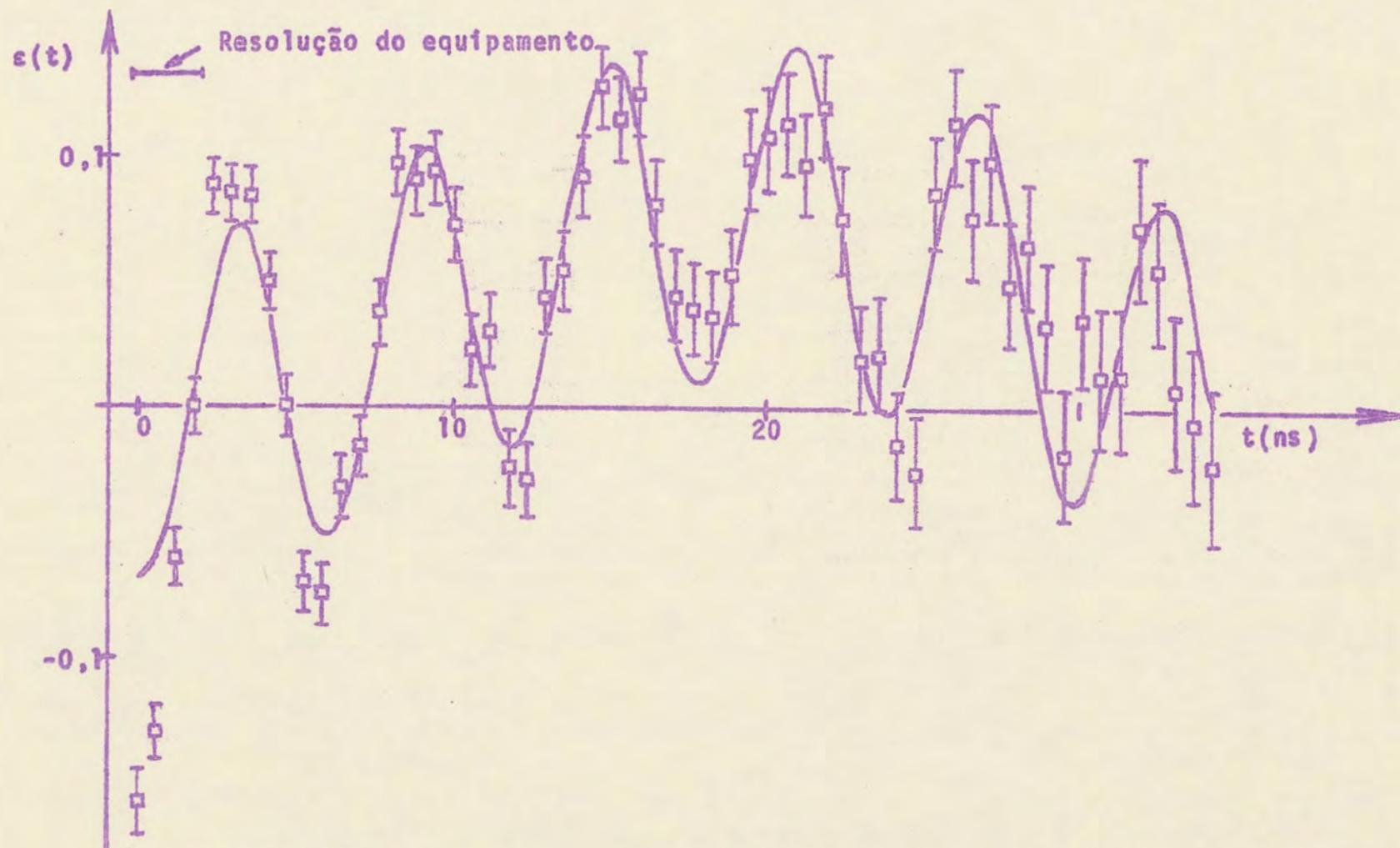


Figura III-13 - Pontos experimentais de $\epsilon(t)$ calculados a partir dos pontos da figura III-12. A curva cheia foi ajustada aos pontos experimentais utilizando-se duas frequências.

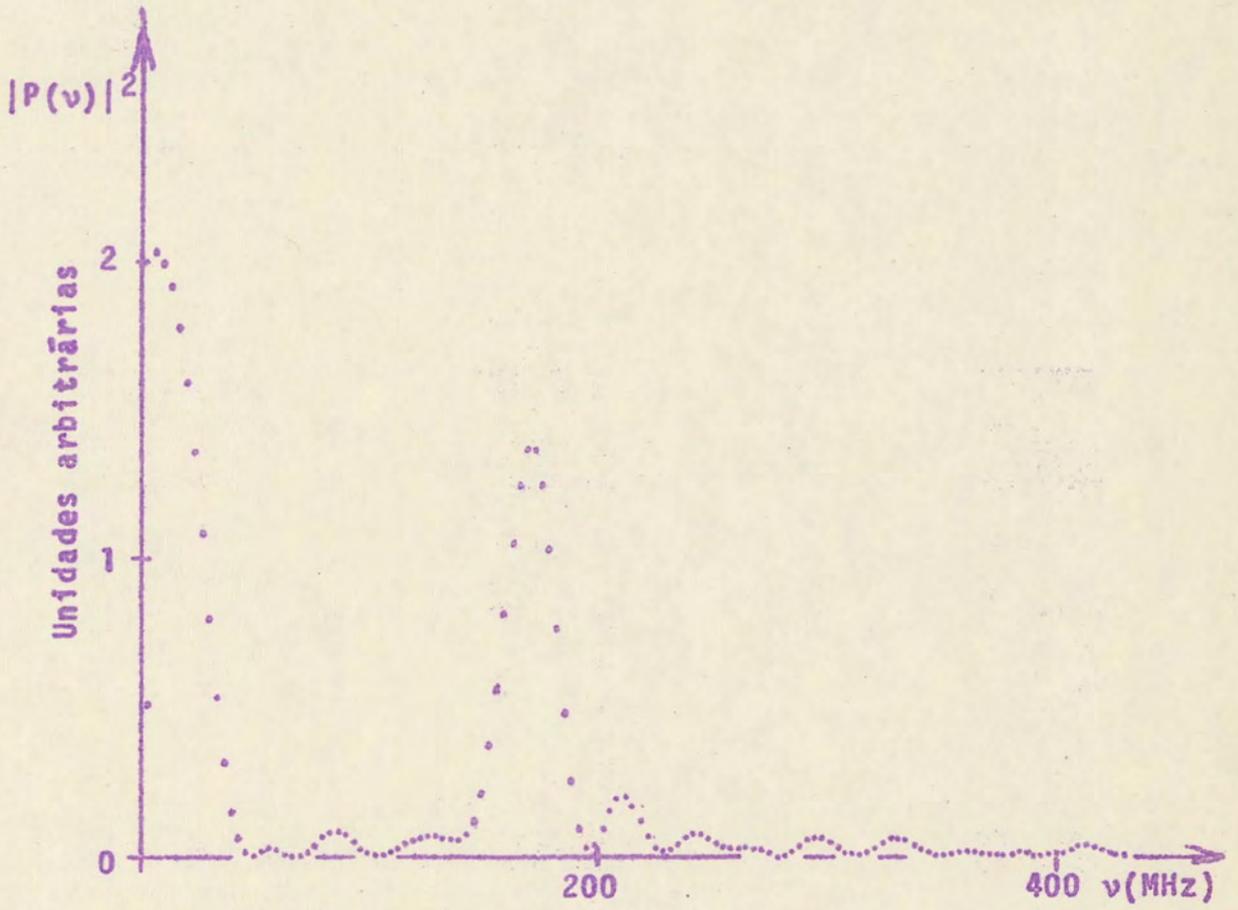


Figura III-14 - Espectro de Fourier dos pontos experimentais de $\epsilon(t)$ da figura III-13.

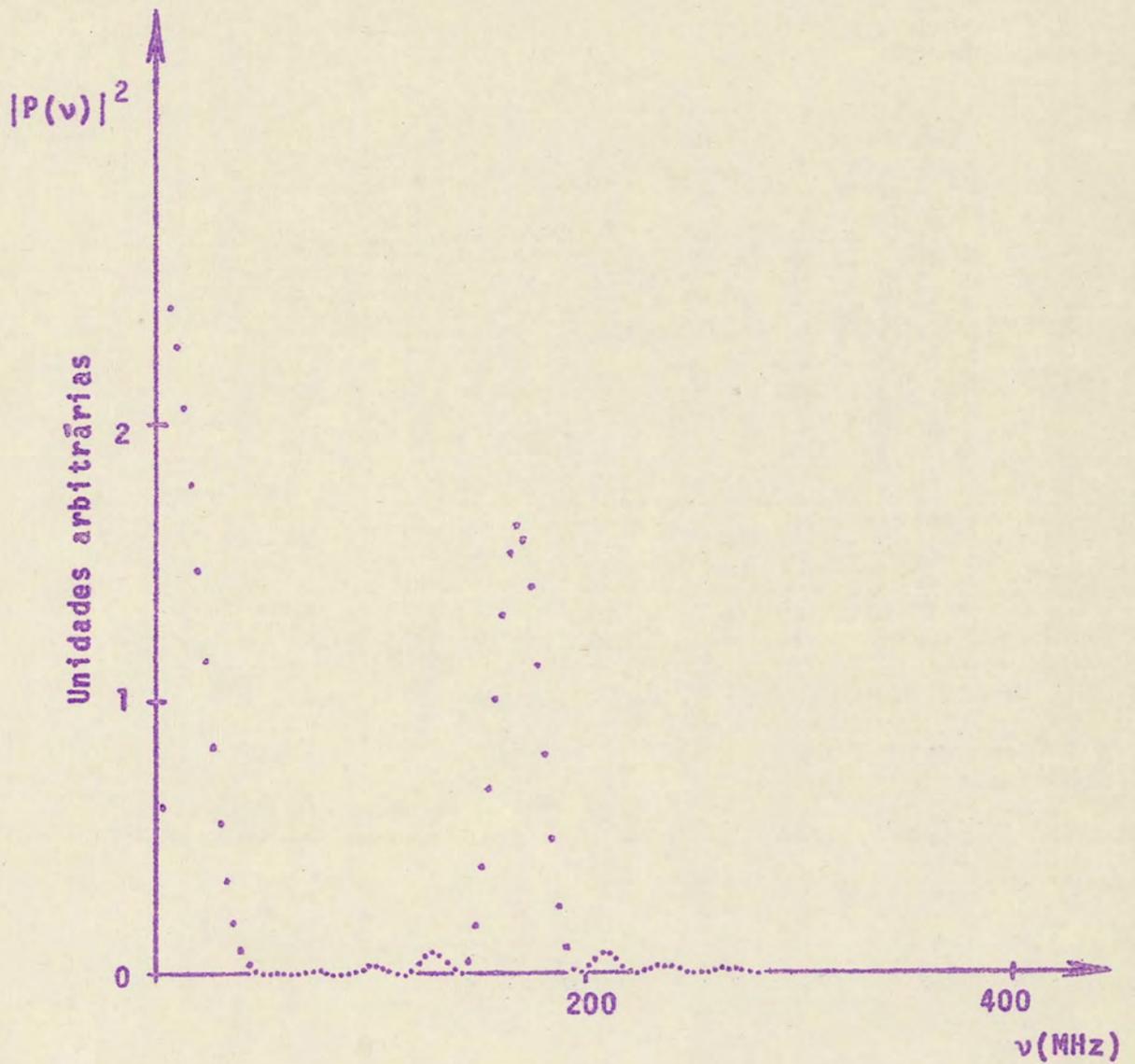
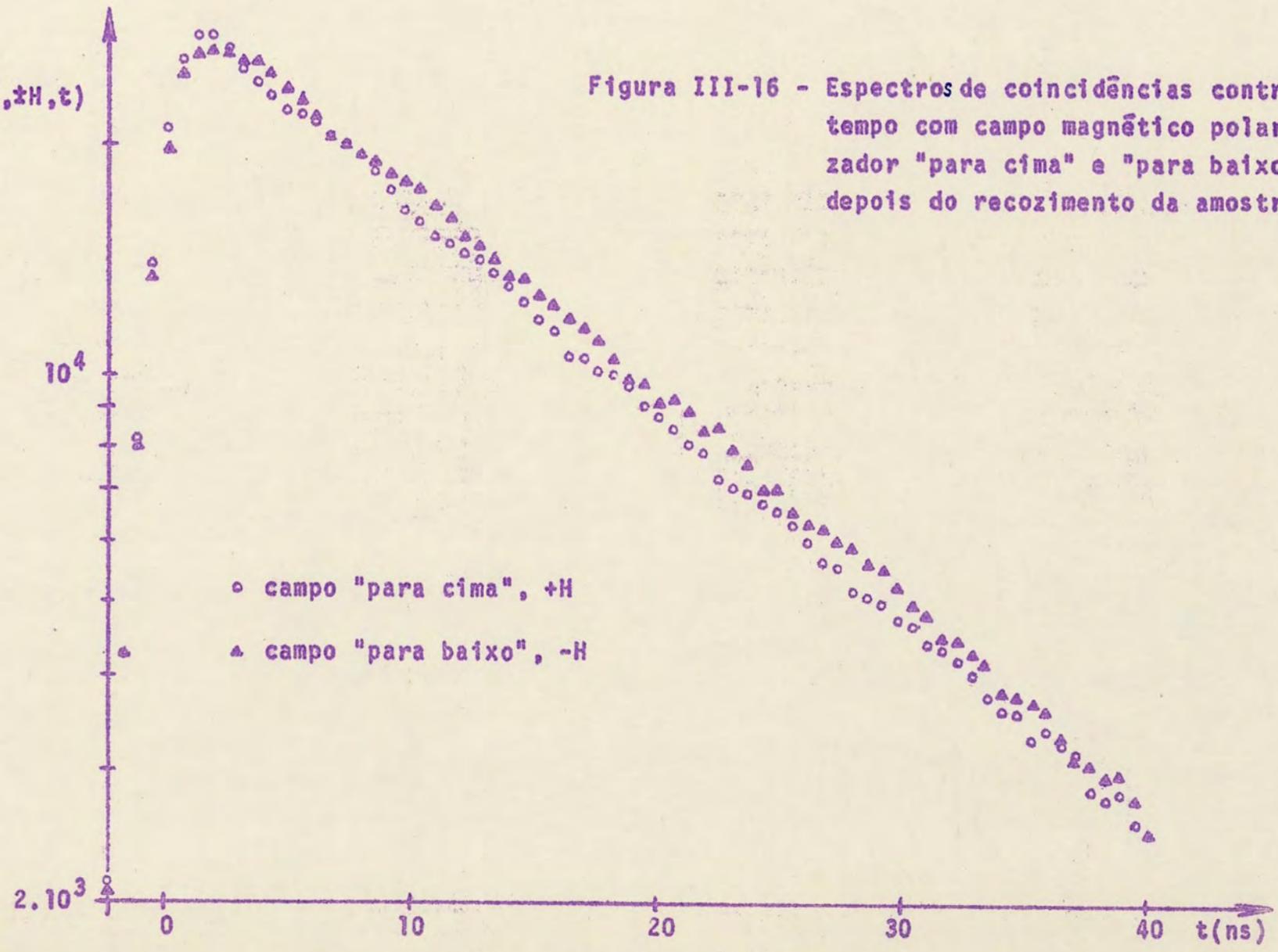


Figura III-15 - Espectro de Fourier da curva ajustada aos pontos experimentais de $\epsilon(t)$ (curva cheia na figura III-13).

$\log W(225^\circ, \pm H, t)$

Figura III-16 - Espectros de coincidências contra tempo com campo magnético polarizador "para cima" e "para baixo", depois do recozimento da amostra.



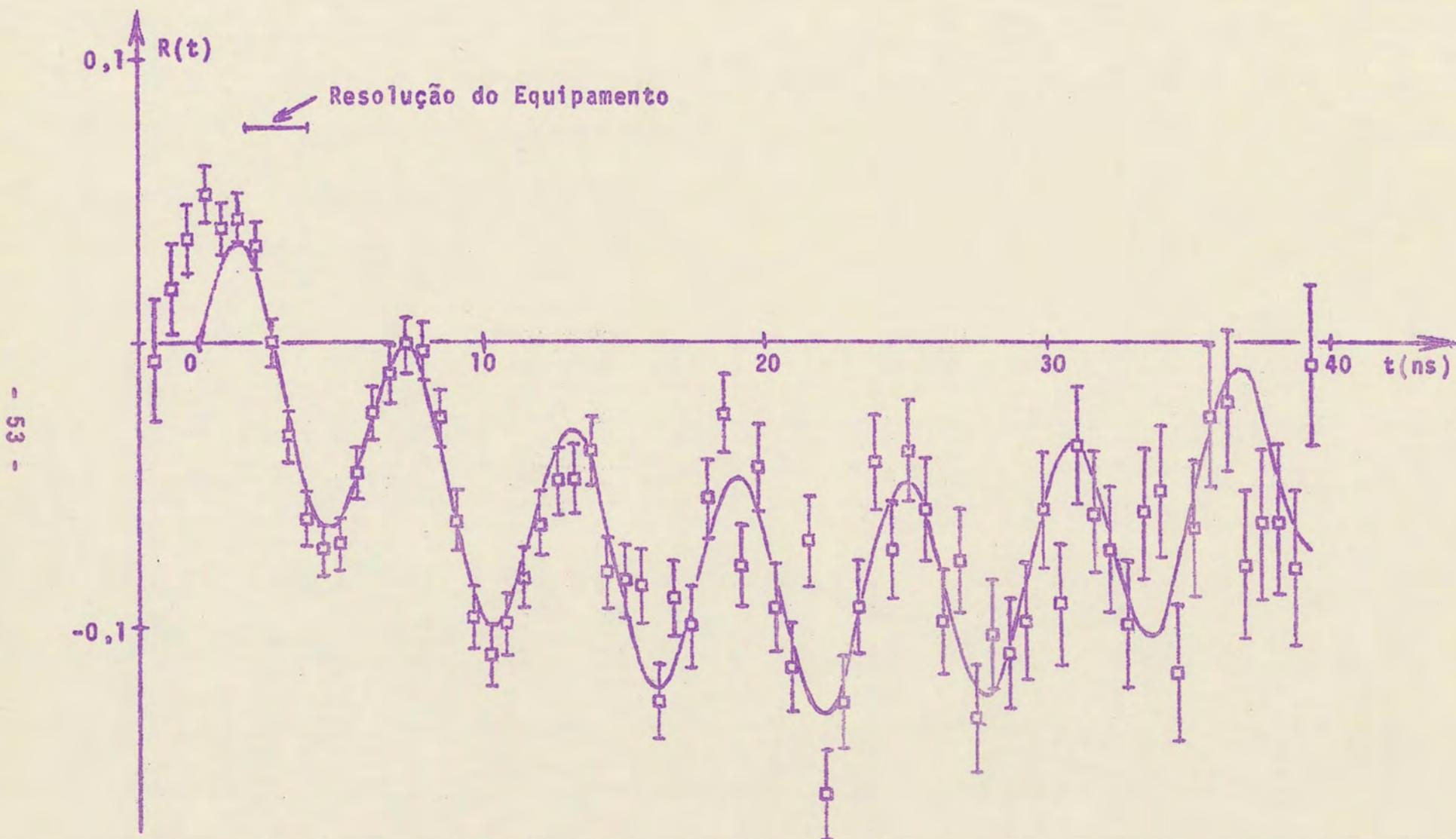


Figura III-17 - Pontos experimentais de $R(t)$ calculados a partir dos pontos da figura III-16.

A curva cheia foi ajustada aos pontos experimentais utilizando-se 2 frequências.

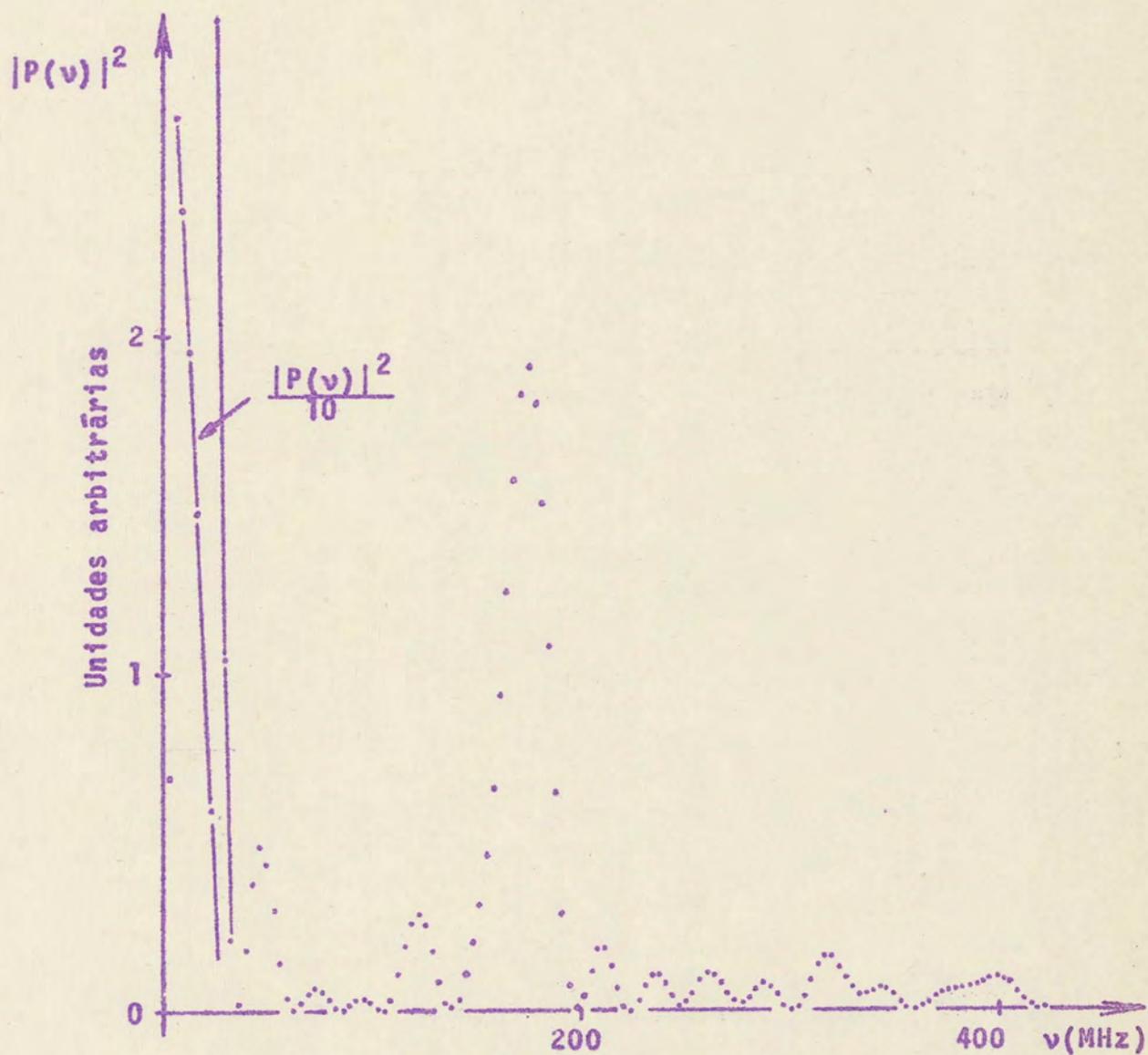


Figura III-18 - Espectro de Fourier dos pontos experimentais de $R(t)$ da figura III-17.

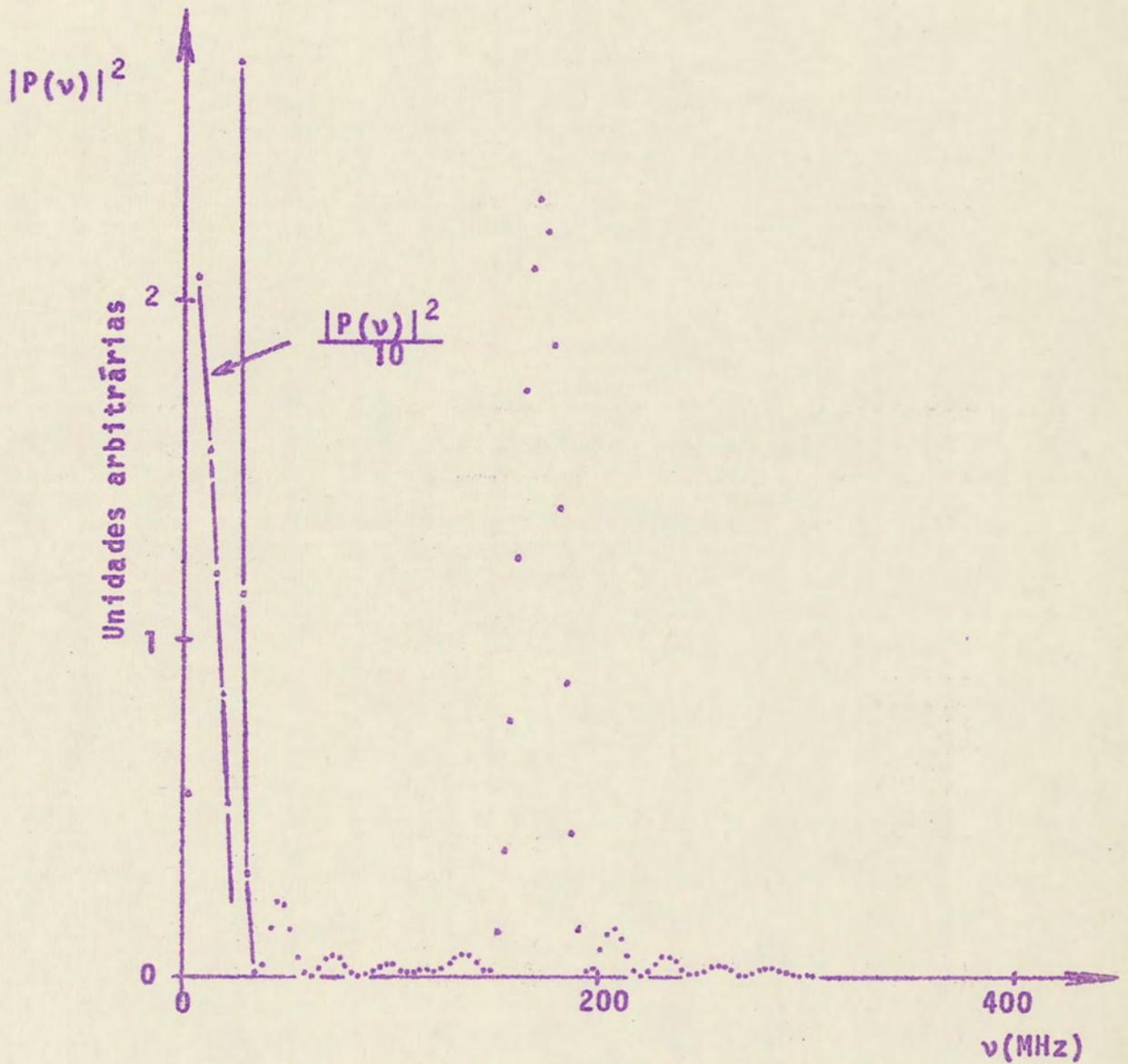


Figura III-19 - Espectro de Fourier da curva ajustada aos pontos experimentais de $R(t)$ (curva cheia na figura III-17).

	amplitudes	frequências angulares em Mradianos.s ⁻¹	campos magnéticos efetivos em KGauss	
medida de R(t) antes do recozimento da amostra	A ₁ =0,0478 A ₂ =0,0247	2ω _L ¹ =1027 [±] 20 2ω _L ² = 173 [±] 15	H _{ef} ¹ = -83,1 [±] 1,6 H _{ef} ² = +14,0 [±] 1,0	Campos magnéticos efetivos médios, das medidas feitas antes do recozimento H _{ef} ¹ = -83,8 [±] 1,6 KGauss H _{ef} ² = +13,6 [±] 1,0 KGauss
medida de ε(t) antes do recozimento da amostra	A ₁ =0,0684 A ₂ =0,0390	2ω _L ¹ =1045 [±] 20 2ω _L ² = 164 [±] 15	H _{ef} ¹ = -84,6 [±] 1,6 H _{ef} ² = +13,3 [±] 1,0	
medida de R(t) após o recozimento da amostra	A ₁ =0,0403 A ₂ =0,0937	2ω _L ¹ =1059 [±] 20 2ω _L ² = 69 [±] 7	H _{ef} ¹ = -85,7 [±] 1,6 H _{ef} ² = + 5,6 [±] 0,6	

Tabela III-1 A tabela mostra as amplitudes, as frequências e os campos magnéticos efetivos encontrados através das medidas diferenciais no ¹⁸¹Ta em matriz de níquel. Os índices correspondem às duas frequências utilizadas nos ajustes das curvas aos pontos experimentais

III - 5 Resultados experimentais

A fim de se obter o campo hiperfino local é necessário corrigirmos para os efeitos do campo magnético externo, do campo de Lorentz e do campo de demagnetização, assim:

$$H_{\text{hiperfino}} = H_{\text{efetivo}} - H_{\text{externo}} - \frac{4\pi}{3} M_s + D 4\pi M_s$$

Em nossas medidas $H_{\text{externo}} = 1700$ Gauss e o campo de saturação do níquel $4\pi M_s = 6900$ Gauss²². O campo de demagnetização era nulo no nosso caso pois a amostra tinha contato magnético com os polos do mini-eletroímã.

Nas medidas feitas antes do recozimento da amostra encontramos dois campos magnéticos efetivos locais, cujos valores médios são:

$$H_{\text{ef}}^1 = (-83,8 \pm 1,6) \text{ KGauss}$$

$$H_{\text{ef}}^2 = (+13,6 \pm 1,0) \text{ KGauss}$$

resultando portanto campos hiperfinos que valem:

$$H_{\text{hf}}^1 = (-88,8 \pm 1,6) \text{ KGauss}$$

$$H_{\text{hf}}^2 = (+ 8,6 \pm 1,0) \text{ KGauss}$$

Na medida feita depois do recozimento da amostra os valores dos campos efetivos encontrados foram:

$$H_{ef}^1 = (-85,7 \pm 1,6) \text{ KGauss}$$

$$H_{ef}^2 = (+ 5,6 \pm 0,6) \text{ KGauss}$$

resultando portanto campos hiperfinos locais cujos valores são:

$$H_{hf}^1 = (-90,7 \pm 1,6) \text{ KGauss}$$

$$H_{hf}^2 = (+ 0,6 \pm 0,6) \text{ KGauss}$$

Os erros expressos acima levam em conta somente a de terminação da frequência de Larmor, não incluindo o erro na de terminação do fator g do nível intermediário ($g_{5/2} = 1,29 \pm 0,02^{23}$).

O valor do campo hiperfino mais alto é praticamente igual, antes e depois do tratamento térmico da amostra. O mes mo não acontece com o outro campo, que cai a zero depois do re cozimento. Neste último caso, o campo magnético efetivo medido é igual ao campo externo aplicado somado ao campo de Lorentz. O que isto nos indica é que o recozimento fez com que muitos á tomos de Hf formassem aglomerados, onde não sentem campo magné tico hiperfino algum por não interagirem com os átomos da ma triz. O valor do campo hiperfino maior, coincide com os valo res encontrados por Vanderleeden¹⁸ e Cameron et al¹⁹ que são $(-87,9 \pm 2,5) \text{ KGauss}$ e $(-89,9 \pm 1,0) \text{ KGauss}$ respectivamente. A nossa amostra foi preparada da mesma maneira que a de Vander leeden, por fusão e com a mesma concentração de impureza. No entanto, a amplitude da curva de R(t) era de $A = 0,0032$ na me dida de Vanderleeden, enquanto que no nosso caso foi de $A=0,047$, mais de dez vezes maior. Provavelmente na amostra de Vander-

leeden a maioria dos átomos de Hf formava aglomerados e não sentia o campo hiperfino magnético. O recozimento feito por Vanderleeden teve a mesma duração que o feito por nós, mas a temperatura era de 950°C , enquanto que no nosso caso era de 800°C . A maior temperatura deve ter acelerado a formação de aglomerados de impureza, pois o Hf tem missibilidade parcial em níquel. Com a amplitude encontrada em nossas medidas fica descartada a existência de um campo hiperfino maior, numa amostra feita por fusão, que mascararia a anisotropia, como foi suposto por Vanderleeden. Na medida de Cameron et al, em uma amostra feita por implantação de íons radioativos de ^{181}Hf em uma folha de níquel, a amplitude encontrada foi de $A=0,075$, ou seja, 50% maior do que a nossa. É provável que a razão deste aumento de amplitude seja o fato de que na amostra feita por implantação todos os átomos de impureza se encontram em sítio bem definido (provavelmente em posição substitucional na matriz).

Ressaltamos também a existência, antes do recozimento, de um campo hiperfino $H_{\text{hf}} = (8,6 \pm 1,0)$ KGauss cujo sinal é contrário ao do campo hiperfino normal no ^{181}Ta em Ni. Este campo talvez seja o sentido por parte dos átomos localizados em imperfeições da rede cristalina que existissem na amostra antes do tratamento térmico. Após o tratamento térmico as imperfeições desapareceram, anulando-se o campo hiperfino positivo.

III - 6 Comentários

As medidas relatadas acima foram feitas à temperatura ambiente. Pretendemos também medir o campo hiperfino no ^{181}Ta em Ni como função da temperatura. Como o ponto Curie do níquel é baixo, $T_c = 358^{\circ}\text{C}$, esperamos que não existam problemas sérios de migração dos átomos de Hf na amostra.

Note-se também que as amplitudes das curvas experimentais de $R(t)$ e $\epsilon(t)$, nas proximidades de $t = 0$, são maiores do que as amplitudes das curvas ajustadas aos pontos experimentais com a utilização de duas frequências. Tal não aconteceu na medida feita depois do tratamento térmico. Isto parece indicar que antes do recozimento, além dos campos determinados, podem existir outros campos hiperfinos de grandeza e direção variáveis de um sítio para outro. Em trabalho publicado recentemente²⁴, com amostras obtidas por implantação de íons de Hf em monocristal de Ni, nota-se efeitos semelhantes. Os autores da referência 24 também mediram o campo hiperfino de ^{181}Ta em Ni numa liga com 0,7% de Hf ativo em Ni, lentamente resfriada, de maneira a se formar um monocristal. O resultado desta medida foi $H_{\text{hf}} = (-90,0 \pm 0,4)$ KGauss, concordando com a nossa experiência.

O campo hiperfino obtido para o ^{181}Ta em Ni está de acordo com as previsões semi-empíricas da referência 12. Como os campos hiperfinos em impurezas dissolvidas em Fe, Co e Ni são proporcionais aos momentos magnéticos atômicos das matrizes, tornam-se também interessantes as medidas adicionais dos campos atuando no ^{181}Ta em Fe e Co, a fim de verificarmos se esta proporcionalidade é seguida nêstes casos.

Pretendemos estudar, também através da correlação angular diferencial, a possível existência de interações quadrupolares no ^{181}Ta em matriz de cobre, que tem estrutura cristalina semelhante à do níquel e não é magnético.

Como já foi mencionado, existe o problema da localização dos átomos da impureza na rede cristalina. Sabemos que estão em andamento²⁵ medidas de "channeling" visando estudar a localização dos átomos de Hf implantados em monocristais de

Ni. Este trabalho vai provavelmente permitir estudos mais completos dos mecanismos que dão origem ao campo hiperfino magnético neste caso.

REFERÊNCIAS

1. H.Frauenfelder; R.M.Steffen - Angular Correlations, In: K. Siegbahn - Alpha-Beta and Gamma Ray Spectroscopy. Amsterdam, North Holland, 1965, v.2, p.997.
2. R.M.Steffen; H.Frauenfelder - The Influence of Extranuclear Fields on Angular Correlations, In: E.Karlsson; E.Matthias and K.Siegbahn - Perturbed Angular Correlations. Amsterdam, North Holland, 1965. cap.1.
3. A.Abragam - Principles of Nuclear Magnetism. Oxford, Oxford University Press, 1961. cap.10.
4. M.Blume - Hyperfine Structure in a Fluctuating Environment, In: E.Matthias and D.A.Shirley - Hyperfine Structure and Nuclear Radiations. Amsterdam, North Holland, 1968, p.911.
5. D.A.Micha - Perturbed Angular Correlations by Randomly Oriented, Fluctuating Magnetic Fields, Physical Review, 156 (1967) 627.
6. H.Gabriel - Theory of the Influence of Environment on the Angular Distribution of Nuclear Radiations, Physical Review, 181 (1969) 506.
7. S.S.Hanna; J.Heberle; G.J.Perlow; R.S.Preston; D.H.Vincent - Direction of the Effective Magnetic Field at the Nucleus in Ferromagnetic Iron, Physical Review Letters, 4 (1960) 513.
8. E.Daniel; J.Friedel - Sur la Polarisation de Spin des Electrons de Conductibilite dans les Metaux Ferromagnetiques, Jornal of Physics and Chemistry of Solids, 24 (1963) 1601-1607.
9. I.A.Campbell; A.A.Gomes - Magnetic Moments of Impurities in Ferromagnetic Transitional Alloys, Proceedings of the Phy-

- sical Society, 91 (1967) 319.
10. I.A.Campbell - Magnetic Moments in Dilute Transition Metal Alloys, Journal of Physics C:Solid State Physics, 1 (1968) 687.
 11. I.A.Campbell - Hyperfine Fields on Impurities in Ferromagnetic Metals, Journal of Physics C : Solid State Physics, 2 (1969) 1338.
 12. A. E. Balabanov; N. N. Delyagin - Some Regularities of the Magnetic Fields at Nuclei of Impurity Atoms in Ferromagnetic Substances, Soviet Physics JETP, 27 (1968) 752.
 13. A. H. Mitchell - Ferromagnetic Relaxation by the Exchange Interaction between Ferromagnetic Electrons and Conducting Electrons, Physical Review, 105 (1957) 1439.
 14. A. J. Freeman; R. E. Watson - Hyperfine Interactions in Magnetic Materials, In: G.T.Rado and H.Suhl - Magnetism. New York, Academic Press, 1963. v.2/A, p.167.
 15. R.E.Watson; A.J.Freeman - Hartree-Fock Theory of Electric and Magnetic Hyperfine Interactions in Atoms and Magnetic Compounds, In: A.J.Freeman and R.B.Frankel - Hyperfine Interactions. New York, Academic Press, 1967. p.53.
 16. R.L.Nössbauer; M.J.Clauser - Recoilless Absorption of Gamma-Rays and Studies of Nuclear Hyperfine Interactions in Solids, In: A.J.Freeman and R.B.Frankel - Hyperfine Interactions. New York, Academic Press, 1967. p. 497.
 17. A.Narath - Nuclear Magnetic Resonance and Relaxation of ^{197}Au in Gold Metal and ^{109}Ag in Gold-Silver Alloys, Physical Review, 163 (1967) 232 - 237.
 18. J.C.Vanderleeden - Internal Field of Tantalum Nuclei in Nickel, In: E.Matthias and D.A.Shirley - Hyperfine Struc-

- ture and Nuclear Radiations. Amsterdam, North Holland, 1968. p.495.
19. J.A.Cameron; P.R.Gardner; W.V.Prestwich; Z.Zamori; D.C. Santry - Hyperfine Fields at ^{181}Ta Nuclei in a Nickel Lattice, Canadian Journal of Physics, 48 (1970) 2725.
20. F.P.Livi - não publicado
21. J.D.Bowman; H.E.Henrikson; F.C.Zawislak - Mini-magnet, Nuclear Instruments and Methods, 84 (1970) 77 - 78.
22. S.Chikazumi - Physics of Magnetism. New York, John Wiley, 1964. cap.2.
23. E.Matthias; L.Boström; Alice Maciel; M.Salomon; T.Lindqvist - Magnetic Dipole Interactions Studied by the Differential Angular Correlation Method, Nuclear Physics, 40 (1963) 656 - 669.
24. J.L.Oddou; J.Berthier; P.Peretto; M.Robin - Champ Hyperfin Sur le Noyaux ^{181}Ta dans une matrice de Nickel Monocristalin Mesuré par Corrélacion Angulaire Différentielle gama-gama Perturbée, Physica Status Solidi, 45 (1971)K139.
25. E.N.Kaufmann, comunicação pessoal a F.C.Zawislak.