

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO GRANDE DO SUL

Instituto de Física

ESTUDO DA INTERAÇÃO HIPERFINA MAGNÉTICA NOS NÚCLEOS DE ^{207}Pb
EM FERRO COMO FUNÇÃO DA TEMPERATURA.*

Jacob Schaf

Trabalho realizado sob a orientação do Dr. F.C.Zawislak, 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: Banco Nacional do Desenvolvimento Econômico, Conselho Nacional de Pesquisas e Agência Internacional de Energia Atômica.

Porto Alegre

- 1972 -

SINOPSE

O presente trabalho compõe-se de três partes. Na primeira sintetizamos o desenvolvimento histórico e o estado atual do estudo das interações hiperfinas magnéticas, especialmente em ligas ferromagnéticas diluídas. Na segunda parte abordamos o método experimental, discutindo as idéias fundamentais da correlação angular, sua aplicação e desempenho frente a outras técnicas. A isto segue-se uma descrição dos equipamentos. Na terceira parte descrevemos o procedimento experimental, apresentamos e discutimos os resultados experimentais da medida das interações hiperfinas magnéticas no ^{207}Pb em Fe como função da temperatura. Os campos hiperfinos magnéticos apresentam um comportamento fortemente anômalo em função da temperatura, cuja interpretação teórica não pode ser feita em termos dos modelos existentes.

ABSTRACT

The present work is composed of three parts. In the first we make a synthesis of the historical evolution and the present state of the magnetic hyperfine interaction studies, especially in dilute ferromagnetic alloys. In the second part we analyse the experimental method, discussing the fundamental ideas of angular correlation and comparing it to other techniques. This is followed by a description of the equipment. The experimental methods are described in the third part. Finally the results of magnetic hyperfine field measurements on ^{207}Pb in Fe are given as a function of temperature. The magnetic hyperfine fields show a strongly anomalous behavior as a function of temperature which can not be understood on the basis of existing models.

INDICE

- I - INTERAÇÕES HIPERFINAS MAGNÉTICAS.
 - I-1-1 Generalidades
 - I-1-2 As Interações Hiperfinas Magnéticas nos átomos integrados em redes cristalinas.
 - I-1-3 Duas experiências marcantes que, entre outras, deram rumo ao estudo das Interações Hiperfinas.
 - I-2 Tentativas de Interpretação dos Campos Hiperfinos Magnéticos.
 - I-2-1 Campos Hiperfinos em átomos livres e íons.
 - I-2-2 Campos Hiperfinos em metais ferromagnéticos puros.
 - I-2-3 Campos Hiperfinos nas impurezas dissolvidas em metais ferromagnéticos.
 - I-2-4 Modelo de Daniel e Friedel para os Campos Hiperfinos dos elétrons de condução por efeitos de blindagem.
 - I-2-5 A revisão de Campbell.
 - I-2-6 Comentários.
 - I-3 Interações Hiperfinas Magnéticas como função da temperatura.
 - I-3-1 Modelo de Campo Molecular.
 - I-3-2 Modelo de Campo Molecular mais Campo dos Elétrons de Condução.
 - I-3-3 Modelo de Transição.
- II - CORRELAÇÕES ANGULARES DIRECIONAIS GAMA-GAMA.
 - II-1 Descrição do Método.
 - II-2 Descrição dos Equipamentos.
 - II-2-1 Sistema Eletrônico.
 - II-2-2 Sistema de Aquecimento e Controle Automático de Temperatura da amostra radioativa.
 - II-2-3 Sistema de Refrigeração da amostra radioativa de ^{207}Pb em Fe.

III - MEDIDAS DOS CAMPOS HIPERFINOS MAGNÉTICOS NO ^{207}Pb EM FERRO E RESULTADOS.

III-1 Introdução.

III-2 Preparo da Amostra de ^{207}Pb em Ferro.

III-3 Medida da Correlação Angular da Cascata 1064-570 KeV do ^{207}Pb .

III-4 Medida da Razão Integral "R" como função da Temperatura.

III-5 Discussão dos Resultados.

C A P Í T U L O I

INTERAÇÕES HIPERFINAS MAGNÉTICAS

I-1-1 Generalidades

Nesta secção pretendemos mostrar, brevemente, numa sequência histórica, o surgimento do problema das Interações Hiperfinas, dando as definições básicas e algumas experiências decisivas de maior destaque.

As interações dos momentos multipolares dos núcleos atômicos com o meio envolvente, isto é, as interações hiperfinas, são objeto de estudo há mais de 60 anos. Os estudos teóricos das interações hiperfinas, no entanto, foram iniciados em 1930, quando Fermi tentou descrevê-las através de um Hamiltoniano de elétron único.

Mais recentemente o estudo destas interações revelou-se como área de grande interesse, pois estabelece as relações existentes entre o núcleo e a coroa atômica, ou seja, entre a Física Nuclear, a Física Atômica e a do Estado Sólido. As interações hiperfinas servem hoje como um dos acessos principais à investigação científica nestas áreas bem como a Química e até mesmo no estudo da paridade de partículas elementares.

A interação do núcleo atômico com campos eletromagnéticos somente existe se há multipolos eletromagnéticos nucleares. Os multipolos magnéticos dependem das correntes de carga elétrica no núcleo e interagem com os campos magnéticos, os multipolos elétricos dependem da distribuição da carga elétrica do núcleo e interagem com campos elétricos.

Os momentos magnéticos nucleares do estado fundamental e dos estados excitados de vida muito longa podem ser medidos por Ressonância Magnética Nuclear (RMN). Porém, nos estados excitados de vida curta, os momentos magnéticos são medidos através de outras técnicas como, por exemplo Correlação Angular Perturbada (CAP). Conhecido o momento magnético do estado nuclear, pode-se medir a interação $\vec{\mu} \cdot \vec{H}$ e calcular o valor de H, onde $\vec{\mu}$ é o momento magnético nuclear e H é o campo magnético que atua sobre o mesmo. Semelhantemente, conhecido o momento quadrupolar do estado nuclear, pode-se medir a interação $Q \frac{\partial^2 E}{\partial z^2}$ e calcular $\frac{\partial E}{\partial z}$.

I-1-2 As Interações Hiperfinas Magnéticas nos átomos intersticiais em redes cristalinas.

No átomo livre ou íon as únicas interações hiperfinas importantes são relativas à corca atômica. Neste caso a seguinte classificação é em geral usada:

1. interações do momento magnético nuclear com o momento magnético local das orbitais eletrônicas incompletas.
2. interação por contato de Fermi com os elétrons s ligados.

A interação de contato de Fermi é a interação do momento magnético nuclear com o campo magnético gerado pela densidade de spin efetiva, que os elétrons s formam no interior do volume nuclear. No ítem I-2-1 será feita uma exposição detalhada do mecanismo gerador desta interação.

Para o átomo integrado numa rede cristalina pura ou como impureza num cristal de outro elemento o número de interações é bem maior. No caso de átomos de impureza dissolvidos em matriz ferromagnética, os campos usualmente considerados são:

1. Campo magnético local ($\vec{H}_{loc.}$), cuja definição tem origem macroscópica e compõe-se do campo externo aplicado na amostra (\vec{H}_0), campo de demagnetização (\vec{H}_D) e campo de Lorentz ($\vec{H}_{Lor.}$):

$$\vec{H}_{loc} = \vec{H}_0 + \vec{H}_D + \vec{H}_{Lor.}$$

$$\text{sendo } \vec{H}_D = -4\pi D\vec{M} \quad \text{e} \quad \vec{H}_{Lor.} = \frac{4}{3}\pi\vec{M},$$

onde D é o fator de demagnetização e \vec{M} é a magnetização da matriz ferromagnética.

- No caso de matriz de Fe, o campo local é normalmente da ordem de alguns kGauss e bastante uniforme no espaço da amostra.

2. Campo eletrónico (\vec{H}_{el}) que inclui:
 - campo orbital (\vec{H}_L) $\sim 10^4$ Gauss para os elementos de transição 3d e $-10^6 - 10^7$ Gauss para as terras raras,
 - campo magnético dipolar de spin dos elétrons não s ($\vec{H}_{dip.}$) $\sim 10^4$ Gauss,
 - campo magnético de contato de Fermi (\vec{H}_{cf}) $\sim 10^5$ Gauss, devido aos elétrons de condução com caráter s, aos elétrons s ligados covalentemente e aos elétrons s internos (das camadas fechadas):

$$\vec{H}_{el} = \vec{H}_L + \vec{H}_{dip} + \vec{H}_{cf}$$

Nos elementos de transição a predominam os campos de contato de Fermi uma vez que o campo orbital é parcial ou totalmente atenuado pelos campos cristalinos. Nas terras raras o campo de origem orbital é dominante, pois as orbitais 4f estão suficientemente blindadas contra os campos cristalinos, não sendo em geral atenuadas.

O campo magnético efetivo no núcleo atômico é a soma vetorial de todos os campos acima definidos.

$$\vec{H}_{ef.} = \vec{H}_{loc.} + \vec{H}_{el.}$$

O campo magnético eletrônico ($\vec{H}_{el.}$) é em geral denominado de campo hiperfino (\vec{H}_{hf}). Porém, muitos autores incluem nesta definição o campo de Lorentz, que é essencialmente paralelo ou antiparalelo a $\vec{H}_{el.}$

A interação do momento magnético nuclear com o campo hiperfino é chamada de Interação Hiperfina Magnética.

$$\mathcal{H}_{hf} = g_I \frac{\mu_N}{\hbar} \vec{I} \cdot \vec{H}_{hf}$$

I-1-3 Duas experiências marcantes que, entre outras, deram rumo ao estudo das Interações Hiperfinas.

As primeiras medidas de campos magnéticos hiperfinos foram realizadas já por volta de 1910, através de espectros óticos. Mais recentemente medidas por RMN e EPR, CAP e Efeito Mössbauer possibilitaram a ampliação das medidas dos campos hiperfinos internos em sólidos.

Em primeiro lugar o trabalho de relevante importância, pela idéia nova introduzida, foi de B.N.Samoilov et al.¹

Já em 1958 Samoilov e seus colaboradores dissolveram pequenas quantidades de átomos diamagnéticos radioativos em matrizes ferromagnéticas e, usando o método da orientação nuclear em baixas temperaturas, mediram os campos hiperfinos atuantes sobre o núcleo da impureza diamagnética, mostrando campos magnéticos gigantes de até 10^6 gauss.

A técnica de dissolver átomos de impureza em matrizes ferromagnéticas abriu um campo muito fértil para a pesquisa em Física Nuclear, Atômica e de Estado Sólido e desde então as matrizes ferromagnéticas vem sendo usadas como campos de prova para os demais átomos. A técnica foi inclusive aperfeiçoada e ampliada com a introdução de variações de temperatura e pressão nas amostras.

Em segundo lugar, devido ao grande interesse despertado para a investigação das interações hiperfinas e a abundante informação essencial dela obtida, vamos descrever as experiências de Perlow et al.² e Hanna et al.³. Os autores da referência 2 realizaram em 1959 medidas de estrutura hiperfina do nível de 14 KeV em amostras de Fe puro, usando Efeito Mössbauer. Nestas experiências o emissor e o absorvente eram polarizados magneticamente, com possibilidade para variações do ângulo relativo de polarização. Os resultados mostraram para a ressonância uma forte dependência do ângulo relativo de polarização emissor-absorvente. Isto mostrou, que os campos hiperfinos, já que os átomos todos encontravam-se orientados no campo polarizador, possuem uma direção bem definida no sistema de referência do átomo. Nesta experiência o sinal dos campos hiperfinos, no entanto, permaneceu indeterminado. Porém, menos de meio ano depois Hanna et al.³ conseguiram determinar também o sinal do campo hiperfino em relação ao campo polarizador (magnetização). O sinal encontrado foi negativo, contra-

riando as previsões teóricas da época. Uma descrição detalhada sobre a repercussão destes dois trabalhos experimentais pode ser encontrada nos trabalhos de Watson e Freeman nas referências 4, 5 e 6.

I-2 Tentativas de interpretação dos Campos Hiperfinos Magnéticos.

I-2-1 Campos Hiperfinos em átomos livres e íons.

Em 1930 Fermi escreveu um Hamiltoniano de elétron único para as interações hiperfinas do momento magnético nuclear com a própria coroa atômica. Porém, não levando em conta a correlação existente entre os elétrons de um átomo, através da interação de intercâmbio, estavam previstos campos hiperfinos nulos em casos onde se verificou, mais tarde, que os valores experimentais são bem elevados. Isto pode ser exemplificado pelo íon Mn^{++} .

Sternheimer em 1952 introduziu a correlação entre os elétrons, usando teoria de perturbação de segunda ordem e mostrou que, nos átomos com spin efetivo, a interação de intercâmbio polariza os elétrons e internos pareados, dando origem a enormes campos magnéticos negativos, por contato de Fermi. Com este trabalho ficou claro que, as partes radiais das funções de onda atômicas com todos os números quânticos iguais exceto o de spin, não podiam ser consideradas como idênticas e que, portanto, o formalismo de Hartree-Fock convencional e a teoria de elétron único são tratamento inadequado para as interações hiperfinas. Assim a restrição sobre a função de onda radial, usada no formalismo convencional, foi levantada passando-se a usar o formalismo de Hartree-Fock não restrito.

Deste momento em diante os recursos do método de Hartree-Fock não restrito tem sido explorados amplamente na interpretação dos campos hiperfinos e o progresso foi bastante satisfatório nos elementos de transição 3d e 4f. Para exemplificar, vamos apresentar os resultados da interpretação feita, pelo método de Hartree-Fock não restrito para o íon Mn^{++} , por Watson e Freeman⁴:

Camada	$H_{hf}/el.$ kGauss	$H_{hf}/camada$ kGauss
1s ↑	2.502.840	-30
1s ↓	-2.502.870	
2s ↑	226.670	-1.400
2s ↓	-228.060	
3s ↑	31.210	+ 740
3s ↓	-30.470	
Resultante:...		- 690

Tabela: I-1 São mostradas as contribuições individuais dos elétrons s em kGauss para o Mn^{++} .

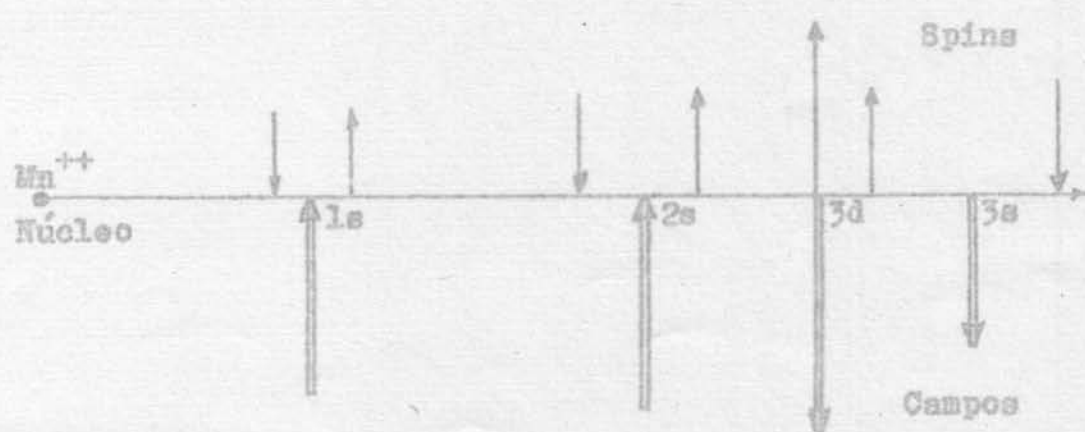


Figura: I-1 Esquema da polarização dos elétrons s de um íon 3d através da interação de intercâmbio ns-3d.

I-2-2 Campos Hiperfinos em metais ferromagnéticos puros.

Para os átomos de redes cristalinas os insucessos na interpretação dos campos hiperfinos prolongaram-se por muito mais tempo e muitos detalhes permanecem até hoje sem interpretação sistemática.

A razão destas dificuldades são as contribuições substanciais de origem externa ao átomo, como campos locais, distorções devidas aos campos cristalinos, contribuições magnéticas dos elétrons de condução, contribuição dos elétrons covalentes, polarização de intercâmbio do spin localizado sobre os elétrons de condução, etc. A interpretação ainda deve atender aos dados experimentais sobre distribuição da densidade de spin obtida por difração de neutrons, e as energias da interação de intercâmbio entre os átomos, obtidas pelo método de calor específico.

Em 1958 Marshall tentou, pela primeira vez, avaliar as contribuições dos diversos mecanismos já estudados, para o campo efetivo no sistema ferromagnético do Co. Como Marshall admitiu que o campo efetivo é paralelo à magnetização, foi levado a sobrestimar a contribuição dos elétrons mais externos, já que os elétrons internos dão contribuições antiparalelas.

Entretanto, com os resultados experimentais de Hanna³ (1960), ficou demonstrado que o campo efetivo no núcleo do Fe⁵⁷ é antiparalelo em relação à magnetização. Simultaneamente também ficou claro que nos metais de transição 3d a contribuição dominante ao campo efetivo tem origem na polarização dos elétrons s internos. Isto, como se sabe, não seria verdade se a contribuição orbital, nestes metais, não fosse atenuada parcial ou totalmente pelas distorções introduzidas pelos campos cristalinos.

Afim de avaliar as contribuições dos elétrons de condução para os campos hiperfinos, nos metais de transição 3d, recorreu-se cada vez mais à teoria de bandas. Watson e Freeman^{4,5} usaram o modelo fortemente ligado, obtendo resultados que se aproximam bastante bem dos valores experimentais.

Nos metais ferromagnéticos a contribuição dos elétrons de condução, de caráter s, aos campos hiperfinos é oriunda da interação de intercâmbio entre os elétrons d magnéticos e os elétrons s da banda de condução. Esta interação tende a alinhar o spin dos últimos num sentido tal que a contribuição ao campo magnético efetivo é positiva.

Low e van Wierengen et al.⁴ descobriram nas interações hiperfinas, oriundas dos elétrons das camadas mais externas, uma forte dependência do caráter covalente das ligações químicas. Surge assim a forma pela qual as interações hiperfinas aparecem na Química.

Em 1966 Watson e Freeman aplicaram os métodos de tratamento teórico, obtidos para os elementos de transição 3d livres, aos elementos 4d e 4f livres, obtendo resultados qualitativamente bons com relação aos dados experimentais. Os dados experimentais referentes aos elementos compreendidos nestas duas séries eram muito escassos, mas permitiram ver que os desvios dos valores teóricos em relação aos experimentais eram em média da ordem de mais ou menos 30%. Deve-se mencionar que nas terras raras a contribuição da orbital 4f aos campos hiperfinos é dominante, pois nos elementos de transição 4f o momento angular orbital não é, em geral, atenuado.

Apesar de certo êxito alcançado na interpretação teórica das interações hiperfinas nos elementos de transição

3d e 4f puros, que representam uma pequena parcela do sistema periódico, esta ainda não passa de uma primeira aproximação. Faltam ainda muitos dados experimentais e a interpretação teórica está muito longe do desejável.

I-2-3 Campos Hiperfinos nas impurezas dissolvidas em metais ferromagnéticos.

Sabe-se que num metal ferromagnético os átomos são correlacionados e orientados pela interação de intercâmbio. Era de se esperar que átomos de impureza diamagnéticos, dissolvidos em quantidade suficientemente pequena para não perturbar o comportamento macroscópico da matriz, revelassem, através de suas interações hiperfinas, apenas o campo local gerado pela matriz. Mas os átomos diamagnéticos (Au) que Samoilov dissolveu em ferro apresentaram anormes campos magnéticos hiperfinos negativos. A tabela I-2 mostra os resultados experimentais atualmente conhecidos. O estudo destes resultados revelam uma certa regularidade, o que levou Balabanov e Delyagin⁷ a enunciarem leis empíricas. Balabanov e Delyagin conseguiram descrever o comportamento dos campos hiperfinos, numa dada série do sistema periódico, como função de três parâmetros: momento magnético local dos átomos da matriz, número de elétrons internos e número de elétrons nas camadas mais externas da impureza. Maiores detalhes sobre o assunto podem ser encontrados na referência 7.

Apesar de conseguirem Balabanov e Delyagin uma descrição bastante boa em relação aos valores experimentais, conhecidos na época, este trabalho tem, hoje, uma importância secundária, pois foram obtidos posteriormente muitos dados experimentais discordantes até mesmo em sinal. A conclusão a que se che-

γ	Série IV	M a t r i z			Série V	M a t r i z			Série VI	M a t r i z		
		Fe	Co	Ni		Fe	Co	Ni		Fe	Co	Ni
3	Sc	(+)100	---	---	Y	---	---	---	Lu	-483	---	---
4	Ti	---	---	---	Zr	---	+	90	Hf	-606	---	-60
5	V	-87	-48	(-)75	Nb	-242	-189	-40	Ta	-656	---	-98
6	Cr	---	---	---	Mo	-236	-150	-30	W	-643	-366	-75
7	Mn	-225	-135	-320	Tc	-298	(-)170	-47	Re	-760	-440	-95
8	Fe	-339	-317	-282	Ru	-505	-415	-178	Os	(-)1140	(-)870	(-)300
9	Co	-290	-215	-120	Rh	-544	-400	-207	Ir	-1240	(-)965	(-)440
10	Ni	-235	-189	-75	Pd	-597	-402	-184	Pt	-1200	-820	-350
11	Cu	-215	-157	-46	Ag	-336	---	-95	Au	-1315	-960	-330
12	Zn	-95	---	---	Cd	-348	(-)268	-65	Hg	-980	-370	-86
13	Ga	(-)110	(-)62	---	In	-291	---	-37	Tl	-185	-90	---
14	Ge	+70	---	+33	Sn	-81	-21	+19	Pb	+262	+262	+135
15	As	(+)339	---	---	Sb	+240	+187	+90	Bi	---	---	---
16	Se	---	---	---	Te	+620	+550	+195	Po	---	---	---
17	Br	---	---	---	I	(+)1130	---	---	At	---	---	---

Tabela I-2 Campo magnético hiperfino em kGauss nos elementos das séries IV, V e VI como impurezas nos metais ferromagnéticos (Fe, Co e Ni). Os sinais entre parêntesis não são experimentais. O parâmetro γ indica o número de elétrons nas camadas externas.

Tabela extraída das referências 7 e 22.

ga é que há necessidade de investigação dos mecanismos físicos que possibilitem uma descrição mais efetiva das interações hiperfinas.

Os campos hiperfinos de impurezas em matrizes ferromagnéticas resultam da superposição de várias contribuições, que podem ser classificadas em:

1. contribuição dos elétrons ligados ao átomo:

- contribuição dos elétrons ligados a tanto externos como internos em relação aos elétrons d do átomo, via contato de Fermi,
- contribuição da interação dipolo-dipolo do núcleo com os elétrons não s da camada incompleta,
- contribuição orbital da camada incompleta, se não houver "quenching".

2. contribuição dos elétrons de condução.

Num estudo sistemático dos campos hiperfinos nas impurezas em metais ferromagnéticos, costuma-se tomar por base o Hamiltoniano Formal de Spin:

$$\mathcal{H} = V_{of} + 2\frac{A}{k}\vec{H}_{ex} \cdot \vec{S} + \lambda \vec{L} \cdot \vec{S} - \mu_B \vec{H}_c \cdot \vec{I} + 2\frac{A}{k} \mu_B \langle r^{-3} \rangle \times \left\{ \vec{L} \cdot \vec{I} + \left[\zeta L(L+1) - K \right] \vec{S} \cdot \vec{I} - \frac{3}{2} \zeta \left[(\vec{L} \cdot \vec{S})(\vec{L} \cdot \vec{I}) + (\vec{L} \cdot \vec{I})(\vec{L} \cdot \vec{S}) \right] \right\}$$

onde V_{of} é o potencial dos campos cristalinos,

$2\frac{A}{k}\vec{H}_{ex} \cdot \vec{S}$ é a interação de intercâmbio, onde $\mu_B = \frac{e\hbar}{2m_0c}$ é o magneton de Bohr, \vec{H}_{ex} é o campo magnético de intercâmbio, \vec{S} é o spin total da camada incompleta da impureza,

$\lambda \vec{L} \cdot \vec{S}$ é a interação spin-órbita, onde λ é a constante de acoplamento spin-órbita, \vec{L} é o momentum angular orbital total da camada incompleta da impureza,

$\gamma_I \vec{H}_c \cdot \vec{I}$ é a contribuição dos elétrons de condução; onde $\gamma_I = g_I \frac{\mu_N}{\hbar}$ é o fator giromagnético nuclear, sendo g_I o fator g nuclear e $\mu_N = \frac{e\hbar}{2m_p c}$ o magneton nuclear; \vec{H}_c é o campo magnético associado aos elétrons de condução e \vec{I} é o spin total do núcleo da impureza,

$2 \frac{\mu_B}{\hbar} \gamma_I \langle r^{-3} \rangle \vec{L} \cdot \vec{I}$ é a contribuição orbital da camada incompleta da impureza, sendo $\langle r^{-3} \rangle$ o raio médio da orbital incompleta da impureza, caso exista,

$2 \frac{\mu_B}{\hbar} \gamma_I \langle r^{-3} \rangle K \vec{S} \cdot \vec{I}$ é a contribuição da polarização dos elétrons s ligados via contato de Fermi, sendo K a constante de polarização correspondente,

$2 \frac{\mu_B}{\hbar} \gamma_I \langle r^{-3} \rangle \xi \left\{ L(L+1) \vec{S} \cdot \vec{I} - \frac{3}{2} \left[(\vec{L} \cdot \vec{S})(\vec{L} \cdot \vec{I}) + (\vec{L} \cdot \vec{I})(\vec{L} \cdot \vec{S}) \right] \right\}$ é a interação dipolo spinorial - dipolo nuclear, sendo

$$\xi = \frac{(2\ell + 1) - 4S}{8(2\ell - 1)(2\ell + 3)(2L - 1)} \quad \text{onde } \ell = \text{número quântico orbital da camada incompleta, e } L \text{ é o número quântico orbital total, ambos da impureza.}$$

Como os três primeiros termos do hamiltoniano contribuem com energias bem superiores em relação aos demais, pode-se obter soluções exatas para eles mediante a equação de Schrödinger. Estas soluções, por sua vez, servem de base aos métodos de aproximação aplicados na avaliação dos demais termos. Em geral o método de aproximação a ser usado é o formalismo não restrito de Hartree-Fock.

Watson e Freeman⁸ usaram o método não restrito de Hartree-Fock para determinar a polarização negativa de spin da orbital $4s$ do Fe, devida à interação de intercâmbio com os elé-

trons 3d. Eles imaginaram que esta polarização negativa se propaga através do átomo impureza, dando aí origem à uma polarização de spin negativa. Este método de aproximação, no entanto, se torna muito complexo e a situação se agrava quando a impureza possui spin localizado. A razão é que, neste caso, são envolvidos efeitos de polarização devidos ao spin local da impureza, mais a polarização de intercâmbio da matriz.

I-2-4 Modelo de Daniel e Friedel para os campos hiperfinos dos elétrons de condução por efeitos de blindagem.

Daniel e Friedel⁹ (1963) considerando o caso de impurezas sem spin local, propuseram um modelo extremamente simples e que revelou uma certa facilidade na descrição dos efeitos hiperfinos resultantes da interação impureza-elétrons de condução.

Sabendo que o spin total S_d da camada 3d incompleta do Fe está alinhada antiparalelamente à magnetização, a contribuição ao campo magnético é positiva. Desta forma a interação de intercâmbio s-d, entre os elétrons de condução e os elétrons da camada d incompleta da matriz com spin total S_d , eleva de ϵ o fundo da semibanda de energia dos elétrons de condução com spin antiparalelo a S_d e rebaixa o fundo da semibanda dos elétrons com spin paralelo. Mas o nível de Fermi é o mesmo para as duas semibandas.

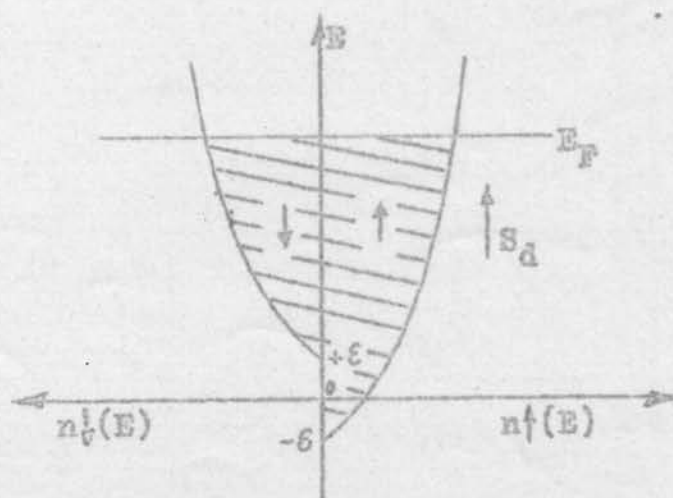


Figura I-2 Esquema das semibandas de energia dos elétrons de condução com spin para cima e spin para baixo.

Tratando o problema de ligas, Dardel e Friedel associaram poços de potencial quadrados às impurezas e descreveram os elétrons de condução por meio de funções de Bloch. A profundidade dos poços de potencial, numa dada série do sistema periódico, foi vinculada à diferença de carga elétrica nuclear Z_i entre os átomos da matriz e da impureza, sendo a extensão espacial dos mesmos dependente da impureza e da matriz. A interação dos elétrons de condução com a impureza foi descrita como um problema de espalhamento de elétrons livres por potenciais quadrados. Porém, como os fundos das semibandas dos elétrons de condução estão deslocados da maneira como foi descrito na figura I-2, os potenciais, sentidos pelos elétrons com spin para cima e para baixo, serão diferentes. Para o caso de impurezas s-p os potenciais são como mostrado na figura I-3.

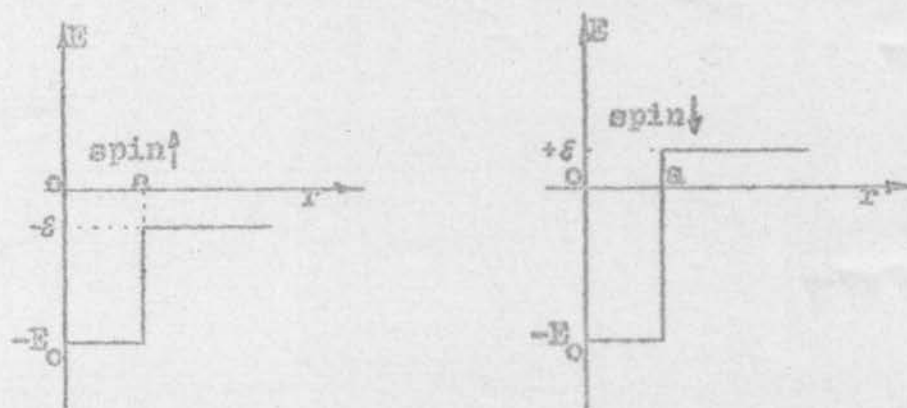


Figura I-3 Poços de potencial quadrados associados a um átomo de impureza, como sentidos pelos elétrons com spin para cima e spin para baixo.

Disto se vê que, devido à interação de intercâmbio s-d, a impureza é mais atrativa para elétrons de spin para baixo em relação aos de spin para cima e disto resulta, no núcleo de certas impurezas, uma densidade de spin negativa e, por contato de Fermi, campos hiperfinos negativos. O número de elétrons atraídos pela impureza é determinado pela condição de blindagem de carga da impureza. Porém, não se deve imaginar

uma situação eletrostática, pois os elétrons são considerados como livres e descritos por funções de Bloch. A interação dos elétrons de condução com a impureza foi descrita por Daniel e Friedel como um problema de espalhamento de elétrons livres por potenciais quadrados. Uma avaliação dos deslocamentos de fase das ondas s para elétrons com spin para cima e spin para baixo, mostrou que, no núcleo de Sn, resulta uma densidade de spin para baixo, o que corresponde a contribuições negativas para o campo magnético efetivo.

I-2-5 A revisão de Campbell

I.A. Campbell¹⁰ (1969) analisando a teoria de Daniel e Friedel verificou que, conforme os parâmetros escolhidos, a polarização dos elétrons de condução tem, para $Z_1 = 0$, sentidos opostos na matriz e impureza. Mas a escolha dos parâmetros depende do número de elétrons s na banda de condução. Daniel e Friedel usaram um elétron s por átomo da matriz. Porém, A. Narath¹¹ (1967) mostrou por comparação de "Knight shift" e suscetibilidade de Pauli nos metais nobres, que apenas uma terça parte dos elétrons de condução, na superfície de Fermi, possuem caráter s . Por isso é de se supor que o número de elétrons de condução com caráter s , no ferro, seja muito menor que um por átomo.

Considerando isto, Campbell passou a reformular a teoria de Daniel e Friedel introduzindo a hibridização $s-d$ na banda de condução, que ao mesmo tempo reduz o caráter s da banda e leva à uma polarização negativa dos elétrons de condução. Considerando 0,12 elétrons s por átomo da matriz de Fe, Campbell conseguiu um "fitting" dos valores experimentais melhor do que Daniel e Friedel. Na figura I-4 é mostrado o re-

sultado para impurezas s-p em Fe.

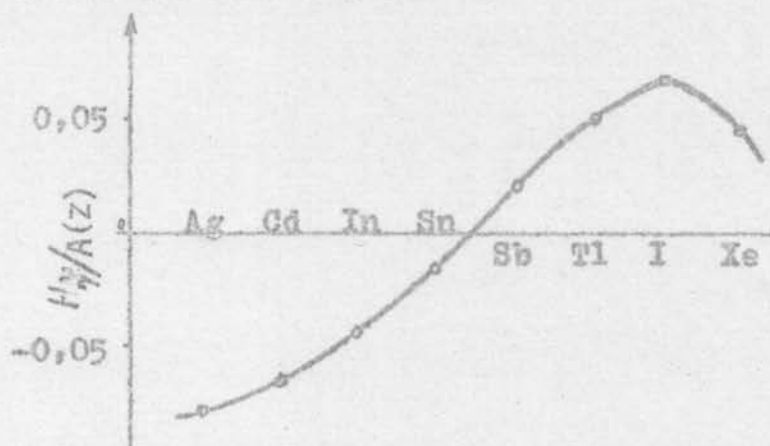


Figura I-4. Mostra os valores experimentais e a curva teórica para $H_{hf}^s/A(Z)$ como função de Z_1 . $A(Z)$ são os parâmetros de acoplamento hiperfino dos elétrons s.

I-2-6 Comentários.

O problema do estudo dos mecanismos dos campos hiperfinos é extremamente complexo, pois depende de áreas ainda insuficientemente conhecidas como, por exemplo, o ferromagnetismo. Outro problema, que dificulta as interpretações teóricas, é o da localização dos átomos de impureza na rede cristalina da matriz. Foi verificado que, para alguns elementos, os campos hiperfinos não dependem apenas do elemento impureza e da matriz, porém, também do método usado na preparação da amostra, ou seja, há várias posições para a impureza na rede cristalina da matriz.

Para determinar a posição da impureza na rede cristalina está sendo usada a técnica chamada "channeling", que consiste em observar a transmissão de íons através da amostra monocristalina segundo vários eixos da mesma. Estas pesquisas já conseguiram revelar que, nas amostras preparadas por im-

plantação, seja com acelerador de íons ou por recuo após decaimento radioativo, as impurezas em muitos casos estão localizadas parcialmente substitucionais e parcialmente não substitucionais. Por outro lado, pelo menos nos casos em que há solubilidade sólida, espera-se que nas amostras preparadas por difusão ou fusão a impureza esteja em posições substitucionais. O problema da localização da impureza numa liga, quando as condições de eletronegatividade, de valência e de raio iônico entre os átomos de impureza e da matriz não estão satisfeitas, permanece uma questão aberta.

Os problemas de interpretação teórica das interações hiperfinas tem sido árduos. Porém, os recursos fabulosos que as mesmas representam para a pesquisa, como instrumento sensível e preciso, abrangendo, principalmente, as áreas da Física de Estado Sólido, da Física Nuclear e Atômica e da Química, continuam estimulando os esforços dos pesquisadores. Sem dúvida o grande obstáculo destas aspirações é a falta de dados experimentais. Há necessidade de pesquisas sistemáticas das interações hiperfinas em todas as ligas, variando os parâmetros que afetam os elétrons responsáveis pelos campos hiperfinos. Há necessidade de dados experimentais como função da temperatura, que varia a interação de intercâmbio entre os átomos, nas redes ferromagnéticas, devido à dilatação térmica. Há necessidade de dados experimentais como função da pressão, que diminui os parâmetros de rede bem como em função da concentração de impureza.

I-3 Interações Hiperfinas Magnéticas como função da Temperatura.

Conforme foi visto no ítem I-2-3 o campo hiperfino magnético das impurezas em matriz ferromagnética compreende termos de origem local e o termo dos elétrons de condução. No modelo de Daniel e Friedel e Campbell foi visto que o campo hiperfino devido aos elétrons de condução, depende diretamente da polarização de intercâmbio entre os elétrons de condução e o spin local da matriz. Por isso, se o alinhamento dos momentos magnéticos locais dos átomos da matriz, num dado domínio ferromagnético, depende da temperatura, o campo hiperfino será também função da temperatura. Sabe-se, efetivamente, que o alinhamento dos momentos magnéticos atômicos, ou seja a magnetização, é descrita, em teoria de campo molecular de Weiss, pela função de Brillouin:

$$B_J(x) \quad \text{sendo } x = \frac{g\mu_B J H(T)}{kT}$$

onde g é o fator g eletrônico, μ_B é o magneton de Bohr, J é o spin total do átomo ferromagnético, k é a constante de Boltzmann, $H(T)$ é o campo de intercâmbio entre os átomos da matriz do modelo de Weiss e T é a temperatura absoluta. Destas definições pode-se deduzir que

$$H(T) = \frac{J}{J+1} \frac{kT_c}{g\mu_B} \frac{G_J(T)}{G_J(0)}$$

onde $\frac{G_J(T)}{G_J(0)} = B_J(x)$ é a magnetização reduzida espontânea da matriz e T_c é a temperatura crítica da mesma. Para o caso do ferro escreve-se S em lugar de J porque, no ferro, o momentum angular orbital é atenuado.

A partir destas considerações é de se supor que, variando a temperatura, os campos hiperfinos da impureza, dependentes da interação de intercâmbio, sejam proporcionais à

magnetização e que os demais termos, em princípio, permanecem inalterados. É isto realmente o que acontece num grande número de casos. Deve-se, contudo, esclarecer que, ainda que o valor do momento local seja independente da temperatura, os campos hiperfinos, originados deste momento, aparecerão, nos resultados de medidas, também como proporcionais à magnetização, por causa do estado de orientação atômica que é dependente da temperatura. Assim se pode, então, escrever:

$$H_{hf}(T) = H_{hf}(0) B_S(x)$$

Esta função representa uma média termodinâmica e não diz que os campos hiperfinos de origem local desaparecem ao ser ultrapassado o ponto Curie da matriz. Eles apenas se tornam experimentalmente inobserváveis. Nem tampouco a interação de intercâmbio entre os elétrons de condução e os spins locais da matriz desaparece. Unicamente os campos criados são de duração excessivamente curta para serem medidos com as técnicas atuais.

Contrariando, porém, estas considerações teóricas, as pesquisas experimentais revelaram cada vez um número maior de impurezas com um comportamento anômalo, isto é, os campos hiperfinos locais sobre a impureza não são proporcionais à magnetização da matriz em função da temperatura. Para interpretar estas anomalias surgiram vários modelos, que passamos a descrever.

1-3-1 Modelo de Campo Molecular

Um dos primeiros casos de anomalia foi observado no Mn⁵⁵ em Fe. Para interpretar o campo magnético hiperfino nesta liga Jaccarino et al.¹² apresentaram um modelo baseado no modelo ferromagnético de Weiss¹³, admitindo a existência de

um momento localizado na impureza com valor independente da temperatura.

A interação de intercâmbio, que se estabelece entre a impureza e os átomos da rede ferromagnética é em geral mais fraca em relação àquela que existe entre os átomos do ferro puro. Por isso os autores da referência 12 escreveram o campo de intercâmbio impureza-matriz $H_1(T)$ como proporcional ao campo de interação de intercâmbio entre os átomos da rede pura,

$$H_1(T) = \xi \frac{1}{S} \frac{kT_c}{\epsilon A_B} \frac{\sigma_m(T)}{\sigma_m(0)}$$

onde ξ é o parâmetro da interação de intercâmbio ajustável, cujo valor depende da impureza.

Colocando estas expressões na equação para o campo hiperfino H_{hf} , obtém-se a seguinte função:

$$H_{hf}(T) = H_{hf}(0) B_S \left(\xi \frac{1}{S} \frac{\sigma_m(T)}{\sigma_m(0)} \right)$$

onde $\gamma = \frac{T}{T_c}$.

Esta expressão para o campo hiperfino deve ser ajustada aos pontos experimentais para, assim, determinar $H_{hf}(0)$ e os parâmetros S e ξ .

I-3-2 Modelo de Campo Molecular mais Campo dos Elétons de Condução.

Conforme já foi dito, o campo hiperfino, devido aos elétrons de condução, é muito proximamente proporcional à magnetização da matriz. Por isso Low¹⁴ (1966) e Shirley¹⁵ (1967) separaram a contribuição dos elétrons de condução como um termo aparte, rigorosamente proporcional à magnetização:

$$H_c(T) = H_c(0) \frac{\sigma_m(T)}{\sigma_m(0)}$$

onde $\frac{\sigma_m(T)}{\sigma_m(0)}$ é a magnetização reduzida da matriz e H_c é o campo hiperfino devido aos elétrons de condução. O restante do campo hiperfino da impureza, de origem local, foi totalmente responsabilizado pelo comportamento anômalo e descrito pelo modelo de campo molecular de Jaccarino:

$$H_{loc.}(T) = H_{loc.}(0) B_S(y)$$

$$\text{sendo } y = \left\{ \frac{1}{2} \frac{\sigma_m(T)}{\sigma_m(0)} \right\}$$

Assim para o campo hiperfino global foi obtida a expressão:

$$H_{hf}(T) = H_c(0) \frac{\sigma_m(T)}{\sigma_m(0)} + H_{loc.}(0) B_S(y)$$

Normalizando esta expressão em relação a $H_{hf}(0)$ e definindo:

$$\frac{H_{loc.}(0)}{H_{hf}(0)} = f,$$

podemos escrever:

$$\frac{H_{hf}(T)}{H_{hf}(0)} = (1 - f) \frac{\sigma_m(T)}{\sigma_m(0)} + f B_S(y)$$

Em geral este modelo é insensível ao spin, razão pela qual dá nestes casos ajustes igualmente bons para diversos valores de spin.

Comentário

Apesar de o modelo de campo molecular possibilitar quase sempre a determinação do spin nuclear e de o modelo com contribuição dos elétrons de condução nos dar a proporção entre a contribuição dos elétrons de condução e a de origem local,

ambos se omitem quanto as origens das anomalias e por isso quase nada acrescentam ao conhecimento dos campos hiperfinos. Não há muita vantagem em dispormos de uma função analítica individual para os campos hiperfinos de cada liga, quando o interesse está voltado para o mecanismo responsável pelas anomalias, onde, ao que parece, está o único rumo com possibilidade de progresso. Além disto é preciso mencionar que os modelos de Jaccarino e Low-Shirley, que se baseiam num momento local estático, fitam bem o comportamento anômalo do Mn em Fe e, no entanto, as experiências de espalhamento de neutrons mostram que o Mn, como impureza no Fe, não apresenta momento local.

I-3-3 Modelo de Transição

As desvantagens apontadas para os dois modelos precedentes, não existem no modelo de transição de Campbell e Gomes, que se preocupa com o mecanismo físico capaz de provocar o comportamento anômalo. Campbell atribui o comportamento anômalo dos campos hiperfinos nos elementos de transição à sensibilidade do momento local da impureza com a temperatura. A anomalia é explicada em termos de variação da grandeza do momento local da impureza em função da temperatura. Nos seus cálculos dos momentos atômicos locais das impurezas de transição 3d, 4d e 5d nos metais ferromagnéticos, (Fe, Co e Ni) Campbell e Gomes^{16,17} se basearam na descrição de Friedel¹⁸ das impurezas de transição em metais ferromagnéticos. Os resultados teóricos obtidos por Campbell e Gomes para o caso de impurezas de transição 3d em matriz de Fe, bem como os valores experimentais, obtidos por espalhamento de neutrons, são mostrados na figura I-5:

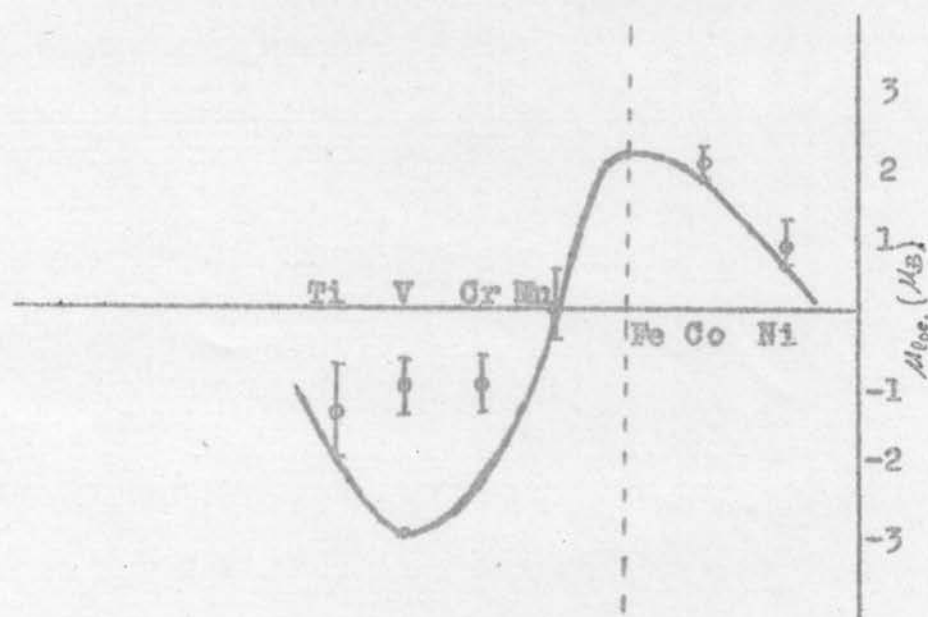


Figura I-5 Mostra o momento magnético local em μ_B como função da carga Z_1 para os elementos de transição 3d em Fe.

Desta figura nota-se que, indo da direita para a esquerda através da série dos metais de transição 3d, inicialmente o momento magnético local da impureza cresce até um valor máximo, tornando-se abruptamente negativo por volta do Mn e cai novamente a zero para Z_1 maior do que 3. Esta mudança de sinal do momento local é ainda mais abrupta no Co e Ni.

A rápida mudança do momento magnético local da impureza se reflete por uma delocalização do mesmo, uma queda no campo hiperfino e um pico na resistividade residual. Este pico na resistividade residual é devido ao forte espalhamento inelástico dos elétrons de condução pelos elétrons d da impureza, quando os estados d da impureza atingem o nível de Fermi.

Para entender o mecanismo gerador da variação do momento local das impurezas de transição no Fe, por exemplo, é necessário usar as regras de Hund e a descrição de Friedel¹⁸ das impurezas de transição em metais ferromagnéticos.

O crescimento do momento magnético local para as impurezas Ni, Co e Fe, que ocorre para matriz de ferro, é devi-

do ao esvaziamento dos estados 3d da impureza com spin negativo. Este fato é previsto pelas regras de Hund.

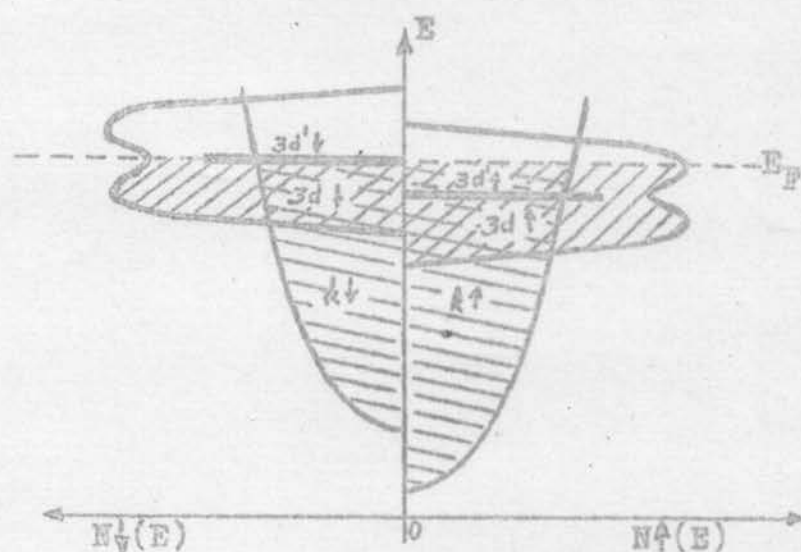


Figura 1-6 Mostra as semibandas dos elétrons de condução, as semibandas 3d da matriz de Fe e os estados 3d das impurezas, todas sob a ação de um campo magnético.

A repentina inversão de sinal do momento magnético local, na zona do Mn, é devida ao esvaziamento dos estados 3d da impureza, com 5 elétrons de spin positivo, ao atravessar o nível de Fermi da matriz.

Esta repentina alteração, provocada no número de ocupação dos estados 3d com spin positivo, determina uma mudança local da interação de intercâmbio entre os elétrons com spin positivo. Relembrando o modelo de Daniel e Friedel⁹, vemos que, em consequência disto, o poço de potencial da impureza, para os elétrons com spin negativo, aumenta e com ele cresce a ocupação dos estados 3d de spin negativo, até que a interação de intercâmbio média esteja localmente restabelecida. O posterior decréscimo do momento local é devido à progressiva depopulação dos estados 3d.

Sabendo como se comporta o momento magnético local da impureza frente a temperatura, pode-se analisar o comporta-

mento anômalo dos campos hiperfinos de certas impurezas. Para isto vamos considerar o caso de uma impureza com carga Z_1 muito próxima à carga crítica Z_c , por exemplo, Mn em Fe, onde $Z_c=1$. Ao ser elevada a temperatura a interação de intercâmbio sofre uma queda. Conseqüentemente diminui o deslocamento relativo das semibandas $3d$ de spin da matriz, bem como o dos estados $3d$ da impureza. Também para as semibandas de spin dos elétrons de condução o deslocamento relativo, provocado pela interação de intercâmbio, diminui. Mas isto pode, dependendo da densidade de estados relativa nas semibandas da matriz no nível de Fermi, ocasionar uma elevação ou abaixamento do nível de Fermi. No caso de matriz de Ni e Co sempre ocorre um abaixamento do nível de Fermi. Quando os estados $3d$ da impureza são bem localizados e estão situados bem próximos ao nível de Fermi, o momento magnético local da impureza pode ser extremamente sensível a este pequeno deslocamento do nível de Fermi. Por outro lado os efeitos de excitação térmica alargam o nível de Fermi, alterando o valor da carga crítica Z_c , contribuindo para o esvaziamento dos estados $3d$ da impureza. Por estas razões o momento magnético local da impureza com carga Z_1 próxima à carga crítica pode transpor a região de carga crítica e sofrer uma inversão de sinal, causando o comportamento anômalo frente à temperatura.

Campbell considerou inclusive dois estados, A e B, como mostrado na figura I-5, onde o estado A é energeticamente favorecido para baixas temperaturas e B favorecido para altas temperaturas.

Para as impurezas com Z_1 bem diferente da carga crítica Z_c este modelo não prevê comportamento anômalo frente à temperatura.

II CORRELAÇÕES ANGULARES DIRECIONAIS GAMA-GAMA

II-1 Descrição do Método

Estudos teóricos sistemáticos e completos das distribuições angulares de radiações nucleares podem ser encontradas nas referências 19, 20 e 21. Limitamo-nos aqui em resumir as idéias físicas básicas e os resultados essenciais necessários para a interpretação das nossas medidas.

A distribuição da probabilidade de emissão das radiações nucleares é em geral dependente do ângulo entre o spin do núcleo e a direção de emissão. Em outros termos a distribuição de probabilidade da radiação multipolar eletromagnética do núcleo segue a distribuição multipolar clássica. No entanto, se medirmos o fluxo da radiação em diversos pontos equidistantes de uma amostra radioativa com forma simétrica, veremos que este é isotrópico. Isto ainda é verdade no caso de polarizarmos a amostra, aplicando um campo magnético uniforme e deslocarmos o detetor sobre pontos equidistantes, num plano perpendicular ao campo. Nos planos, que contém a direção do campo, existe anisotropia, na qual é baseado o método da orientação nuclear. No primeiro caso a isotropia se verifica porque, na amostra, se tem um grande número de núcleos orientados aleatoriamente. No segundo caso temos isotropia por causa da simetria axial do campo magnético, que deixa aleatória esta orientação no plano que lhe é perpendicular. Para conseguirmos medir a anisotropia da radiação nuclear, é necessário obter um certo número de núcleos com a mesma orientação.

Em diversos núcleos excitados ocorrem duas transições sucessivas, acompanhadas pela emissão de dois fótons, γ_1 e γ_2 , havendo em geral uma correlação angular direcional entre

os dois fótons.

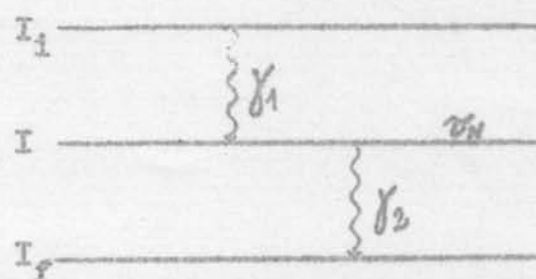


Figura II-1 Esquema de níveis nucleares e transições.

Então, usando detetores, um fixo e outro móvel, detetamos seletivamente o γ_1 no primeiro e o γ_2 no segundo. Acelerando os dois detetores a um circuito eletrônico de coincidências, com um tempo de resolução τ_R adequado, podemos contar o número de coincidências (pares de fótons emitidos pelo mesmo núcleo) como função do ângulo entre os dois detetores. A distribuição obtida é quase sempre anisotrópica, mostrando que existe uma direção preferencial para o segundo fóton em relação à direção do primeiro. Existe anisotropia, neste caso, por-

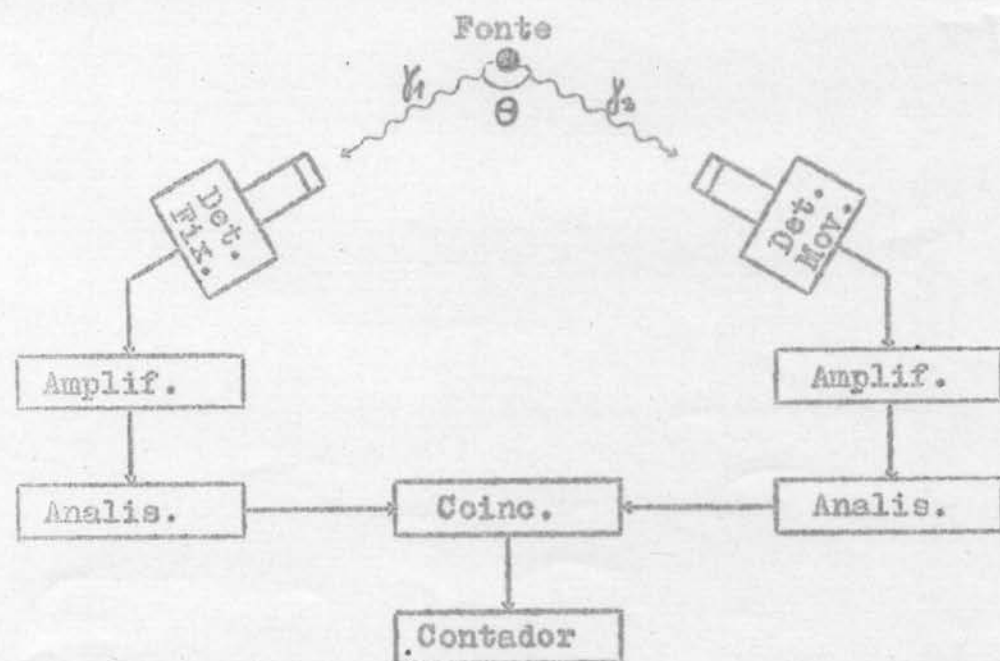


Figura II-2 Esquema básico de uma experiência de Correlação Angular Direcional.

que o circuito eletrônico seleciona, de todos os fótons detectados, apenas os pares emitidos pelo mesmo núcleo. O que se observa é a distribuição angular da probabilidade de emissão do segundo fóton em relação à direção do primeiro.

Pode-se derivar a função, que descreve a distribuição angular dos fótons, teoricamente, mediante o uso de operadores de momentum angular e álgebra de Racah. Esta função recebe o nome de Função Correlação Angular Direcional Gama-Gama.

Se, durante a vida média do estado intermediário I, nenhuma perturbação agir sobre o núcleo, a função correlação angular direcional será dada por:

$$W(\theta) = 1 + \sum_{k=2}^{k_{\max.}} b_k \cos(k\theta)$$

onde $k = 2, 4, 6, \dots, 2I$. Na prática $k_{\max.} = 4$. Neste caso o tempo de correlação dos dois gamas é infinito.

Se, durante a vida média do estado intermediário, existe apenas campo magnético estático (\vec{H}), atuando sobre um núcleo, este precessionará em torno da direção do campo com a frequência de Larmor:

$$\omega_L = -\frac{\vec{\mu} \cdot \vec{H}}{I \hbar} = -g \mu_N \frac{H}{\hbar}$$

onde g é o fator g nuclear, μ_N é o magneton nuclear e H é a intensidade do campo magnético. Por isso, se o campo magnético for perpendicular ao plano dos detectores e atuar durante um tempo t , o núcleo precessionará de um ângulo $\Delta\theta = \omega_L t$ e a função Correlação Angular Direcional Perturbada terá por expressão:

$$W(\theta, \vec{H}, t) = 1 + \sum_{k=2}^{k_{\max.}} b_k \cos k(\theta \mp \omega_L t) e^{-t/\tau_c}$$

Quando $\tau_R < \tau_N$ é possível medir a anisotropia da $W(\theta, \vec{H}, t)$ como função do tempo t . Neste caso o spin nuclear gira uma ou mais vezes em torno do campo e mede-se a frequência desta precessão diretamente. Este método é o da Correlação Angular Perturbada Diferencial. Porém, quando $\tau_R < 1$ ns só é possível a medida da Correlação Angular Perturbada Integral, sendo neste caso em geral $\tau_R \gg \tau_N$. Por isso integramos a $W(\theta, \vec{H}, t)$ sobre o tempo, obtendo:

$$\begin{aligned}
 W(\theta, \vec{H}, t \rightarrow \infty) &= \frac{1}{\tau_N} \int_{-\infty}^{+\infty} \sum_{k(\text{par})} b_k \cos k(\theta - \omega_L t) e^{-t/\tau_N} dt \\
 &= \sum_{k(\text{par})} \frac{b_k}{[1 + (k\omega_L \tau_N)^2]^{1/2}} \cos k(\theta - \Delta\theta_k)
 \end{aligned}$$

onde $\Delta\theta_k = \frac{1}{k} \text{arc. tg.}(k\omega_L \tau_N)$.

Esta expressão mostra que o campo magnético não altera a forma da função correlação angular mas apenas a atenua de um fator:

$$[1 + (k\omega_L \tau_N)^2]^{-1/2}$$

e a defasa de um ângulo $\Delta\theta_k$ em relação à não perturbada. Assim, medindo $\Delta\theta_k$ da correlação angular, é possível determinar $\omega_L \tau_N$ e, conhecendo τ_N e g , podemos obter H a partir da fórmula de precessão de Larmor,

$$\omega_L = -\frac{\vec{\mu} \cdot \vec{H}}{\hbar}$$

Para o caso de τ_N pequeno, a técnica mais usada, na determinação experimental de $\Delta\theta_k$, consiste em medir o número de coincidências com campo magnético para cima e para baixo, alternadamente, com o detector móvel na posição, onde $\frac{dW(\theta, H)}{d\theta}$

é máxima. Com os valores obtidos calcula-se a Razão Integral R da Correlação Angular:

$$R = \frac{W(\theta, +H) - W(\theta, -H)}{1/2[W(\theta, +H) + W(\theta, -H)]} \quad \text{que equivale a}$$

$$= \frac{4b_2\omega_L\tau_N}{\left[1 + (2\omega_L\tau_N)^2\right] \left[1 - \frac{b_4}{1 + (4\omega_L\tau_N)^2}\right]}$$

donde se pode extrair $\omega_L\tau_N$ a partir do valor medido para R, conhecidos os valores de b_2 e b_4 . Este método tem a vantagem de prescindir da correção de ângulo sólido, pois que esta aparece igualmente no numerador e denominador.

Quando o elemento radioativo estiver situado numa rede ferromagnética, é necessário levar em conta a atenuação, na anisotropia da correlação angular, introduzida pelos campos magnéticos aleatórios dos domínios ferromagnéticos. Esta atenuação é expressa como fator de perturbação na função correlação angular integral:

$$W(\theta) = 1 + \sum_{k=2}^{k_{\max}} \bar{b}_k \cos(k\theta) \quad \text{com } k = 2, 4, \dots$$

sendo $\bar{b}_k = b_k G_k(t=\infty)$, onde G_k é o fator de perturbação que tem por expressão:

$$G_k(t=\infty) = \frac{1}{2k+1} \sum_{m=-k}^{+k} \frac{1}{1 + (m\omega_L\tau_N)^2}$$

Para $k = 2$ temos:

$$G_2(t=\infty) = \frac{1}{5} \left[1 + \frac{2}{1 + (\omega_L\tau_N)^2} + \frac{2}{1 + (2\omega_L\tau_N)^2} \right]$$

Comparação da Correlação Angular Perturbada com outras técnicas

Para medir o efeito da perturbação causada nos núcleos atômicos por campos magnéticos ou elétricos são empregadas, além da correlação angular perturbada várias outras técnicas. Entre estas a Ressonância Magnética Nuclear (RMN), que se baseia na absorção ressonante de radiofrequência, detetando a frequência da precessão de Larmor dos núcleos, bem como o Efeito Mössbauer, que se baseia na absorção ressonante de radiação gama, detetando o deslocamento dos níveis nucleares.

Nenhuma das três técnicas oferece vantagens generalizadas, existe entre elas, isto sim, uma complementaridade, que delimita o campo de pesquisa em regiões apropriadas muitas vezes à apenas uma das técnicas. A RMN possibilita precisão de até $10^{-5}\%$ na determinação da frequência, ao passo que a CAP convencional apenas permite 1%. Porém, a RMN só se aplica para níveis nucleares estáveis ou de vida longa, ao passo que a CAP é aplicável para tempos de vida de 10^{-5} a 10^{-12} segundos. Neste sentido as duas técnicas são complementares. Por outro lado o Efeito Mössbauer é com vezes menos sensível do que a CAP, mas, mesmo assim, goza vantagem na região de vida média de 1 ns, onde não mais é possível usar a correlação angular perturbada diferencial. Para tempos de meia vida bastante menores de 1 ns o Efeito Mössbauer é insuficientemente sensível e nesta região é usada, com vantagem a correlação angular integral. Para estados intermediários de vida longa, acima de 10 ns o Efeito Mössbauer compete em igualdade com a correlação angular diferencial, quando o seu uso é possível.

A RMN se aplica com dificuldade a corpos metálicos por causa da atenuação do sinal de radiofrequência pelo efeito pelicular. Além disto a RMN tem a desvantagem de perturbar a amostra através dos campos de radiofrequência. Pelo contrário,

a CAP pode ser aplicada a cristais metálicos grandes sem nenhum problema.

Na técnica do Efeito Mössbauer há necessidade de um número relativamente grande de núcleos para conseguir uma secção de choque razoável. A CAP, no entanto, é muito sensível e permite a realização de experiências com até 10^8 núcleos. Esta vantagem da CAP sobre o Efeito Mössbauer é essencial no estudo das interações hiperfinas em ligas diluídas nas quais, normalmente, é imprescindível uma pequena concentração, para garantir que os vizinhos mais próximos da impureza sejam somente átomos da matriz. Mais outra importante desvantagem do Efeito Mössbauer sobre a CAP é de ser limitado nas energias da radiação nuclear, devido ao rápido decrescimento da secção de choque e da condição "sem recuo" que permite no máximo 150 KeV para a energia dos fótons. Na CAP as energias podem ser de 10 KeV até vários MeV. O Efeito Mössbauer ainda tem problemas em altas temperaturas, decorrentes do alargamento das linhas de ressonância e diminuição do efeito. A CAP não tem nenhum problema em altas temperaturas. O Efeito Mössbauer conta com vantagens nas situações de interações hiperfinas magnéticas e elétricas combinadas, pois distingue muito bem os espectros relativos às duas interações. Outra vantagem do Efeito Mössbauer sobre a CAP é de não se basear numa cascata de transições nucleares.

II-2 DESCRIÇÃO DOS EQUIPAMENTOS

II-2-1 Sistema eletrônico

As medidas de Campos Hiperfinos do ^{207}Pb em matriz de ferro foram realizadas pelo método da correlação angular perturbada integral. Para isto foi utilizada a cascata 1064-570 KeV do ^{207}Pb . O estado intermediário desta cascata tem apenas 0,11 ns de meia vida, o que não permite o uso do método diferencial.

A descrição em blocos do sistema de coincidências, campo magnético, controle de temperatura e vácuo é mostrado na figura II-3.

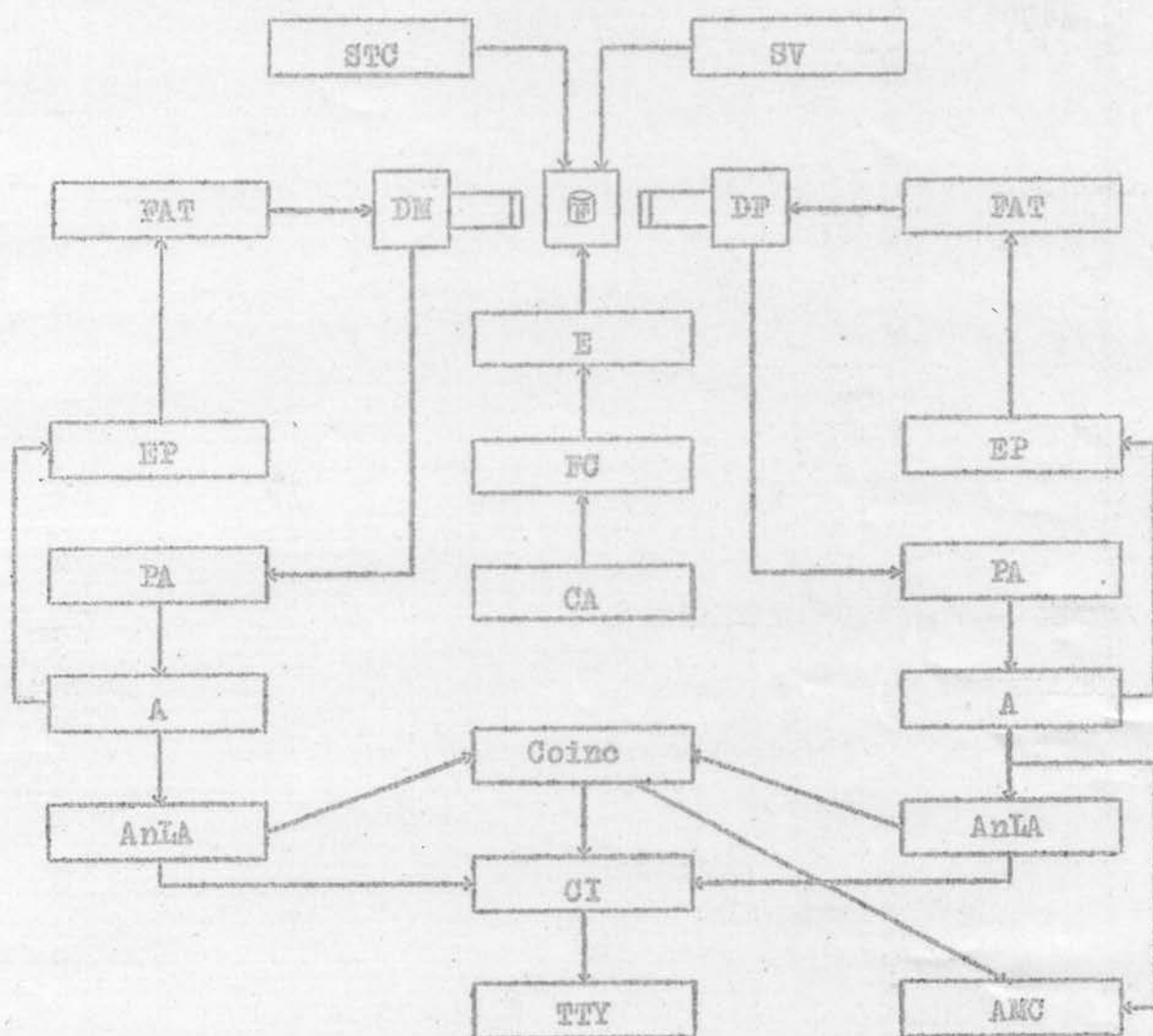


Figura II-3 Diagrama em bloco do sistema de coincidências, campo magnético, temperatura e vácuo.

STC = Sistema de temperatura controlada.
 SV = Sistema de vácuo.
 FAT = Fonte de alta tensão.
 DM = Detetor Móvel.
 DF = Detetor Fixo.
 F = Fonte radioativa.
 EP = Estabilizador de pico.
 E = Eletroímã
 FC = Fonte de Corrente de Eletroímã.

PA = Pré-Amplificador.
 A = Amplificador.
 CA = Comando Automático.
 AnLA = Analisador c/Linha de Atraso.
 Coinc = Circuito de coincidências.
 CI = Contador de Impulsos.
 TTY = Teletipo.
 AMC = Analisador Multi-Canal.

O detetor fixo é composto por um cristal de NaI(Tl) com 3,8 cm. de diâmetro e 2,54 cm. de comprimento e uma fotomultiplicadora RCA 6655-A de 10 estágios, acoplados através de uma guia de luz de Lucite com 16 centímetros de comprimento e 5 cm. de diâmetro. O detetor móvel é composto de um cristal de NaI(Tl) com 3,8 cm. de diâmetro e 5,08 cm. de comprimento e uma fotomultiplicadora RCA 6810-A de 13 estágios, acoplados também através de uma guia de luz de Lucite com 16 cm. de comprimento. Ambos os detetores ficaram no interior de carcaças de Fe herméticas e protegidos por cones de chumbo. O detetor fixo foi preparado para detetar os fótons de 570 KeV e o móvel os de 1064 KeV.

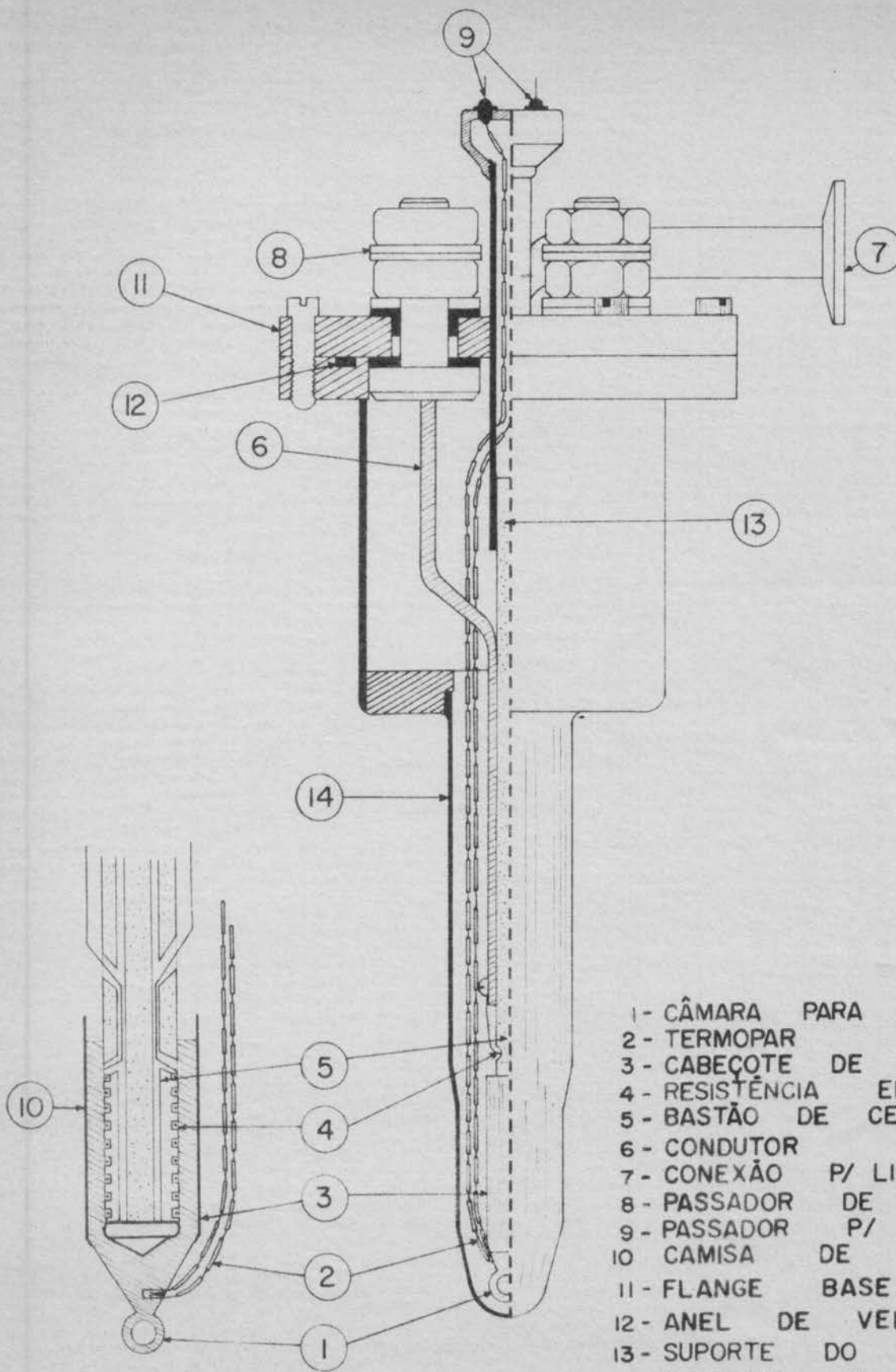
As guias de luz diminuem a resolução e a eficiência do detetor, porém, são necessárias para afastar as fotomultiplicadoras do campo magnético. Mesmo assim é necessária uma blindagem contra campos magnéticos difusos por meio de folhas de alta permeabilidade. Para evitar possíveis distorções nas medidas, foi feito um completo levantamento de campos magnéticos difusos, providenciando-se em torná-los insignificantes.

O circuito de coincidências consistiu num sistema convencional "zero cross-over" com estabilizadores de pico nas fontes de alta tensão. O contador eletrônico de impulsos compreendendo quatro monocanais e o sistema de comando automático são da Digital Products. O sistema de comando automático comanda cada 6 minutos e 20 segundos de contagem, o bloqueio dos contadores, impressão das contagens acumuladas em cada monocanal através de teletipo, o "reset", a inversão de direção do campo magnético e o reinício das contagens. O analisador multicanal, com 256 canais, é o modelo NS-601 da NORTHERN. O campo magnético foi gerado por meio de um eletroímã convencional da Spectromagnetic Industries, refrigerado a água e acompanhado de fonte de corrente, munida com um servo mecanismo para inversão auto-

mática do campo magnético.

II-2-2 Sistema de aquecimento e Controle Automático de Temperatura da amostra radioativa.

Para o controle térmico da amostra de ^{207}Pb em Fe até 1073°K , foi utilizado o sistema construído por Delmar E. Brandão, descrito em detalhes na referência 22. Fazemos aqui somente um breve resumo. Na figura II-4 está representada a câmara contendo o cabeçote suporte da amostra radioativa, resistência de aquecimento e termopar. Associados à câmara estão, uma bomba iônica com capacidade de 1 litro por segundo e o sistema de alimentação da resistência de aquecimento e controle de temperatura. A bomba iônica está incorporada numa linha de vácuo que, mediante um sistema de válvulas, permite a conexão de bomba de pré-vácuo ou detector de vazamentos. O vácuo de trabalho foi da ordem de 10^{-5} milímetros de mercúrio. O controle de temperatura funciona através de um circuito de realimentação a partir da tensão de erro entre o termopar Cromel-Alumel da câmara, referenciado pela temperatura do gelo fundente, e uma tensão de referência pré-fixada. A tensão de referência é conseguida por meio de uma bateria de mercúrio de 1,35 volts, de grande estabilidade e um divisor de tensão. Tanto a bateria como o divisor de tensão encontram-se isolados das flutuações térmicas ambientais. O funcionamento da realimentação é baseado no seguinte processo: a tensão de erro, que é flutuante, positiva ou negativa, passa por um vibrador eletrônico (chopper) a 600 Hz e é amplificada num circuito amplificador de potência, que pode entregar ao sistema aquecedor até 17,5 watts através de um transformador de alta isolamento. Assim fica desacoplado qualquer nível D.C. no termopar da câmara. O controle de temperatura conseguido com este sistema é melhor do que $\pm 0,3\%$, sendo que a



- 1 - CÂMARA PARA FONTES
- 2 - TERMOPAR
- 3 - CABEÇOTE DE AQUECIMENTO
- 4 - RESISTÊNCIA ELÉTRICA
- 5 - BASTÃO DE CERÂMICA
- 6 - CONDUTOR
- 7 - CONEXÃO P/ LINHA DE VÁCUO
- 8 - PASSADOR DE CORRENTE
- 9 - PASSADOR P/ TERMOPAR
- 10 - CAMISA DE AÇO INOX
- 11 - FLANGE BASE
- 12 - ANEL DE VEDAMENTO
- 13 - SUPORTE DO BASTÃO
- 14 - PONTEIRA DE PIREX

DETALHE DO CABEÇOTE DE AQUECIMENTO

FIGURA II 4 CAMARA DE AQUECIMENTO PARA FONTES RADIOATIVAS

tensão de erro é observável continuamente num microvoltímetro (Hewlett-Packard 419A DC Null Voltmeter).

II-2-3 Sistema de refrigeração da amostra radioativa de ^{207}Pb em Fe.

Consiste o sistema numa barra cilíndrica de cobre puro com um Joelho, centrada no interior de uma carcaça de aço inox por meio de suportes de alto isolamento térmico. Veja-se figura II-5. Na extremidade da parte horizontal a carcaça possui uma peça desmontável com ponteira moldada em pirox, que envolve o cabeçote de cobre, acoplado à barra por rosca, provido de um termopar ferro-constantan e que serve de suporte para a amostra radioativa. A carcaça possui uma conexão para linha de pré-vácuo e a parte inferior contém Zeolite. Feito o pré-vácuo e mergulhada a parte inferior em nitrogênio líquido, o Zeolite funciona como bomba de adsorção. Para o termopar, que emerge da carcaça através de passadores de vidro, a temperatura de referência é a do próprio nitrogênio líquido, de tal forma que a tensão, observada na extremidade do mesmo, é devida unicamente à diferença de temperatura do cabeçote e do nitrogênio líquido. Assim o termopar serve ao mesmo tempo como indicador de vácuo, já que o isolamento térmico depende de vácuo. As leituras mostraram que esta diferença de temperatura é de 10,5 graus centígrados. Portanto a amostra fica a $87,5^{\circ}\text{K}$.

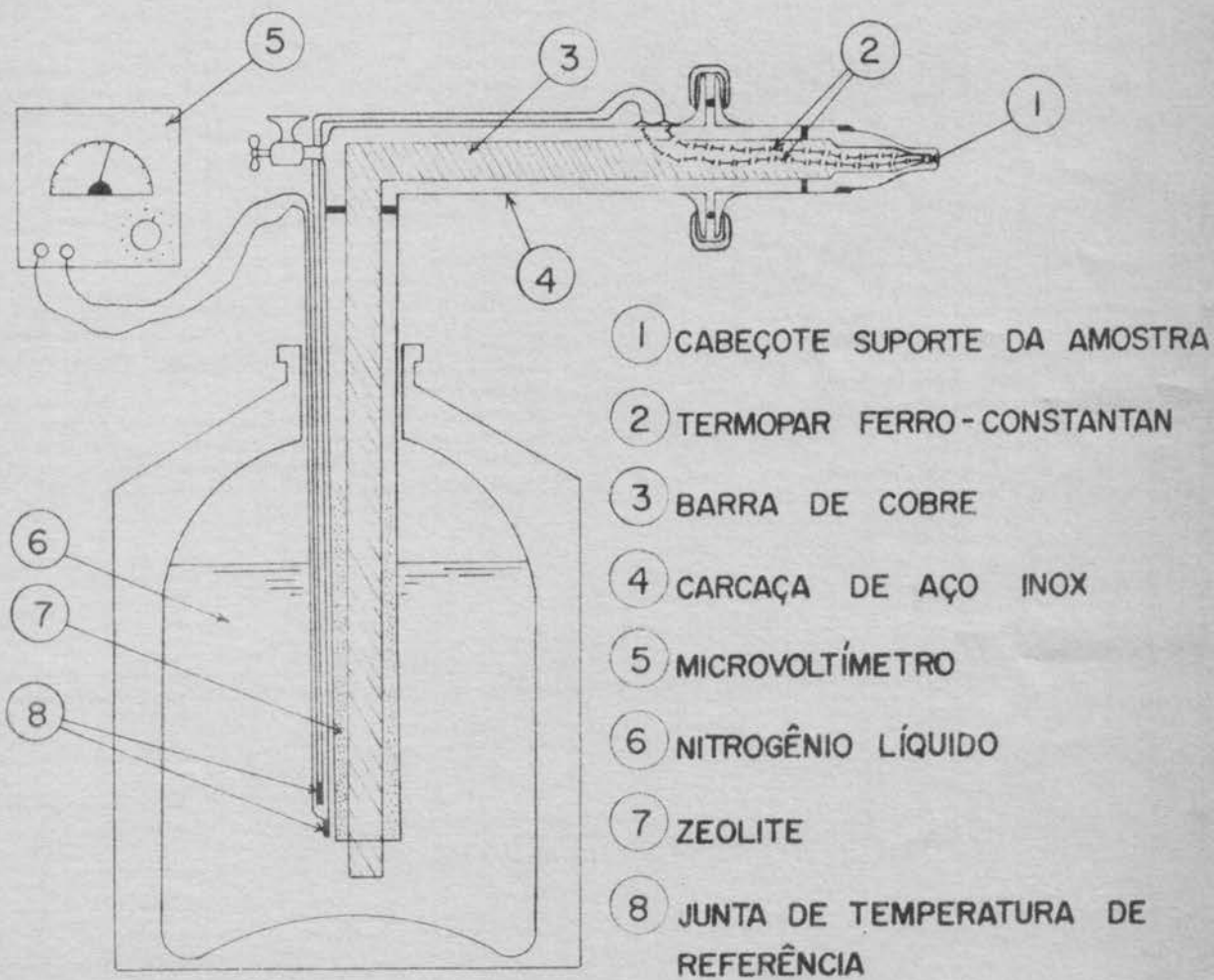


FIGURA II-5 SISTEMA DE REFRIGERAÇÃO DA AMOSTRA DE ^{207}Pb EM Fe

III- MEASURAS DOS CAMPOS HIPERFINOS MAGNÉTICOS NO ^{207}Pb EM FERRO E RESULTADOS.

III- 1 Introdução

Recentemente G.C.Pramila et al.²³ mediram o campo hiperfino magnético no ^{207}Pb em Fe na temperatura ambiente, obtendo 262 ± 20 kGauss. A técnica usada no preparo da amostra foi a da eletrodeposição do ^{207}Bi sobre arame de Fe e posterior difusão térmica. O ^{207}Bi , com meia vida de 30 anos, decai para o ^{207}Pb por captura de elétron.

Mais recentemente ainda J.D. Bowman e F.C.Zawislak²⁴ voltaram a medir o campo hiperfino magnético na mesma liga, usando, porém, uma técnica diferente no preparo da amostra. Os autores da referência 24 misturaram solução de ácido nítrico e ^{207}Bi com pó de Fe ou Co e ou Ni e, após redução e prensagem, submeteram a amostra a um recozimento controlado a 800°C até que a difusão atingiu o equilíbrio. Isto foi observado através de medidas periódicas dos campos hiperfinos em função do tempo de "annealing". O valor do campo magnético hiperfino obtido para o ^{207}Pb em matriz de Fe, neste caso, foi de 660 ± 45 kG, superior ao anterior por um fator maior que dois. A explicação, para esta discrepância, sugerida pelos autores da referência 24, é de que Pramila et al.²³ não saturaram o recozimento.

O estudo dos campos hiperfinos magnéticos no Pb é de interesse para a Física Nuclear, porque permite a determinação do fator g de vários estados de vida curta dos isótopos do Pb e desta forma orienta os cálculos de estrutura nuclear nesta região da série periódica. Este estudo também é importante para a Física de Estado Sólido, uma vez que ocorre uma inversão do sinal dos campos hiperfinos nesta região (entre Tl e Pb).

No presente trabalho é feito um estudo dos campos hiperfinos magnéticos, na amostra de Pb \underline{Fe} , como função da temperatura, usando, no preparo da amostra, a técnica da referência 24.

III-2 Preparo da Amostra de ^{207}Pb em Ferro.

O ^{207}Bi apresenta o seguinte esquema de decaimento:

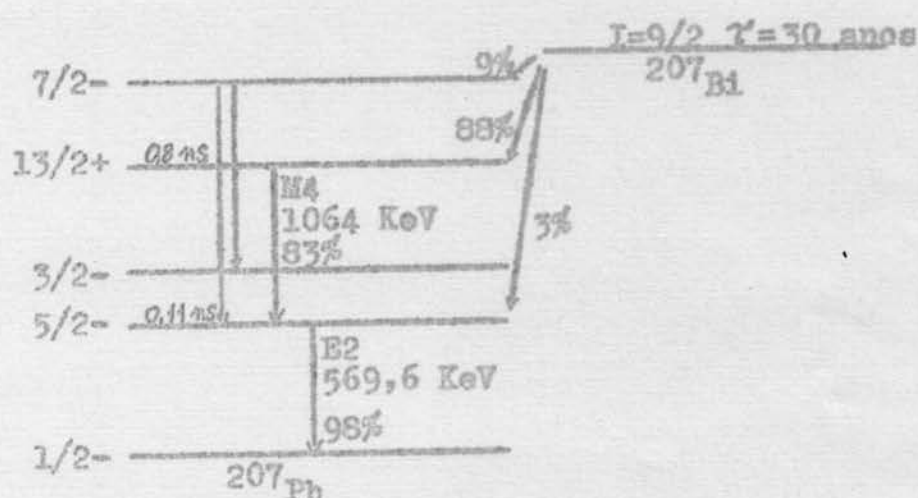


Figura III-1 Esquema de decaimento do ^{207}Bi .

O processo de preparação da liga diluída de ^{207}Bi em Fe foi o seguinte: Inicialmente foi misturada solução cloídrica de ^{207}Bi , livre de portador, com 300 miligramas de Fe puro (99,99%) em pó, até ser atingida uma atividade de aproximadamente 5 μC . Passado um minuto, a mistura foi lavada com água destilada e submetida à secagem por luz infravermelha. Depois de aproximadamente quatro horas de secagem a mistura foi colocada em atmosfera de H_2 a pressão de 0,7 atmosfera e elevada sua temperatura, inicialmente, a 400°C . Após 2 horas a temperatura foi elevada a 600°C durante mais 2 horas, fazendo-se várias substituições do H_2 durante o processo. Após este período o pó foi resfriado e introduzido numa bucha de aço tungstênio com 3,1 mm. de diâmetro e prensada, mediante pinos de aço

especial a $\sim 2 \cdot 10^4$ atmosferas. Assim a amostra ficou com uma forma cilíndrica com 3,1 mm. de diâmetro e 5 mm. de altura. Nesta situação foi medido o campo interno no ^{207}Pb e constatou-se que o mesmo era da ordem de 400 kGauss. Com duas horas de recozimento a 800°C uma nova medida do campo interno já atingiu um valor da ordem de 700 kGauss. Com mais 4 horas de recozimento a 800°C , totalizando 6 horas, o campo ficou em 700 kGauss, donde se vê que foi atingido um estado de equilíbrio da difusão do Bi em Fe.

Após estes processos, a amostra foi atacada com ácido para remover a atividade não difundida da superfície e verificou-se que, praticamente, não havia acúmulo de Bi na superfície. Continuando em novos e sucessivos ataques, pesando-se a perda em massa e medindo-se a perda em atividade, verificou-se que a distribuição do ^{207}Bi era homogênea. Apresentando ainda uma atividade da ordem de $4/\mu\text{C}$, a fonte estava finalmente pronta e foi encapsulada na câmara de temperatura, descrita no item II-2-2 e, centrada no eletroímã para as medidas propriamente de interesse.

III-3 Medida da Correlação Angular da Cascata 1064-570 KeV do ^{207}Pb .

Selecionando o pico de 570 KeV na janela do analisador dos pulsos provenientes do detetor fixo e o pico de 1064 KeV na janela do analisador do detetor móvel, como é mostrado na figura III-2, foi feito inicialmente um levantamento do número de coincidências como função da resolução em tempo do circuito de coincidências, obtendo-se a curva mostrada na figura III-3

A partir da curva obtida na figura III-3 foi escolhido o ponto de trabalho = 70 ns.

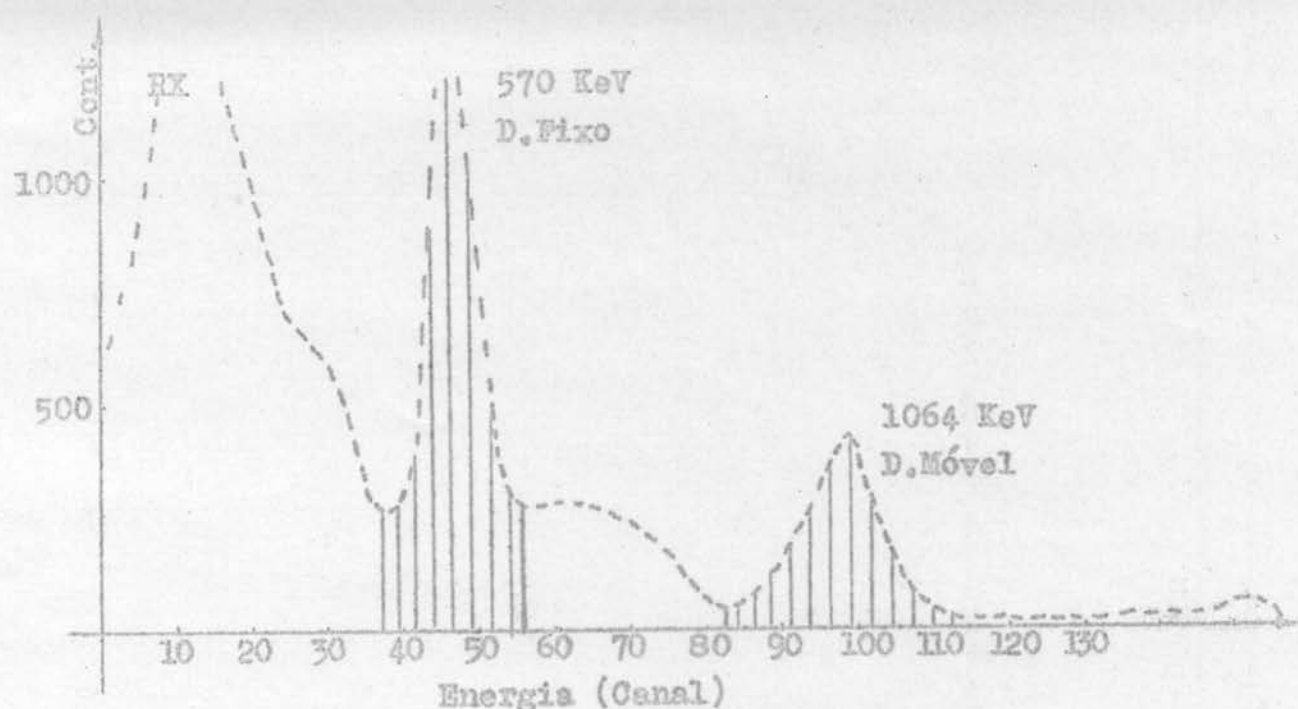


Figura III-2 Espectro de energias do ^{207}Pb em escala linear, mostrando as faixas de energia selecionadas através dos discriminadores.

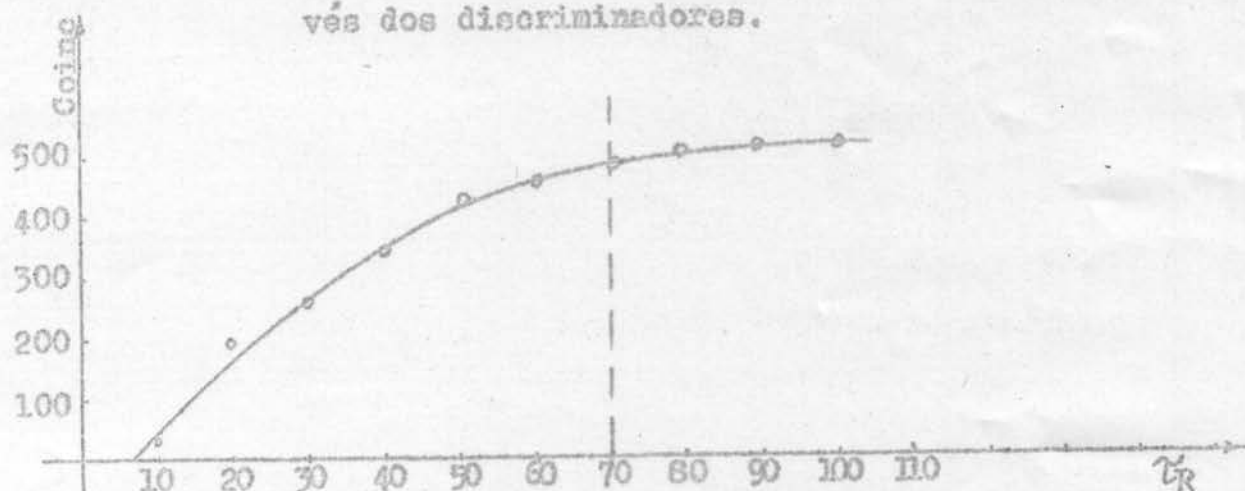


Figura III-3 Número de contagens de coincidências como função da resolução em tempo do circuito de coincidências.

Foram feitas contagens de coincidências a 90° , 105° , 120° , 135° , 150° e 165° . O ponto de 180° foi evitado por causa do possível espalhamento Compton para trás, de um detetor para dentro do outro, bem como a contribuição do pico de aniquilação de pósitrons.

As contagens de pulsos entregues pelo analisador de cada pico de energia foram submetidas a uma análise estatística.

tica da distribuição de desvios, por computador, para verificar a estabilidade do equipamento. Feitas as correções de centragem, coincidências acidentais e normalização, porém, não a correção de ângulo sólido, que provém da geometria dos detetores e é prescindível no método em uso, foi feito o ajuste da função correlação angular teórica sobre os pontos experimentais, usando o método de mínimos quadrados. Foi feita igualmente a medida da correlação angular, incluindo, na janela do discriminador de pulsos provindos de detetor móvel, uma parte do pico de Efeito Compton das gamas de 1064 KeV. Os parâmetros, resultantes da análise dos dados, para os dois casos, estão na tabela III-1.

	S/Compton	C/Compton
A_2	$0,1661 \pm 0,00415$	$0,1587 \pm 0,0038$
A_4	$-0,0102 \pm 0,00577$	$-0,0139 \pm 0,0050$

Tabela III-1 Parâmetros das Correlações Angulares sem Compton e com Compton não corrigidos de ângulo sólido, sendo:

$$A_2 = \frac{4[b_2 - (4/7)b_4]}{3 - b_2 - (1/5)b_4} \quad \text{e} \quad A_4 = \frac{(64/35)b_4}{1 - (1/3)b_2 + (1/15)b_4}$$

Na figura III-4 estão representados os pontos experimentais das medidas de correlações angulares sem Compton e com Compton. As curvas cheias representam o ajuste da função teórica aos dados experimentais.

III-4 Medida da Razão Integral "R" da Correlação Angular como função da Temperatura.

O espectro de energias do ^{207}Pb é simples e a diferença entre os parâmetros da correlação angular, obtidos sem

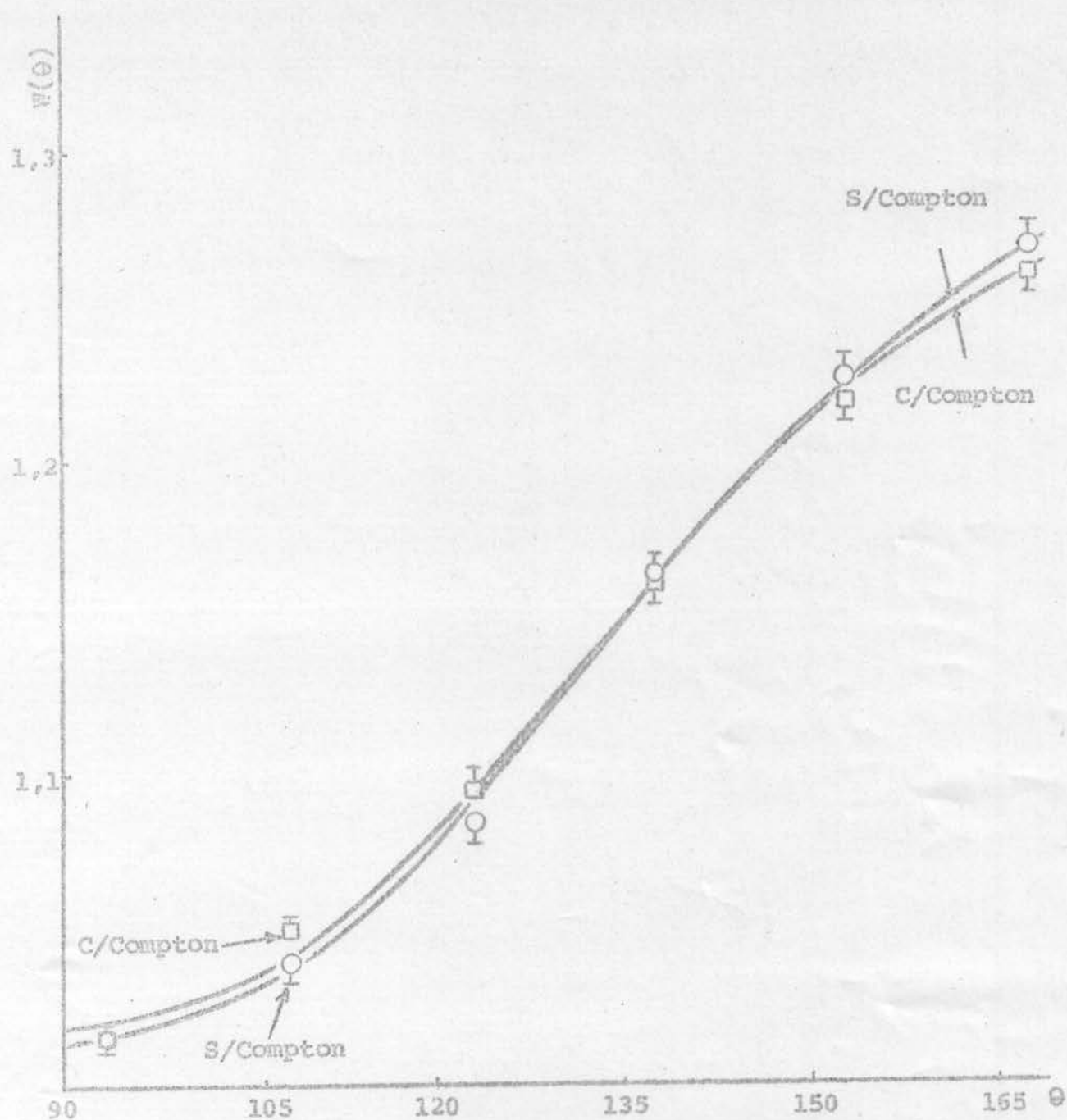


Figura III-4 Pontos experimentais sem e com Compton. As curvas cheias representam o ajuste da função teórica aos pontos experimentais.

e com efeito compton, é pequena. Isto permite a inclusão de uma parte do pico de efeito compton dos fótons de 1064 KeV, com ganho na estatística de coincidências. Por outro lado, sendo o parâmetro da correlação angular b_4 muito pequeno em relação ao parâmetro b_2 , pode-se escolher, por aproximação, como ângulo de máximo valor para $\frac{dw(\theta, H)}{d\theta}$ o de 135° .

Inicialmente foi feito um levantamento de campo saturante, medindo a razão integral R para crescentes campos magnéticos externos aplicados. O resultado é mostrado na figura III-5.

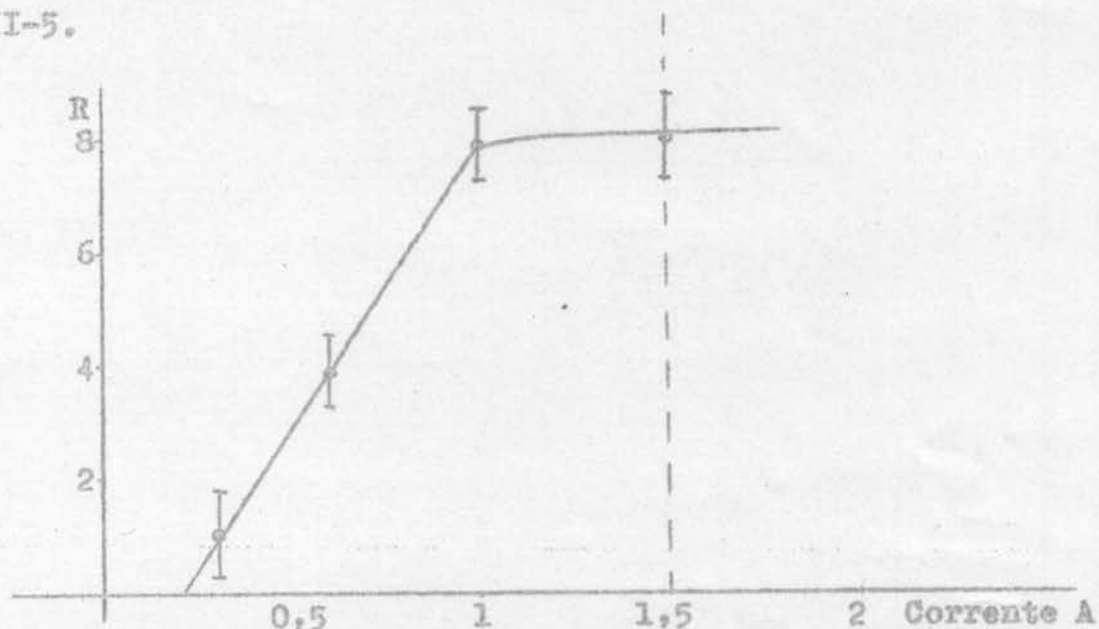


Figura III-5 Razão Integral da correlação angular como função da Corrente no Eletroímã.

A partir desta curva foi escolhido, como ponto de trabalho, o campo correspondente a 1,5 ampères, que fica na região de saturação e garante o alinhamento perfeito de todos os domínios ferromagnéticos. Uma medida posterior de campo magnético, feita com dois instrumentos diferentes, revelou que, para corrente de 1,5 A, corresponde um campo de 6,7 kGauss. A distância entre os polos do eletroímã foi de 13,2 milímetros.

Concluídos todos os preparativos, foi ligado o campo magnético para 6,7 kGauss e o sistema de controle de temperatura, descrito no item II-2-2. Em primeiro lugar foi medida a razão integral R como função da temperatura, na escala crescente, com erros estatísticos consideráveis. Depois que isto permitiu saber o andamento geral da curva, a experiência foi repetida, com erros estatísticos bastante reduzidos, numa sequência adequada de pontos experimentais, também na escala crescente de temperatura. Verificou-se, nesta segunda experiên

cia a repetição da curva obtida na primeira, dentro dos erros estatísticos.

A duração média de medida de cada ponto experimental era de 4 dias efetivos. No caso de ^{207}Pb não há, normalmente, problemas de limitação de tempo, pois que a vida média da fonte é de 30 anos. Houve, porém, algumas interrupções devidas à vida limitada da resistência de aquecimento e controle de temperatura.

Imediatamente, após a conclusão da medida no ponto de mais alta temperatura, foi repetido o ponto na temperatura ambiente, obtendo-se um valor que concordou com a medida inicial. A razão deste teste é comprovar a estabilidade da amostra radioativa. Como, porém, não houve discrepância experimental, pode-se concluir que nenhuma alteração irreversível de importância ocorreu durante as medidas. O processo sofrido pela amostra é termodinâmico.

Foi também testada, no final da experiência, a bateria usada na tensão de referência do sistema de controle de temperatura, não se verificando alteração sensível. A precisão de temperatura dos pontos experimentais é de 0,5%.

Como a curva de R em função da temperatura mostrasse anomalia já a temperaturas relativamente baixas, foi feita mais uma medida na temperatura do nitrogênio líquido. Para tanto foi preparado o dispositivo descrito no ítem III-2-3. O resultado desta medida mostrou que o campo magnético hiperfino, nesta temperatura, é cerca de 15% maior do que o medido na temperatura ambiente.

Em todas as medidas de R as contagens de pulsos de cada analisador discriminador foram submetidas à análise estatística de distribuição de desvios, por computador, afim de comprovar a estabilidade dos equipamentos.

Os resultados experimentais, obtidos para R, estão na tabela III-2. Na mesma tabela ainda figuram as temperaturas absolutas e reduzidas bem como os valores de $\omega_L \tau_N$ em radianos e os campos magnéticos hiperfinos H_{hf} em kGauss.

Temperatura °K		R	$\omega_L \tau_N (T/T_c)$ (rad.)	H_{hf} (kG.)
	T/T _c			
87,5	0,083	0,0809 ± 0,0029	0,1940 ± 0,0086	798 ± 58
303	0,281	0,0716 ± 0,0030	0,1689 ± 0,0085	695 ± 53
383	0,367	0,0710 ± 0,0030	0,1675 ± 0,0084	689 ± 53
483	0,464	0,0528 ± 0,0026	0,1211 ± 0,0070	498 ± 41
583	0,560	0,0422 ± 0,0028	0,0953 ± 0,0070	392 ± 37
683	0,655	0,0336 ± 0,0022	0,0752 ± 0,0055	309 ± 29
783	0,751	0,0228 ± 0,0025	0,0501 ± 0,0058	206 ± 27
883	0,847	0,0224 ± 0,0022	0,0492 ± 0,0052	202 ± 24
983	0,943	0,0104 ± 0,0034	0,0218 ± 0,0060	90 ± 33

Tabela III-2 Apresentando na 1ª e 2ª colunas as temperaturas absolutas e reduzidas, na 3ª coluna os valores de R, na 4ª os valores de $\omega_L \tau_N (T/T_c)$ e na 5ª os valores do campo hiperfino.

Nos cálculos das temperaturas reduzidas foi tomado para temperatura crítica de magnetização espontânea do Fe 1042°K. Para determinar $\omega_L \tau_N$ a partir dos valores de R e dos parâmetros b_2 e b_4 da correlação angular, foi utilizada a equação:

$$R = \frac{4b_2 \omega_L \tau_N}{\left[1 + (2\omega_L \tau_N)^2\right] \left[1 - \frac{b_4}{1 + (4\omega_L \tau_N)^2}\right]}$$

onde

$$b_2 = \frac{5\bar{b}_2}{1 + \frac{2}{1 + (\omega_L \tau_N)^2} + \frac{2}{1 + (2\omega_L \tau_N)^2}}$$

e por aproximação
$$\left[1 - \frac{b_4}{1 + (4\omega_L \tau_N)^2} \right] \approx 0$$

O campo local foi calculado a partir da definição:

$$\vec{H}_{loc.} = \vec{H}_0 + \vec{H}_D + \vec{H}_{Lor}$$

tendo-se obtido como resultado -7 kGauss.

Na figura III-6 estão representados os pontos experimentais de $\omega_L \tau_N (T/T_0)$ e a curva de magnetização espontânea experimental do ferro.

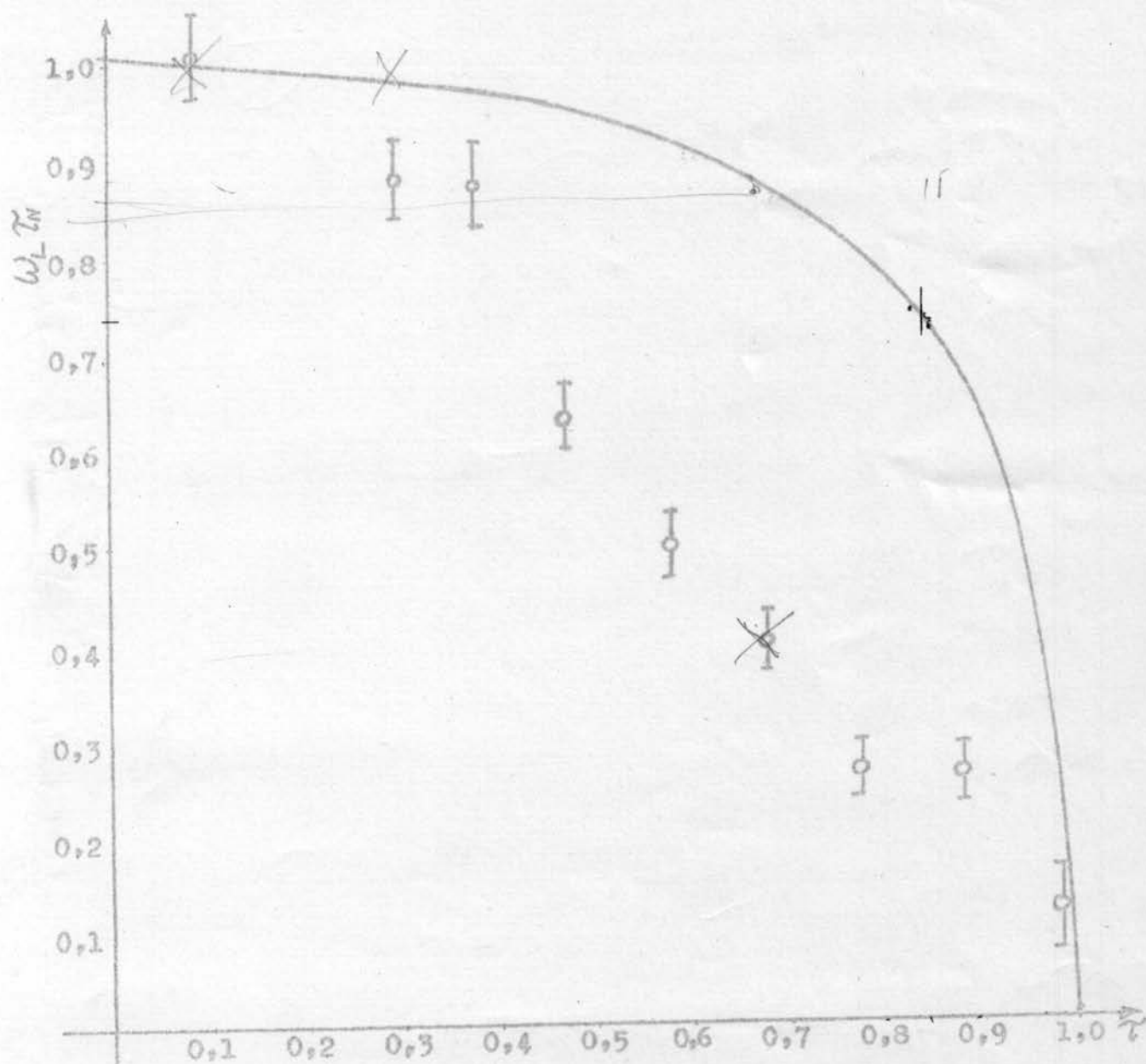


Figura III-6 Pontos experimentais de $\omega_L \tau_N (T/T_0)$ e a curva experimental de magnetização espontânea do ferro.

III-5 Discussão dos Resultados.

O ^{207}Pb é um dos elementos s-p da série VI do sistema periódico. É bastante improvável que haja momento magnético localizado no Pb difundido em Fe. A partir deste fato é também improvável que os modelos teóricos, descritos nos itens I-3-1, 2 e 3, se apliquem no caso. Lembramos que os modelos de Campo Molecular¹² e de Campo Molecular mais Contribuição dos Elétrons de Condução^{14,15} se baseiam na existência de um momento local na impureza, de valor independente da temperatura. O modelo de Transição^{16,17}, por sua vez, se baseia na dependência do momento magnético localizado da impureza com a temperatura.

Apenas para exemplificar e verificar a inadequação do modelo, vamos mostrar os resultados obtidos num ajuste do modelo de Campo Molecular de Jaccarino et al.¹² aos nossos dados experimentais. A expressão teórica para o campo hiperfino como função da temperatura, no modelo de campo molecular é:

$$H_{hf}(T/T_c) = H_{hf}(0) B_S \left(\zeta \frac{1}{T} \frac{\sigma_m(T/T_c)}{\sigma_m(0)} \right)$$

onde $\frac{\sigma_m(T/T_c)}{\sigma_m(0)}$ representa a magnetização reduzida espontânea segundo o modelo ferromagnético de Weiss, cujos valores, para vários spins, são obtidos a partir da tabela III-4. Mediante um programa de computador, que ajusta esta função teórica aos nossos pontos experimentais, pelo método de mínimos quadrados, foram obtidos os valores da tabela III-3. Veja-se Figura III-7.

Os valores do índice de ajuste, praticamente invariáveis, nos dizem da insensibilidade deste modelo ao spin para o presente caso de Pb em matriz de Fe. Por outro lado sabemos que o modelo em geral determina bastante bem o spin da impureza em outros casos. O nosso resultado, porém, não causa

T/T _c (°K)	Fe	Modelo de Weiss para spin						
		1/2	1	3/2	2	5/2	3	7/2
0,10	0,994	1,000	1,000	1,000	1,000	1,000	1,000	1,000
0,20	0,985	1,000	1,000	1,000	0,998	0,995	0,990	0,990
0,30	0,975	0,995	0,990	0,985	0,980	0,975	0,965	0,960
0,40	0,960	0,985	0,975	0,965	0,955	0,950	0,930	0,920
0,50	0,942	0,957	0,935	0,917	0,907	0,880	0,879	0,865
0,60	0,903	0,906	0,876	0,857	0,835	0,820	0,810	0,800
0,70	0,853	0,827	0,790	0,765	0,750	0,730	0,725	0,715
0,80	0,777	0,713	0,670	0,650	0,630	0,615	0,605	0,600
0,90	0,625	0,555	0,500	0,470	0,450	0,440	0,430	0,420
0,95	0,476	0,400	0,350	0,325	0,300	0,275	0,250	0,240
1,00	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000

Tabela III-4 Magnetização espontânea reduzida $\sigma(T)/\sigma(0)$ em função da temperatura reduzida T/T_c , para o modelo ferromagnético de Weiss e para o Fe.

Tabela extraída da referência 22.

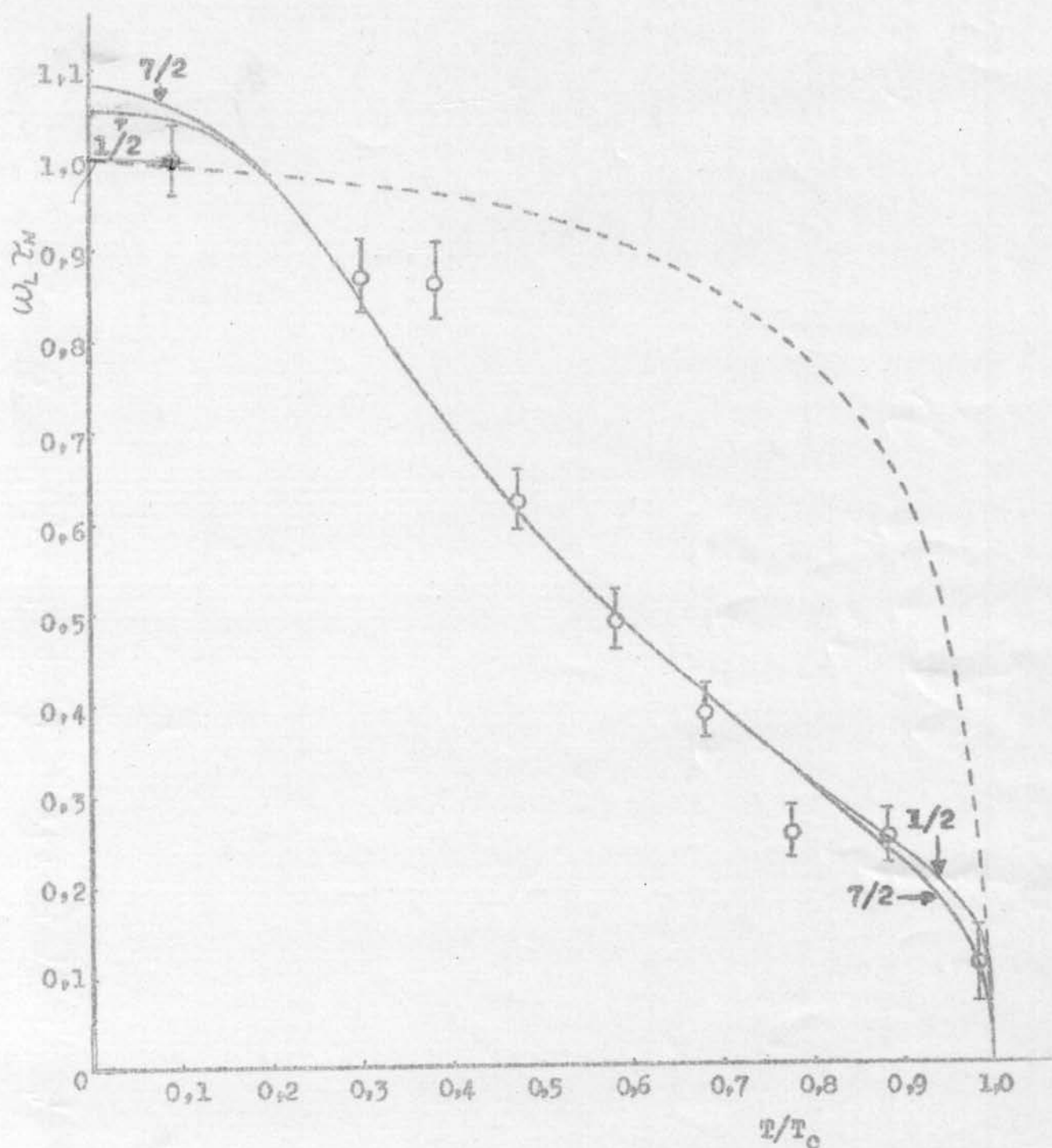


Figura III-7 Mostra os pontos experimentais para $\omega_L \gamma_N(T/T_0)$, a curva de magnetização espontânea reduzida do Fe e as curvas obtidas por ajuste do modelo de Campo Molecular para spin 1/2 e 7/2, tudo normalizado para a medida experimental na temperatura do nitrogênio líquido.

S	ξ	$\omega_L \tau_N(0)$	χ^2
1/2	0,319	0,2024 \pm 0,0001	3,910
1	0,499	0,2032 \pm 0,0001	3,593
3/2	0,614	0,2044 \pm 0,0004	3,528
2	0,695	0,2054 \pm 0,0004	3,540
5/2	0,763	0,2063 \pm 0,0013	3,474
3	0,808	0,2068 \pm 0,0004	3,611
7/2	0,846	0,2082 \pm 0,0004	3,679

Tabela III-3 Apresenta os valores do parâmetro ξ obtidos para spins de 1/2 até 7/2, $\omega_L \tau_N(0)$ e o índice de ajuste χ^2 .

surpresa, uma vez que o Pb muito provavelmente não possui momento localizado. Este resultado apenas confirma a previsão, de que o modelo não pode ser aplicado ao chumbo.

No que se refere aos demais modelos, o de Campo Molecular com Contribuição dos Elétrons de Condução é essencialmente semelhante ao de Jaccarino et al.¹². Por outro lado o modelo de Campbell não foi aplicado porque o Pb não é um elemento de transição e a diferença de carga em relação ao Fe deixa o Pb muito longe fora da região onde este modelo prevê comportamento anômalo do campo magnético local frente a temperatura. A verdade é que, para impurezas não magnéticas, difundidas em matriz ferromagnética, não se esperaria discrepâncias grandes entre o campo hiperfino sobre a impureza e a magnetização da matriz, como encontramos aqui para o Pb Fe.

É interessante ressaltar que foram observadas anomalias semelhantes do campo magnético hiperfino como função da temperatura no ¹¹⁹Sn, difundido em Fe, Co e Ni^{25,26 e 27}. O Sn localiza-se, na tabela periódica dos elementos, na mesma coluna

que o Pb, porém, pertence à série V. T.E.Granshaw²⁵ tentou uma interpretação teórica para este comportamento anômalo, baseado na seguinte suposição: O campo magnético efetivo no Sn possui uma componente fortemente dependente da superposição da orbital 5s do Sn com orbitais 3d dos átomos da matriz. A superposição destas orbitais depende da temperatura através das oscilações térmicas. Para determinar a média termodinâmica do deslocamento dos átomos foi usado o modelo de Einstein. Além disto, supondo que as demais contribuições ao campo efetivo são proporcionais à magnetização da matriz, Granshaw conseguiu estruturar um modelo que fits muito bem a curva experimental de ^{119}Sn em Co.

Quanto à localização do Bi ou Pb na rede cristalina do Fe é bastante difícil acreditar que ocupem posições intersticiais, já que o Bi possui um raio iônico 30% e o Pb 50% maior do que o do Fe. Experiências de "channeling" mostraram que, numa amostra com Pb implantado em monocristal de Fe, 80% do Pb ocupa posições substitucionais. Entretanto com aquecimento a 800°C foi observado que o Pb migra facilmente para posições "não substitucionais", o que não significa necessariamente posições intersticiais. Isto quer dizer que não é possível afirmar com certeza que a presente medida de magnetização como função da temperatura seja um caso de impureza intersticial de Pb em matriz de Fe.

Parece-nos claro que o problema das interações hiperfinas do Pb em Fe requer estudos adicionais, principalmente de campos hiperfinos e localizabilidade simultâneos. Pretendemos estender estes estudos para as ligas Pb Co e Pb Ni como função da temperatura. O estudo de Pb Ni é especialmente interessante porque nesta liga, conforme referência 24) os campos hiperfinos são iguais para amostra implantada ou preparada por método metalúrgico.

REFERÊNCIAS

1. B.N. Samoilov, V.V. Skliarevskii e E.P. Stepanov - Polarisation of Au¹⁹⁸ Nuclei in a Solution of Gold in Iron. Soviet Physics JETP, 36 (1959) 448.
2. G.J. Perlow, S.S. Hanna, M. Emermesh, G. Littlejohn, D.H. Vincent, R.S. Preston and J. Heberle - Polarization of Nuclear Resonance Radiation in Ferromagnetic Fe⁵⁷. Physical Review Letters, 4 (1960) 74
3. S.S. Hanna, J. Heberle, G.J. Perlow, R.S. Preston and D.H. Vincent - Direction of the effective magnetic field at the nucleus in ferromagnetic Iron, Physical Review Letters, 4 (1960) 513.
4. R.E. Watson and A.J. Freeman - Origin of Effective Fields in Magnetic Materials, The Physical Review, 123 (1961) 2027.
5. A.J. Freeman and R.E. Watson - Hyperfine Interactions in Magnetic Materials. In Rado Suhl - MAGNETISM Vol. IIA, Academic Press, 1965, New York and London, p. 167.
6. R.E. Watson - Conduction Electron Charge and Spin Density effects due to Impurities and Local Moments in Metals. In Freeman Frankel - Hyperfine Interactions, (1967) New York, London - Academic Press p. 413.
7. A.E. Balabanov and N.N. Delyagin - Some Regularities of the Magnetic Fields at Nuclei of Impurity Atoms in Ferromagnetic Substances. Soviet Physics JETP, 27 (1968) 752.
8. R.E. Watson and A.J. Freeman - Exchange Polarisation and the Magnetic Interactions of Rare Earth Ions, Physical Review Letters, 6 (1961) 277.
9. E. Daniel et J. Friedel - Sur la Polarisation de spin des Electrons de Conductibilite dans les Metaux Ferromagnetiques, The Journal of Physics and Chemistry of Solids, 24 (1963) 1601.

10. I.A. Campbell - Hyperfine Fields on Impurities in Ferromagnetic Metals. Journal of Physics C Solid State Physics 2 (1969) 1339.
11. 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
12. V.Jaccarino, L.R.Walker and G.K. Wertheim - Localized Moments of Manganese Impurities in Ferromagnetic Iron, Physical Review Letters, 13 (1964) 752.
13. J.Samuel Smart - Effective Field Theories of Magnetism, W.B. Saunders Company, Philadelphia & London, 1966.
14. G.G.Low - The Hyperfine Field at Manganese Impurities in Ferromagnetic Iron, Physics Letters, 21 (1966) 497.
15. D.A. Shirley, S.S. Rosenblum and E.Matthias - Hyperfine Fields at Solutes in Ferromagnets; Cadmium and Ruthenium in Nickel. Physical Review, 170 (1968) 363.
16. I.A.Campbell - Temperature dependence of impurity hyperfine fields in ferromagnets. Journal of Physics C, Solid State Physics, 3 (1970) 2151.
17. I.A.Campbell and A.A.Gomes - Magnetic Moments of Impurities in ferromagnetic transitional alloys, Proceedings of the Physical Society, 91 (1966) 319.
18. J.Friedel - Metallic alloys. Nuovo Cimento, Supplemento al vol. VII, sér. X (1958) 287.
19. R.M.Steffen, H.Frauenfelder - The Influence of Extranuclear Fields on Angular Correlations. In E.Karlson, E. Matthias and K. Siegbahn - Perturbed Angular Correlations. Amsterdam, North Holland, 1965 Ch.1.
20. H.Gabriel - Theory of the Influence of Environment on the Angular Distribution of Nuclear Radiation. Physical Review 181 (1969) 506.

21. S.G. Cohen - Hyperfine Interactions and the Angular Distribution and Correlations of Nuclear Gamma-Rays. In Freeman Frankel, Hyperfine Interactions (1967) New York, London, Academic Press p.553.
22. Delmar E. Brandão - Estudo do Campo Magnético Hiperfino no Molibdênio em Ferro, Como Função da Temperatura - Tese de Doutorado em Ciências (1971) p. 47-57.
23. G.C.Premila, S.G.Cohen and L.Grodzins - The Internal Magnetic Field on Pb Nuclei in an Fe Lattice. Physics Letters 24A (1967) 7.
24. J.D.Bowman and F.C.Zawislak - Hyperfine Fields at Pb in Fe, Co and Ni Lattices and the g-factor of the first 5^- State in ^{208}Pb . Nuclear Physics A138 (1969) 90.
25. T.E.Granshaw - Anomalous Temperature Dependence of the Hyperfine Field at ^{119}Sn in Co. Journal of Applied Physics, 40 (1969) 1481.
26. G.P.Huffman and G.R.Dunmyre - Anomalous Temperature Dependence of the Hyperfine Field at ^{119}Sn Nuclei in Co and Co-Ni Alloys. Journal of Applied Physics 41 (1970) 1323.
27. A.E.Balabanov and N.N. Delyagin - Temperature Dependence of the magnetic Hyperfine Interactions for Impurity Atoms in metallic Ferromagnets. Soviet Physics JETP 30 (1970) 1054.