



BR 4334 356
INIS - BR - 3499

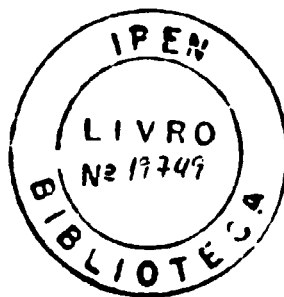
**ESTUDO DO CAMPO HIPERFINO MAGNÉTICO NO SÍTIO
DO ^{181}Ta NAS LIGAS DE HEUSLER Co_2ScSn ,
 Co_2ScGa E Co_2HfSn**

ROBERTA NUNES ATTILI

Dissertação apresentada como parte
dos requisitos para obtenção do Grau
de Mestre em Tecnologia Nuclear.

Orientador: Dr. Rajendra Narain Saxena

São Paulo
1992



Comissão Examinadora

Dr. Rajendra Narain Saxena (orientador)
Dr. Said R. Rabbani
Dr. José Mestnik Filho

Aos meus pais

Agradecimentos

Gostaria de agradecer à todas as pessoas que tiveram, de alguma forma, uma participação especial na realização deste trabalho, em particular:

Prof. Dr. Rajendra Narain Saxena pela sua dedicação na orientação deste trabalho e sobretudo pelo grande apoio e incentivo à minha formação.

Msc Artur Wilson Carbonari e Msc Willi Pendl Jr. pela colaboração efetiva em todas as etapas deste trabalho, apoio e amizade.

Renato Marcelo Franzin pela paciência e compreensão durante a realização dos cursos (principalmente Mecânica Quântica e Estado Sólido), incentivo e carinho. E também pelo auxílio na confecção das figuras.

Alex Pellegrinetti Mendes pelo auxílio prestado nos programas de análise, bem como pelo serviço de datilografia.

Milton e Luís(IPEN), Douglas(IFUSP) e Wellington(EPUSP) pelas análises das amostras por difração de raios-x.

Dr. Sylvio e Dra. Maristela Dionysio de Souza pelo auxílio na confecção de amostras e análise por difração de raios-x.

Nelson Bernardo (EPUSP) pela confecção das figuras.

Ana Maria e Ineide pela prestação de serviços de secretaria e amizade.

Maria Tereza pela revisão das referências.

IPEN pela oportunidade de realizar este trabalho e pelo apoio técnico e administrativo.

FAPESP pelo suporte financeiro.

Marlete P. M. Assunção pela amizade, apoio e paciência; e também pelas extensas horas de estudo não só durante a realização deste trabalho como também durante a faculdade.

Aos amigos Agostinho, André, Angélica, Edson, Eduardo, Felícia, Guilherme, Hércules, Jacó, Kátia, Marcos, Maria Lúcia, Mario "Planck", Meire, Renato, Roni, Sônia e Verônica pela amizade e apoio surgidos na tentativa de conquistarmos o mesmo objetivo.

Aos amigos Ana Maria, Elaine e Nil pelo incentivo e amizade.

Aos meus familiares pela paciência e incentivo.

À todos aqueles que aqui foram esquecidos pelo apoio prestado de alguma maneira.

E finalmente aos meus pais Waldir e Marlene pela compreensão e incentivo nos instantes mais difíceis.

Roberta

ESTUDO DO CAMPO HIPERFINO MAGNÉTICO NO ^{181}Ta NAS LIGAS DE HEUSLER Co_2ScSn Co_2ScGa E Co_2HfSn

Roberta Nunes Attili

Resumo

Os campos hiperfinos magnéticos atuando no núcleo de ^{181}Ta nos sítios do Sc e Hf foram medidos nas ligas de Heusler Co_2ScSn , Co_2ScGa e Co_2HfSn , utilizando a técnica de Correlação Angular $\gamma-\gamma$ Perturbada Diferencial em Tempo (CAPDT). As medidas foram realizadas em um espectrômetro automático com dois detectores de BaF_2 associados à eletrônica convencional.

A magnitude dos Campos Hiperfinos Magnéticos no ^{181}Ta foi medida para todas as ligas. O sinal do campo foi determinado nos casos das ligas Co_2ScSn e Co_2HfSn realizando as medidas de Correlação Angular Perturbada com um campo magnético externo polarizador de ≈ 5 kGauss.

Os valores de campos hiperfinos magnéticos obtidos são $-187,6 \pm 3,3$ e $90,0 \pm 2,1$ kOe medidos à 77 K para as ligas Co_2ScSn e Co_2ScGa respectivamente, e $-342,4 \pm 10,1$ kOe medido à temperatura ambiente para a liga Co_2HfSn .

Estes resultados são discutidos e comparados com uma sistemática de campos hiperfinos magnéticos nas ligas de Heusler baseadas no Cobalto.

HYPERFINE MAGNETIC FIELDS ON ^{181}Ta IN HEUSLER ALLOYS Co_2ScSn Co_2ScGa AND Co_2HfSn

Roberta Nunes Attili

Abstract

The hyperfine magnetic fields acting on ^{181}Ta nuclei at the Sc and Hf sites have been measured in Heusler alloys Co_2ScSn , Co_2ScGa and Co_2HfSn using the Time Differential Perturbed $\gamma - \gamma$ Angular Correlation (TDPAC) technique. The measurements were carried out using an automatic spectrometer consisting of two BaF_2 detectors and the conventional electronics.

The magnitude of hyperfine magnetic field at ^{181}Ta was measured for all the alloys. The signs of the field were determined in the cases of Co_2ScSn and Co_2HfSn alloys by performing the Perturbed Angular Correlation measurements with an external polarizing magnetic field of ≈ 5 kGauss.

The hyperfine magnetic fields obtained are $-187,6 \pm 3,3$ and $90,0 \pm 2,1$ kOe measured at 77 K for Co_2ScSn and Co_2ScGa alloys respectively, and $-342,4 \pm 10,1$ kOe measured at the room temperature for Co_2HfSn alloy.

These results are discussed and compared with the hyperfine magnetic field systematics in Co-based Heusler alloy.

Índice

1	Estudo do Campo Hiperfino Magnético nas ligas de Heusler	3
1.1	Introdução	3
1.2	Campos Hiperfinos Magnéticos	5
1.3	Ligas de Heusler	9
1.4	Campos Hiperfinos Magnéticos - Modelos Teóricos	13
1.4.1	Modelo de Daniel-Friedel	14
1.4.2	Modelo de I. A. Campbell	14
1.4.3	Modelo de Daniel-Friedel-Jena-Geldart	14
1.4.4	Modelo de Caroli-Blandin	15
1.4.5	Modelo de Blandin-Campbell	15
2	Correlação Angular Gama-Gama	16
2.1	Introdução	16
2.2	Correlação Angular Direcional	17
2.3	Correlação Angular Perturbada	20
2.4	Interações Quadrupolares Estáticas	23
2.5	Interações Magnéticas Estáticas	26
3	Equipamentos Utilizados e Procedimentos Experimentais	30
3.1	Equipamentos Utilizados	30
3.1.1	Espectrômetro Automático de Correlação Angular gama-gama Perturbada	30
3.1.2	Sistema para Medidas à Temperatura Ambiente	39
3.1.3	Sistema para Medidas à Altas Temperaturas	39
3.1.4	Sistema para Medidas à Baixas Temperaturas	39
3.1.5	Eletroímã	42

3.2	Confecção das Ligas de Heusler	42
3.3	Análise das ligas de Heusler pela técnica de Difração de Raios-x .	46
3.4	Confecção das ligas de Heusler com Ponta de Prova Radioativa . .	47
3.5	Medidas de Correlação Angular Gama-Gama Perturbada Diferencial	48
3.6	Tratamento de Dados e Cálculo dos Coeficientes de Correlação Angular Gama-Gama Perturbada Diferencial	50
3.7	Teste do Espectrômetro	52
4	Resultados Experimentais e Discussão	56
4.1	Resultados	56
4.1.1	Resultados das análises das ligas de Heusler pela difração de raios-x	56
4.1.2	Determinação dos Campos Hiperfinos Magnéticos nas ligas de Heusler Co_2ScSn , Co_2ScGa e Co_2HfSn	63
4.2	Discussão dos Resultados	74
5	Conclusões	82

Lista de Tabelas

3.I	Propriedades físicas dos cintiladores BaF ₂ e NaI(Tl)	35
3.II	Tratamento Térmico "Annealing" - Amostra Co ₂ ScGa	45
4.I	Parâmetros de Rede das amostras Co ₂ ScSn, Co ₂ ScGa e Co ₂ HfSn .	63
4.II	Resultados de CHM para as ligas de Heusler Co ₂ ScSn, Co ₂ ScGa e Co ₂ HfSn	74
4.III	Propriedades Magnéticas das ligas de Heusler do Tipo Co ₂ YZ . .	75
4.IV	Propriedades magnéticas das ligas de Heusler do tipo Co ₂ YSn . .	77

Lista de Figuras

1.1	Curva CHM x Número Atômico	7
1.2	Estruturas de Heusler	12
2.1	Esquema de decaimento	17
2.2	Esquema para medidas de correlação angular direcional	18
2.3	Curva teórica de $A_{22}G_{22}(t)$	28
2.4	Curva teórica de $R(t)$	29
3.1	Esquema indicativo da mesa automática	31
3.2	Sistema eletrônico diferencial para dois detetores	32
3.3	Espectro de $A_{22}(t)$ da amostra $\text{HfF}_4 \cdot \text{HF} \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ medida à temperatura ambiente usando:(a)Detetor NaI(Tl) e (b) Detetor BaF_2	36
3.4	Espectro de $A_{22}(t)$ da amostra HfO_2 medida com: (a)Detetor NaI(Tl) e (b) Detetor BaF_2	36
3.5	Espectro gama no decaimento do ^{181}Hf obtido com detetor NaI(Tl)	37
3.6	Espectro gama no decaimento do ^{181}Hf obtido com detetor BaF_2	38
3.7	Dedo quente	40
3.8	Criostato usado nas medidas à 77 K	41
3.9	Dedo frio	43
3.10	Eletroímã refrigerado à óleo	44
3.11	Esquema de decaimento radioativo simplificado do ^{181}Hf	48
3.12	Curva experimental de $A_{22}(t)$ da liga $\text{Ni}(^{181}\text{Hf})$	53
4.1	Difratograma da amostra Co_2ScSn	57
4.2	Difratograma da amostra Co_2ScGa	58
4.3	Difratograma da amostra Co_2HfSn	59
4.4	Indexação dos planos de Miller da amostra Co_2ScSn	60

4.5	Indexação dos planos de Miller da amostra Co_2ScGa	61
4.6	Indexação dos planos de Miller da amostra Co_2HfSn	62
4.7	Curva Experimental de $A_{22}(t)$ à temperatura ambiente - liga Co_2ScSn	64
4.8	Curva Experimental de $A_{22}(t)$ à 77 K - liga Co_2ScSn	65
4.9	Curva Experimental de $R(t)$ à 140 K - liga Co_2ScSn	66
4.10	Curva Experimental de $A_{22}(t)$ à temperatura ambiente - liga Co_2ScGa	68
4.11	Curva Experimental de $A_{22}(t)$ à 77 K - liga Co_2ScGa	69
4.12	Curva Experimental de $A_{22}(t)$ à 623 K - liga Co_2HfSn	71
4.13	Curva Experimental de $A_{22}(t)$ à temperatura ambiente - liga Co_2HfSn	72
4.14	Curva Experimental de $R(t)$ à temperatura ambiente - liga Co_2HfSn	73
4.15	Curva $H/\mu C_0$ x elemento Y	79

Introdução

O objetivo do presente trabalho é estudar o comportamento de Campos Hiperfinos Magnéticos (CHM) em ligas de Heusler do tipo Co_2YZ . As ligas de Heusler são compostos ternários intermetálicos com estequiometria e estrutura cúbica bem definidas. Geralmente, estas ligas apresentam ordenamento magnético, mesmo à temperatura ambiente, e mesmo quando os elementos que as constituem não são ordenados magneticamente. Assim, com o intuito de obtermos informações que possam contribuir para aumentarmos o conhecimento das propriedades magnéticas das ligas de Heusler, bem como ampliarmos uma sistemática de CHM nestas ligas fizemos, neste trabalho, as medidas de campos hiperfinos sobre o ^{181}Ta no sítio Y das ligas de Heusler Co_2ScSn , Co_2ScGa e Co_2HfSn .

A técnica empregada na determinação destes campos foi a Correlação Angular Gama-Gama Perturbada Diferencial. Para tal foi utilizada a cascata gama 133 - 482 keV no ^{181}Ta proveniente do decaimento β^- do ^{181}Hf , que foi utilizado como ponta de prova. Foram realizadas medidas acima e abaixo da temperatura de Curie (T_c) na ausência de campo magnético externo, e abaixo de T_c sob ação de campo magnético externo polarizador para as ligas.

No capítulo 1 descrevemos as origens dos CHM, bem como as características das ligas de Heusler, no capítulo 2 redigimos o formalismo teórico da Correlação Angular Gama-Gama e no capítulo 3 descrevemos o equipamento empregado e o procedimento experimental das medidas. Os resultados experimentais e suas interpretações podem ser vistos no capítulo 4 e as conclusões no capítulo 5.

Introdução

As equações apresentadas no texto seguem ordem por capítulo, seção e citação; e as figuras e tabelas seguem ordem por capítulo e citação.

Capítulo 1

Estudo do Campo Hiperfino Magnético nas ligas de Heusler

1.1. Introdução

O magnetismo é um dos fenômenos mais antigos da ciência e seu estudo, propriamente dito, teve início no século XVI com a descoberta de que à altas temperaturas um imã perde suas propriedades magnéticas. Substâncias magnéticas são aquelas que podem, em maior ou menor intensidade, ser magnetizadas por ação de um campo magnético. Existem vários tipos de magnetismo, sendo cada um caracterizado por uma estrutura magnética diferente. Entre estes, podemos destacar o ferromagnetismo, o antiferromagnetismo e o ferrimagnetismo. Nos ferromagnetos os spins atômicos encontram-se alinhados paralelamente gerando um momento magnético espontâneo mesmo na ausência de campo magnético; nos antiferromagnetos os spins encontram-se alinhados antiparalelamente resultando um momento magnético nulo e nos ferrimagnetos os spins estão alinhados antiparalelamente mas o momento magnético resultante é diferente de zero. Os ferrimagnetos, assim como os ferromagnetos, possuem momento magnético espontâneo.

O ferromagnetismo é manifestado somente nos cristais de nove elementos químicos: três metais $3d$ (Fe, Co, Ni) e seis metais $4f$ (Gd, Dy, Tb, Er e Tm). Mas existe um número enorme de ligas e compostos químicos ferromagnéticos. A única característica comum a todos os ferromagnetos é a existência de átomos

Estudo do Campo Hiperfino Magnético nas Ligas de Heusler

com camadas d ou f incompletas. A magnetização espontânea mostra que os momentos magnéticos dos átomos não estão orientados de um modo aleatório como nos paramagnetos, mas ordenados paralelos uns aos outros.

Para explicar a existência do momento magnético espontâneo, P. Weiss [1] supôs que no material ferromagnético existia um campo molecular interno. Segundo Weiss, este campo, de modo semelhante ao campo magnético externo em um paramagneto, cria no cristal ferromagnético a orientação paralela dos momentos magnéticos dos átomos quando o campo magnético externo sobre este cristal é zero. Embora esta teoria consiga explicar a variação da magnetização com a temperatura, ela não oferece uma origem física para o campo molecular. Coube a Heisenberg [2], com o advento da Mecânica Quântica, sugerir as interações de troca como a origem do ferromagnetismo.

Heisenberg mostrou que se existe uma interação eletrostática intensa entre os elétrons, pode resultar do ponto de vista energético, um estado com orientação paralela dos spins. Os cálculos detalhados da Mecânica Quântica da interação elétrica dos elétrons, levando-se em conta seus spins conduzem à conclusão de que na expressão da energia da interação resultante, além do termo coulombiano puramente clássico há um termo adicional especificamente quântico, dependente da orientação dos spins. Esta energia adicional recebe o nome de energia de troca. No caso da interação de um grande número de elétrons, como ocorre no sólido, a energia de troca pode ser expressa como:

$$E = - \sum_{i,j} A_{ij}(S_i \cdot S_j) \quad (1.1.1)$$

onde S_i e S_j são os spins dos elétrons que interagem e A_{ij} é um parâmetro com dimensão de energia chamado de integral de troca.

O efeito orientador da interação de troca é contrariado pela agitação térmica, e, em temperaturas relativamente altas, a ordem dos spins é destruída. A temperatura acima da qual a magnetização espontânea se anula é a chamada Temperatura de Curie (T_c), que separa a fase paramagnética desordenada da fase ferromagnética ordenada.

Neste modelo proposto por Heisenberg, o ferromagnetismo se deve ao ordenamento dos momentos magnéticos dos íons vizinhos com as camadas d ou

f incompletas. A interação de troca de elétrons entre os íons vizinhos chama-se interação de troca direta e se deve à superposição das distribuições de carga de diferentes íons magnéticos (i.e., íons com camadas d ou f incompletas). No grupo do Ferro, por exemplo, o ferromagnetismo foi atribuído inicialmente ao comportamento dos elétrons $3d$. Entretanto, verificou-se que a interação de troca direta entre os elétrons $3d$ não era de magnitude suficiente para explicar a existência do ferromagnetismo.

Mas em muitas ligas e compostos químicos os íons magnéticos estão separados um dos outros por um íon não magnético, ou seja, por um íon no qual as camadas eletrônicas estão totalmente ocupadas. Neste caso a interação de troca entre os íons magnéticos pode se efetuar por meio dos elétrons do íon não magnético comum à ambos. Esta forma de interação de troca recebe o nome de supertroca.

Também foi estabelecido que, além da troca direta e da supertroca, o ferromagnetismo pode ser ocasionado pela interação de troca indireta de elétrons localizados por meio dos elétrons coletivos ou itinerantes, i.e., elétrons que pertencem coletivamente a todos os átomos do cristal, tais como os elétrons de condução. A troca indireta é característica nos metais e ligas de Terras Raras.

Entretanto, a diferença entre elétron localizado e elétron itinerante não é bem estabelecida em um sólido, sendo assim os tipos de interações de troca citados anteriormente não podem ser diferenciados, podendo levar a erros considerá-los como mecanismos independentes.

Uma das maneiras de se estudar as características magnéticas de uma substância é feita através das interações hiperfinas existentes entre o núcleo atômico e o seu meio envolvente.

1.2. Campos Hiperfinos Magnéticos

Se imaginarmos um núcleo atômico implantado em um material ferromagnético, sabemos que a interação entre este núcleo e os elétrons do hospede com spins polarizados levam o núcleo atômico a sentir um campo magnético efetivo chamado Campo Hiperfino Magnético (CHM). Os campos hiperfinos nos fornecem informações microscópicas sobre o estado eletrônico do hospede e foi bastante investigado principalmente para ferromagnetos de transição $3d$ como Fe, Co e

Estado do Campo Hiperfino Magnético nas Ligas de Heusler

Ni. Hoje, é bem conhecido que o campo hiperfino nestes ferromagnetos mostra um comportamento oscilatório em função do número atômico Z da impureza, como pode ser visto na fig. 1.1 [3]. Os campos hiperfinos são negativos (têm direção oposta à magnetização da matriz) quando as impurezas são elementos situados na série de transição e primeira metade da série s-p. Após, os campos hiperfinos mudam de sinal, tornando-se intensos e positivos (i.é., com o campo na mesma direção da magnetização do hóspede) para impurezas situadas na segunda metade da série s-p. Muito embora esta sistemática seja conhecida à aproximadamente vinte anos, não sabemos a razão deste comportamento. Sendo assim, tornou-se interessante o estabelecimento de uma sistemática de Campos Hiperfinos Magnéticos em outros sistemas magnéticos além dos ferromagnetos tradicionais. Conseqüentemente, as ligas de Heusler tornaram-se importantes objetos de estudo dos Campos Hiperfinos Magnéticos.

O CHM tem algumas origens principais que são destacadas abaixo [4]:

- a. **Momento Angular Orbital** – O movimento orbital dos elétrons de camadas não completas é responsável por uma densidade de corrente eletrônica que gera um campo magnético clássico sobre o núcleo. Esta interação é pequena (~ 10 kOe) para elementos de transição $3d$; já para núcleos de terras raras esta contribuição é grande ($\sim 10^3$ kOe).
- b. **Interação Dipolar** – Esta contribuição é devida à interação dipolar do spin eletrônico com o dipolo nuclear e sua magnitude é da ordem de 10 kOe. Mas se a estrutura cristalina da amostra for cúbica, a contribuição desta interação se anula.
- c. **Interação de Contato de Fermi** – A interação de contato de Fermi é a interação existente entre o momento de dipolo magnético nuclear e a densidade de magnetização de spin eletrônico dentro do núcleo atômico. Os elétrons s do caroço e os elétrons de condução podem contribuir para a interação hiperfina através deste mecanismo.

A interação de contato de Fermi pode ser subdividida em algumas contribuições como:

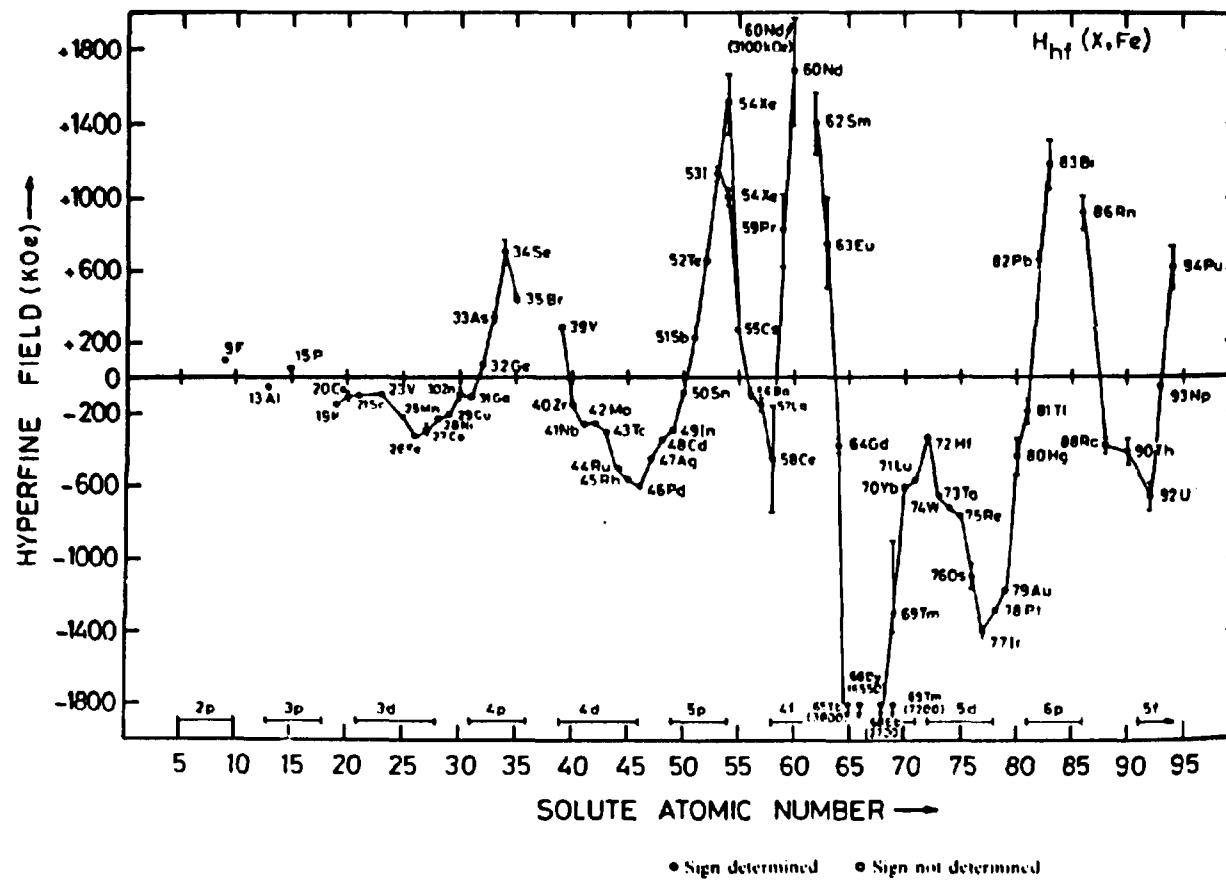


Figura 1.1: Curva CHM x Número Atômico

Estudo do Campo Hiperfino Magnético nas Ligas de Heusler

c.1. Polarização do caroço: Esta contribuição é devida à polarização dos elétrons s do caroço pelos elétrons $3d$ do mesmo átomo. Cálculos de Freeman e Watson [5] mostram que a repulsão coulombiana entre elétrons s e d é maior quando seus spins são antiparalelos. Entretanto, elétrons s com spin “up” são mais atraídos pelos elétrons $3d$ polarizados do que os elétrons s com spin “down”, resultando uma maior densidade de elétrons com spin “down” que ocasiona um campo hiperfino negativo.

c.2. Efeitos de “overlap” e covalência: Estes efeitos estão presentes tanto em íons magnéticos como em íons não magnéticos, sendo que as maiores contribuições destes efeitos para o campo hiperfino podem ser para impurezas não magnéticas. O sinal destas contribuições para o campo é sempre positivo.

c.3. Interação RKKY (Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida): Esta interação contribui para o campo hiperfino em impurezas não magnéticas, bem como em impurezas magnéticas. Sua maior contribuição é para impurezas não magnéticas, e o campo hiperfino nestes íons é uma função da distância do íon magnético, sendo que seu sinal varia com esta distância. Para ferromagnetos de transição $3d$, por exemplo, esta interação dá uma contribuição negativa para o campo hiperfino à distância de primeiros vizinhos.

Ainda, se for aplicado um campo magnético externo sobre uma amostra magnética, o CHM terá mais uma componente que é o campo magnético local, da ordem de alguns kOersted. A contribuição do campo magnético local é devida ao campo magnético externo, fator de demagnetização e de Lorentz; e pode ser escrita como:

$$\vec{B}_{local} = \vec{B}_{ext} + \vec{B}_{dem} + \vec{B}_{lor} \quad (1.2.1)$$

onde:

\vec{B}_{ext} = campo magnético externo aplicado

$$\vec{B}_{dem} = -D\vec{M}$$

$$\vec{B}_{lor} = \frac{4}{3}\pi\vec{M}'$$

Sendo:

D – fator de demagnetização (dependente da forma geométrica da amostra),

\vec{M} – magnetização da amostra,

\vec{M}' – magnetização em cada domínio.

Resumindo, o campo magnético efetivo sentido por um núcleo implantado em um meio magnético é:

$$\vec{B}_{ef} = \vec{B}_{loc} + \vec{B}_{hf} \quad (1.2.2)$$

onde:

\vec{B}_{ef} – campo magnético efetivo

\vec{B}_{loc} – campo magnético local

\vec{B}_{hf} – campo hiperfino magnético.

Existem vários modelos teóricos que tentam explicar os Campos Hiperfinos Magnéticos nas ligas de Heusler, logo os resultados experimentais de CHM também servem para verificar estes modelos.

1.3. Ligas de Heusler [6]

As ligas de Heusler tornaram-se importantes no início do século, mais precisamente em 1903, quando F. Heusler [7] descobriu ser possível confeccionar ligas ferromagnéticas (mesmo à temperatura ambiente) a partir de elementos não ferromagnéticos. Estudos destas ligas mostraram que as propriedades magnéticas das mesmas estavam relacionadas com a sua estrutura química ou tratamento térmico empregado.

Desde a descoberta da primeira liga de Heusler várias tentativas foram feitas para a determinação da sua estrutura por difração de raios-x. O trabalho definitivo para a determinação de sua estrutura foi realizado por Bradley e Rodgers [8] em 1934. Eles estudaram a liga Cu_2MnAl pela técnica de difração de raios x

Estudo do Campo Hiperfino Magnético nas Ligas de Heusler

e encontraram grandes dificuldades devido ao fato dos fatores de espalhamento do Cobre e do Manganês serem muito próximos. Para sanarem esta dificuldade usaram diversos tubos de raios x como Ferro, Cobre e Zinco, possibilitando a localização do Cu e do Mn. Assim, estes autores concluíram que a liga estudada apresentava uma estrutura do tipo CsCl, i.é., uma estrutura cúbica de corpo centrado onde a posição central de cada célula é ocupada alternadamente por átomos diferentes. Esta estrutura é melhor descrita pela interpenetração de quatro sub-redes fcc com coordenadas ABCD dadas por:

A			B			C			D		
0	0	0	$\frac{1}{4}$	$\frac{1}{4}$	$\frac{1}{4}$	$\frac{1}{2}$	$\frac{1}{2}$	$\frac{1}{2}$	$\frac{3}{4}$	$\frac{3}{4}$	$\frac{3}{4}$
0	$\frac{1}{2}$	$\frac{1}{2}$	$\frac{1}{4}$	$\frac{3}{4}$	$\frac{3}{4}$	$\frac{1}{2}$	0	0	$\frac{3}{4}$	$\frac{1}{4}$	$\frac{1}{4}$
$\frac{1}{2}$	0	$\frac{1}{2}$	$\frac{3}{4}$	$\frac{1}{4}$	$\frac{3}{4}$	0	$\frac{1}{2}$	0	$\frac{1}{4}$	$\frac{3}{4}$	$\frac{1}{4}$
$\frac{1}{2}$	$\frac{1}{2}$	0	$\frac{3}{4}$	$\frac{3}{4}$	$\frac{1}{4}$	0	0	$\frac{1}{2}$	$\frac{1}{4}$	$\frac{1}{4}$	$\frac{3}{4}$

onde os átomos de Cu ocupam as posições A e C, os átomos de Mn ocupam a posição B e os átomos de Al ocupam a posição D.

Inicialmente somente a difração de raios x era empregada como técnica de investigação das estruturas das ligas de Heusler, entretanto, hoje, podem ser usadas outras técnicas para o estudo de outras propriedades como: difração de nêutrons, medidas de magnetometria, difração eletrônica e medida de resistividade da amostra.

As ligas de Heusler podem apresentar três diferentes arranjos (conforme mostra a figura 1.2) denominados pelos títulos Strukturbericht, que são:

- L2₁ e B₂ cuja fórmula química é X₂YZ,
- C1_b cuja a fórmula química é XYZ

Estudo do Campo Hiperfino Magnético nas Ligas de Heusler

Geralmente, a caracterização para os átomos da liga de Heusler é:

X – metal nobre ou de transição 3d, 4d ou 5d com a camada d externa quase cheia (Co, Ni, Cu, etc.).

Y – metal de transição com a camada d externa menos completa do que para o átomo X (Ti, Zr, Hf, V, Nb, Sc, etc.).

Z – metal da série s-p (Al, Ga, Si, Sn, etc.).

Quanto ao ordenamento magnético, estas ligas podem ser ferrimagnéticas (Ni_2MnSn), antiferromagnéticas (Pd_2MnIn), paramagnéticas (Co_2TiSb) e ferromagnéticas (Co_2NbAl). Sendo, estas últimas, as mais intensamente estudadas.

As ligas de Heusler apresentam algumas vantagens, em comparação às ligas binárias, quanto ao estudo das relações que existem entre os ordenamentos químicos e magnéticos; pois devido ao fato de possuírem três átomos distintos na fórmula química é possível a realização de combinações diversificadas, com a finalidade de estudar o efeito local, bem como o de diferentes átomos vizinhos no valor do CHM.

Ainda, estas ligas são compostos com estequiometria e estrutura cristalina definidas, o que possibilita sabermos exatamente a posição dos átomos na sua rede cristalina.

Existem dois tipos de ligas de Heusler que são bastante estudadas, uma baseada no Manganês (X_2MnZ) e a outra no Cobalto (Co_2YZ). Sendo esta última a do nosso maior interesse.

Há dois fatores principais que originam o intenso estudo sistemático das ligas de Heusler do tipo X_2MnZ . O primeiro motivo se deve ao fato do momento magnético do composto estar localizado somente nos átomos de Mn ($\text{X} \neq \text{Fe}, \text{Co}, \text{Ni}$), e o segundo deve-se à distância mínima Mn-Mn, nas ligas X_2MnZ , ser aproximadamente 1,62 vezes maior que no Manganês puro ou com impurezas

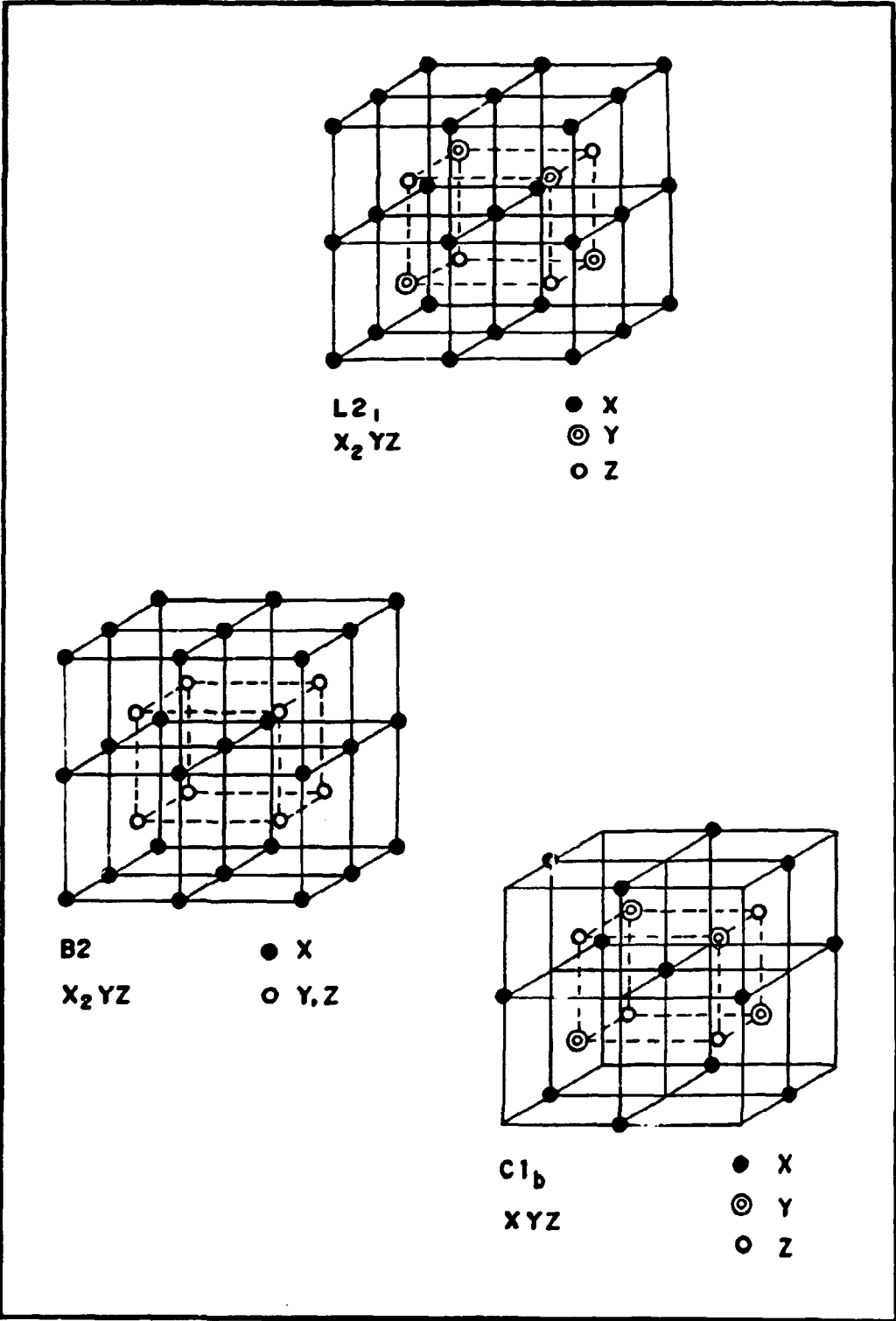


Figura 1.2: Estruturas de Heusler

diluídas. De acordo com estas considerações, acredita-se que o ferromagnetismo no sítio do Mn neste tipo de liga é devido à interação de spin de elétrons d das camadas incompletas com spin de camadas s internas que interagem com o núcleo via contato de Fermi.

Os estudos já existentes revelam que para as ligas de Heusler baseadas no Manganês a temperatura de Curie varia entre 600 e 1000 K, o momento localizado no Mn (μ_{Mn}) é da ordem de $4 \mu_B$ e os parâmetros de rede são próximos à $6,0 \text{ \AA}$.

Verifica-se, ainda, que as medidas existentes de CHM no sítio do Mn nestas ligas mostram valores negativos ($\sim -300 \text{ kOe}$); no sítio X os valores de campos também são negativos ($\sim -160 \text{ kOe}$) e no sítio Z os campos são positivos.

Mas atualmente, existe uma grande tendência de estudar-se outro tipo de liga de Heusler; são as ligas baseadas no Cobalto (Co_2YZ). Neste tipo de liga, o momento magnético está localizado somente nos átomos de Cobalto ($Y \neq \text{Mn}$), que corresponde à posição X da liga de Heusler. Além disso, a menor distância entre os átomos de Co nas ligas Co_2YZ é cerca de 1,17 vezes maior que no Cobalto puro ou com impurezas diluídas, e este fato sugere que possa ocorrer alguma superposição d-d direta.

Os valores de temperatura de Curie (T_c) nestas ligas variam entre 90 e 1100 K e os valores de μ_{co} estão entre 0,3 e $1,0 \mu_B$. Quanto aos parâmetros de rede, para ligas cujo sítio Y são elementos situados entre o Titânio e Ferro ($22 \leq Z \leq 26$) o parâmetro de rede é da ordem de $5,8 \text{ \AA}$, já para ligas cujos sítios Y são Zircônio, Nióbio e Háfênio ($Z = 40, 41 \text{ e } 72$) o parâmetro de rede oscila em torno de $6,0 \text{ \AA}$. Variando-se o sítio Z não se verifica nenhum comportamento sistemático do valor do parâmetro de rede.

Considerando o campo hiperfino magnético verifica-se que para o sítio X (sítio do Cobalto) os campos podem ser positivos ou negativos, para o sítio Y os valores experimentais de campos hiperfinos mostram-se negativos e para o sítio Z os campos são positivos.

1.4. Campos Hiperfinos Magnéticos – Modelos Teóricos

Neste item, faremos uma breve citação de alguns modelos teóricos que tentam explicar o comportamento dos campos hiperfinos magnéticos.

1.4.1. Modelo de Daniel-Friedel [9]

Este foi um dos primeiros modelos teóricos elaborados para explicar resultados experimentais de CHM. Considera-se, neste modelo, uma matriz ferromagnética contendo impurezas não magnéticas. Os elétrons de condução do metal ferromagnético podem ser polarizados pela interação de troca s-d. Se atribuirmos a esta polarização de spins o campo magnético efetivo medido no núcleo do átomo não magnético, um cálculo relativamente simples mostra um campo local de sinal contrário daquele da polarização global dos elétrons da matriz. A comparação deste modelo teórico com os resultados experimentais conhecidos indicaram que a polarização é positiva no Ferro puro.

1.4.2. Modelo de I. A. Campbell [10]

Os resultados experimentais para campos hiperfinos para um grande número de impurezas em metais ferromagnéticos são analisados por este modelo que é baseado no modelo de Daniel-Friedel [9], mas tendo como mecanismo dominante a hibridização dos orbitais s-d. A polarização dos elétrons de condução da matriz é negativa e o modelo tenta interpretar uma sistemática de campos hiperfinos.

1.4.3. Modelo de Daniel-Friedel-Jena-Geldart [11]

Este é o modelo de Daniel-Friedel [9] adaptado por Jena e Geldart para as ligas de Heusler. A interpretação física é dada para uma sistemática de campos hiperfinos nos sítios de íons não magnéticos em ligas ferromagnéticas concentradas com estrutura X_2MnZ . Considera-se a interação de contato de Fermi como mecanismo dominante para o campo hiperfino. O modelo prevê, para as ligas X_2MnZ , que campos hiperfinos medidos no sítio Z aumentam com o aumento da densidade dos elétrons de condução. Os valores obtidos por este modelo para os campos hiperfinos no sítios Z nas ligas de Heusler X_2MnZ estão de acordo com o modelo de Campbell [10]; entretanto aplicações deste modelo para cálculos de campos hiperfinos nos sítios X e Z de várias outras ligas de Heusler são inadequadas.

1.4.4. Modelo de Caroli-Blandin [12]

Neste modelo os autores mostram que os fortes campos magnéticos medidos sobre os átomos de Cobre nas ligas de Heusler do tipo Cu_2MnZ são bem compreendidos se supusermos que os momentos magnéticos estão localizados somente sobre os átomos de Manganês. Nesse estudo, eles consideram os átomos de Mn como impurezas isoladas e a matriz é representada pelo conjunto dos átomos de Cobre e dos átomos Z. Assim, ocorre a interação dos elétrons de condução da matriz com a impureza magnética (no caso o Manganês), via espalhamento ressonante de elétrons d itinerantes por potencial dependente de spin no sítio do Mn. Este modelo reproduziu bons resultados para cálculos de CHM no sítio X, mas para o sítio Z os valores calculados não concordam com os valores experimentais. Também foram calculadas por este modelo teórico as temperaturas de Curie de algumas ligas.

1.4.5. Modelo de Blandin-Campbell [13, 14]

Este modelo considera um íon magnético e um íon não magnético na banda de condução de um meio magnético. Os autores tratam a interação dos elétrons de condução com o íon magnético através de um potencial dependente do spin e a interação dos elétrons de condução com o íon não magnético através de um potencial independente do spin.

A contribuição da polarização dos elétrons de condução para os campos hiperfinos nos sítios de elementos s-p em metais magnéticos é discutida usando a aproximação RKKY. Isto mostra que este mecanismo pode providenciar uma explicação para sistemáticas hiperfinas em uma variedade de sistemas, em particular para elementos s-p nas ligas de Heusler e para impurezas s-p em matrizes de Fe, Ni ou Pd.

Capítulo 2

Correlação Angular Gama-Gama

2.1. Introdução

É um fato bem conhecido que para duas radiações coincidentes emitidas por um núcleo pode existir uma correlação entre suas direções de propagação. Este fato foi apontado primeiramente por Dunworth [15] em 1940 e tem sido utilizado extensivamente como método para medidas de várias propriedades nucleares, uma vez que a correlação angular está baseada nos princípios gerais de simetria de rotação e reflexão que conduzem à conservação do momento angular e da paridade respectivamente. Ainda em 1940, Hamilton [16] publicou um trabalho teórico onde descreveu a correlação angular de raios gama emitidos em duas transições sucessivas usando a teoria de Perturbação. O primeiro trabalho experimental onde foi observada a correlação angular entre raios gama foi feito por Brady e Deutsch [17] em 1947.

Ampliando o trabalho de Hamilton, Goertzel [18] sugeriu a presença de perturbações extranucleares no estudo da correlação angular. A teoria de correlação angular perturbada foi estendida por Alder [19, 20], que investigou o efeito da aplicação de campos magnéticos estáticos. Esta teoria de correlação angular perturbada foi bastante aperfeiçoada e hoje ela é bem conhecida tendo inúmeras aplicações como no estudo da Física do Estado Sólido, Química e Biofísica além da Física Nuclear.

2.2. Correlação Angular Direcional

A probabilidade de emissão de uma partícula ou fóton por um núcleo radioativo depende do ângulo entre o eixo de spin do núcleo e a direção de emissão. Assim, a radiação emitida por uma amostra comum é isotrópica, pois os núcleos individuais estão orientados aleatoriamente no espaço. A anisotropia somente pode ser observada em um conjunto de núcleos que estão orientados numa só direção. Uma maneira de se chegar a esta situação é colocarmos a amostra radioativa à baixas temperaturas em um forte campo magnético ou gradiente de campo elétrico, onde a direção destes campos externos definem o eixo de quantização. Entretanto, a técnica de alinhamento nuclear mais usual é através da observação das radiações sucessivas γ_1 e γ_2 . A observação da primeira radiação em uma direção fixada \vec{k}_1 seleciona um conjunto de núcleos no estado intermediário com a mesma direção de spins. A segunda radiação emitida por este conjunto apresenta, então, uma correlação angular definida em relação à direção do primeiro raio gama. Para que isto ocorra, a vida média do estado intermediário deve ser pequena (da ordem de 10^{-12} segundos) para que a direção do spin não se altere sob a ação de campos extranucleares antes da emissão de γ_2 . A figura 2.1 apresenta o esquema de decaimento de uma cascata gama simples e os respectivos parâmetros envolvidos.

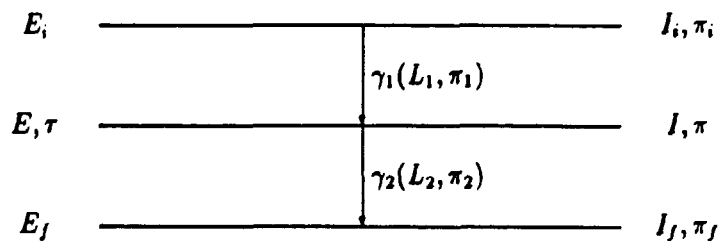


Figura 2.1: Esquema de decaimento

onde:

I - spin

π - paridade

E - energia

τ - vida média do estado intermediário

L - multipolaridade da transição

Correlação Angular gama-gama

Dado um experimento de correlação angular $\gamma - \gamma$ típico, consideremos um núcleo emitindo duas radiações γ em cascata. A primeira radiação é detetada pelo detetor 1 e a segunda radiação pelo detetor 2 sendo que as coincidências entre as radiações são registradas em função do ângulo θ formado pelos detetores utilizando uma eletrônica apropriada. A figura 2.2 ilustra o esquema experimental que é utilizado para se obter as coincidências entre γ_1 e γ_2 provenientes de um mesmo núcleo e que são emitidas nas direções \vec{k}_1 e \vec{k}_2 dentro dos ângulos sólidos $d\Omega_1$ e $d\Omega_2$.

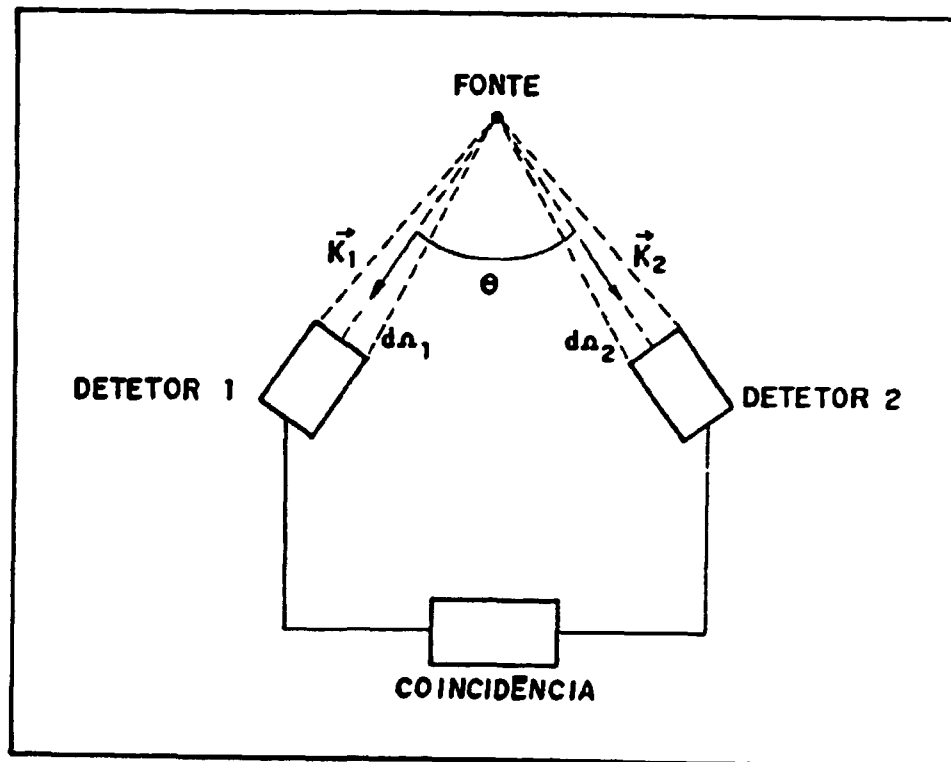


Figura 2.2: Esquema para medidas de correlação angular direcional

Correlação Angular gama-gama

A função correlação angular, que fornece a probabilidade de γ_2 ser emitido em um elemento de ângulo sólido $d\Omega_2$, pode ser escrita da forma [21]:

$$W(\theta) = \sum_k A_{kk} P_k(\cos \theta) \quad (2.2.1)$$

onde:

$W(\theta)$ – n^o de coincidências entre γ_1 e γ_2

$k_{m\text{d}\pi}$ – \leq mínimo entre $(2I, 2L_1, 2L_2)$

$P_k(\cos \theta)$ – polinômios de Legendre de ordem par, pois há conservação da paridade em transições eletromagnéticas

Os coeficientes de correlação angular A_{kk} dependem dos spins e das multipolaridades e podem ser escritos como:

$$A_{kk} = A_k(\gamma_1) A_k(\gamma_2) \quad (2.2.2)$$

ou

$$A_{kk} = A_k(L_1 L'_1 I_i I) A_k(L_2 L'_2 I_f I) \quad (2.2.3)$$

Segundo Falkoff e Ling [22] os coeficientes da função correlação angular são dados por:

$$A_k(L_1 L'_1 I_i I) = \frac{F_k(L_1 L_1 I_i I) + (-1)^{L_1 - L'_1} 2\delta_1 F_k(L_1 L'_1 I_i I) + \delta_1^2 F_k(L'_1 L'_1 I_i I)}{1 + \delta_1^2} \quad (2.2.4)$$

$$A_k(L_2 L'_2 I_f I) = \frac{F_k(L_2 L_2 I_f I) + 2\delta_2 F_k(L_2 L'_2 I_f I) + \delta_2^2 F_k(L'_2 L'_2 I_f I)}{1 + \delta_2^2} \quad (2.2.5)$$

Sendo que δ é a razão de mistura multipolar e F_k são os coeficientes de Ferentz-Rozenzweig tabeladas na ref. 23 e definidos por:

$$F_k(LL'I,I) = (-1)^{L+I-1}(2L+1)(2L'+1)(2I+1)(2k+1)^{\frac{1}{2}} \begin{pmatrix} L & L' & k \\ 1 & -1 & 0 \end{pmatrix} \begin{Bmatrix} L & L' & k \\ I & I & I_i \end{Bmatrix} \quad (2.2.6)$$

onde:

$$\begin{pmatrix} L & L' & k \\ 1 & -1 & 0 \end{pmatrix} - \text{coeficientes 3-j de Wigner}$$

$$\begin{Bmatrix} L & L' & k \\ I & I & I_i \end{Bmatrix} - \text{coeficientes 6-j de Wigner}$$

Em muitos casos a correlação angular é muito bem descrita somente pelos parâmetros A_{22} e A_{44} , e como a equação (2.2.1) é, geralmente, normalizada em relação à A_{00} , temos:

$$W(\theta) = 1 + A_{22}P_2(\cos \theta) + A_{44}P_4(\cos \theta) \quad (2.2.7)$$

Assim, através da correlação angular direcional podemos determinar parâmetros nucleares tais como spins nucleares, ordens multipolares e razões de mistura.

2.3. Correlação Angular Perturbada [24]

A correlação angular de uma cascata gama $I_i \rightarrow I \rightarrow I_f$ é, em geral, alterada quando o núcleo no nível intermediário I é sujeito a torques, devido à interação do momento de dipolo magnético μ com um campo magnético extranuclear \vec{B} , ou do momento de quadrupolo elétrico Q com gradientes de campo elétrico V_{zz} . Do ponto de vista semiclássico, estas interações produzem uma precessão do núcleo em torno do eixo de simetria. A mudança da orientação nuclear implica em uma correlação angular alterada. Estas interações são estáticas, entretanto, também existem interações dependentes do tempo que ocasionam uma mudança na função correlação.

A influência de um campo extranuclear sobre a correlação angular de uma cascata gama em particular, depende da magnitude e da duração da interação.

Correlação Angular gama-gama

Para perturbações estáticas, a magnitude pode ser descrita pela frequência de precessão ω . Para interações magnéticas, ω é a chamada Frequência de Larmor ω_L , que é proporcional à μ e B . No caso de interações quadrupolares, ω é proporcional a Q e V_{zz} . Perturbações dependentes do tempo podem ser caracterizadas pela constante de relaxação λ . Assim, a correlação angular da cascata é perturbada se $\omega\tau \geq 1$ e $\lambda\tau \geq 1$; sendo τ a vida média do estado intermediário. Para um experimento de correlação angular não perturbada a expressão (2.2.1) também pode ser escrita como:

$$W(\vec{k}_1, \vec{k}_2, 0) = \sum_{m_i, m_a, m_b} \sum_{m_a', m_b', m_f} \langle m_f | H_2 | m_b \rangle \langle m_a | H_1 | m_i \rangle \\ \times \delta_{m_a, m_b} \langle m_f | H_2 | m_a' \rangle \langle m_b' | H_1 | m_i \rangle \delta_{m_a', m_b'} \quad (2.3.1)$$

onde H_1 e H_2 representam as interações entre os núcleos e a radiação.

Supondo, agora, uma interação dos núcleos no seu estado intermediário I com algum campo extranuclear, sabemos que o tempo decorrido entre a formação do estado intermediário orientado e o instante da emissão do segundo raio gama é suficientemente longo para causar uma mudança apreciável na população dos sub-estados magnéticos. Esta mudança pode ser representada por um operador unitário $\Lambda(t)$ que descreve a evolução temporal dos vetores de estado $|m_a\rangle$:

$$\Lambda(t)|m_a\rangle = \sum_{m_b} \langle m_b | \Lambda(t) | m_a \rangle |m_b\rangle \quad (2.3.2)$$

Este operador satisfaz a equação de Schrödinger:

$$\frac{\partial}{\partial t} \Lambda(t) = \frac{-i}{\hbar} K \Lambda(t) \quad (2.3.3)$$

Se K não depende do tempo (interações estáticas), a solução da equação acima é:

$$\Lambda(t) = \exp \left[-\frac{i}{\hbar} K t \right] \quad (2.3.4)$$

Mas para interações dependentes do tempo a solução da equação (2.3.3) pode ser escrita como:

$$\Lambda(t) = \exp\left[-\left(\frac{i}{\hbar}\right) \int_0^t K(t') dt'\right] \quad (2.3.5)$$

Sendo assim, a correlação angular pode ser escrita da seguinte forma:

$$W(\vec{k}_1, \vec{k}_2, t) = \sum_{m_j, m_i} \sum_{m_a, m_b} \sum_{m_a', m_b'} \langle m_j | H_2 | m_b \rangle \langle m_b | \Lambda(t) | m_a \rangle \langle m_a | H_1 | m_i \rangle \\ \times \langle m_j | H_2 | m_b' \rangle^* \langle m_b | \Lambda(t) | m_a' \rangle^* \langle m_a' | H_1 | m_i \rangle^* \quad (2.3.6)$$

Trocando os elementos de matriz $\langle m' | H_i | m \rangle$ pelas suas expressões usuais [25, 26] e abrindo as somatórias em m_i e m_j , restringindo somente para a direção de correlação, podemos obter a expressão para a correlação angular $\gamma - \gamma$ perturbada diferencial em tempo:

$$W(\vec{k}_1, \vec{k}_2, t) = \sum_{k_1, k_2, N_1, N_2} A_{k_1}(\gamma_1) A_{k_2}(\gamma_2) G_{k_1 k_2}^{N_1 N_2}(t) [(2k_1 + 1)(2k_2 + 1)]^{-\frac{1}{2}} \\ \times Y_{k_1}^{N_1}(\theta_1, \phi_1) Y_{k_2}^{N_2}(\theta_2, \phi_2) \quad (2.3.7)$$

onde os argumentos θ e ϕ dos harmônicos esféricos referem-se à direção de observação da radiação em relação ao eixo de quantização z arbitrariamente escolhido; e o termo $G_{k_1 k_2}^{N_1 N_2}(t)$ é o fator de Perturbação definido por:

$$G_{k_1 k_2}^{N_1 N_2}(t) = \sum_{m_a, m_b} (-1)^{2I+m_a+m_b} [(2k_1 + 1)(2k_2 + 1)]^{\frac{1}{2}} \begin{pmatrix} I & I & k_1 \\ m_a' & -m_a & N_1 \end{pmatrix} \\ \times \begin{pmatrix} I & I & k_2 \\ m_b' & -m_b & N_2 \end{pmatrix} \langle m_b | \Lambda(t) | m_a \rangle \langle m_b' | \Lambda(t) | m_a' \rangle^* \quad (2.3.8)$$

A influência da perturbação extranuclear é descrita completamente pelo fator de perturbação (2.3.8).

Uma correlação angular não perturbada não depende do tempo transcorrido para o núcleo no estado intermediário. Para o caso não perturbado $W(\theta, t) = W(\theta, 0)$ (equação (2.2.1)). Entretanto, no caso de perturbações temos:

$$W(\theta, t) = \sum_k G_{kk}(t) A_{kk} P_k(\cos \theta) \quad (2.3.9)$$

Assim, podemos notar que a forma da função correlação angular não foi alterada pela perturbação; apenas foi introduzido o fator de perturbação $G_{kk}(t)$ também chamado fator de atenuação.

2.4. Interações Quadrupolares Estáticas

Considerando um gradiente de campo elétrico, sabemos que a hamiltoniana que descreve a interação deste campo elétrico com o momento de quadrupolo elétrico do estado nuclear é dada por [27]:

$$k_Q = \frac{4}{5}\pi T^{(2)}V^{(2)} = \frac{4}{5}\pi \sum_q (-1)^q T_q^{(2)}V_{-q}^{(2)} \quad (2.4.1)$$

onde $V^{(2)}$ é um operador tensorial do gradiente de campo elétrico clássico e $T_q^{(2)}$ é o operador tensorial de segunda ordem do momento de quadrupolo nuclear com as componentes dadas por:

$$T_q^{(2)} = \sum_p e_p r_p^2 Y_2^q(\theta_p, \phi_p) \quad (2.4.2)$$

onde e_p são cargas puntuais situadas nos pontos (r_p, θ_p, ϕ_p) nos núcleos.

Se o campo eletrostático é causado por cargas puntuais e_c (íons na rede cristalina) nas posições (r_c, θ_c, ϕ_c) em relação ao centro nuclear, as componentes esféricas do tensor de campo $V^{(2)}$ são dadas por:

$$V_q^{(2)} = \sum_c \frac{e_c}{r_c^3} Y_2^q(\theta_c, \phi_c) \quad (2.4.3)$$

Mas os tensores de campo $V^{(2)}$ também podem ser escritos em termos de gradientes cartesianos em um sistema de coordenadas xyz escolhido:

$$\begin{aligned} V_0^{(2)} &= \frac{1}{4}\sqrt{\frac{5}{\pi}}V_{zz} \\ V_{\pm 1}^{(2)} &= 0 \\ V_{\pm 2}^{(2)} &= \frac{1}{4}\sqrt{\frac{5}{6\pi}}(V_{xx} - V_{yy}) = \frac{1}{4}\sqrt{\frac{5}{6\pi}}\eta V_{xx} \end{aligned} \quad (2.4.4)$$

onde o parâmetro de assimetria do campo elétrico η é introduzido como:

$$\eta = \frac{V_{zz} - V_{yy}}{V_{xx}} \quad (2.4.5)$$

É conveniente escolhermos o sistema de eixos principais tal que $|V_{zz}| < |V_{yy}| < |V_{xx}|$, pois esta condição restringe o valor de η para $0 < \eta < 1$, uma vez que a equação de Poisson é dada por:

$$V_{xx} + V_{yy} + V_{zz} = 0 \quad (2.4.6)$$

Assim, o tensor gradiente $V^{(2)}$ é determinado pelos dois parâmetros η e V_{zz} .

Se o campo elétrico é axialmente simétrico em relação ao eixo z, o parâmetro de assimetria η é zero e o tensor $V^{(2)}$ é dado por V_{zz} . Então, a hamiltoniana fica como:

$$k_Q = \sqrt{\frac{1}{5}} \pi T_0^{(2)} V_{zz} \quad (2.4.7)$$

Os elementos de matriz desta Hamiltoniana na representação m são dados por:

$$\langle Im | k_Q | Im' \rangle = E_m = \frac{3m^2 - I(I+1)}{4I(2I-1)} eQV_{zz} \quad (2.4.8)$$

A frequência de quadrupolo é definida como:

$$\omega_Q = -\frac{eQV_{zz}}{4I(2I-1)\hbar} \quad (2.4.9)$$

Quando $\eta = 0$ os estados são duplamente degenerados, uma vez que $+m$ e $-m$ dão o mesmo valor de energia E_m . Sendo assim, a interação não produz qualquer rotação do padrão de correlação integral, mas apenas uma atenuação. O fator de atenuação para interações quadrupolares estáticas é dado por:

$$G_{k_1 k_2}^{NN}(t) = \sum_n S_{nN}^{k_1 k_2} \cos n\omega_0 t \quad (2.4.10)$$

onde o índice n da somatória assume todos os valores inteiros e positivos. Os coeficientes $S_{nN}^{k_1 k_2}$ são dados por:

$$S_{nN}^{k_1 k_2} = \sum_{m, m'} \begin{pmatrix} I & I & k_1 \\ m' & -m & N \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I & I & k_2 \\ m' & -m & N \end{pmatrix} [(2k_1 + 1)(2k_2 + 1)]^{\frac{1}{2}} \quad (2.4.11)$$

sendo que a somatória inclui todos os termos m e m' que satisfazem a condição $|m^2 - m'^2| = n$ para I inteiro, e $2|m^2 - m'^2| = n$ para I semi-inteiro. Os valores numéricos dos coeficientes $S_{nN}^{k_1 k_2}$ estão tabulados na ref. 28. Assim, a correlação perturbada por um gradiente de campo elétrico axialmente simétrico, para um cristal simples não cúbico, pode ser calculada através das equações (2.4.10) e (2.4.11).

Já a influência de uma interação quadrupolar axialmente simétrica em uma amostra policristalina na correlação angular é representada pelos coeficientes de atenuação $G_{kk}(t)$ dados por:

$$G_{kk}(t) = \sum_{m,m'} \left(\begin{matrix} I & I & k \\ m' & -m & p \end{matrix} \right)^2 \exp[-3i(m^2 - m'^2)\omega_Q t] \quad (2.4.12)$$

onde ω_Q é a frequência quadrupolar dada pela eq. (2.4.9). A expressão (2.4.12) também pode ser escrita como:

$$G_{kk}(t) = \sum_n S_{kn} \cos(n\omega_Q t) \quad (2.4.13)$$

com:

$$S_{kn} = \sum'_{m,m'} \left(\begin{matrix} I & I & k \\ m' & -m & -m' + m \end{matrix} \right)^2 \quad (2.4.14)$$

No caso de spin $I = \frac{3}{2}$ para o estado intermediário, por exemplo, a interação quadrupolar separa este nível em três subníveis, cujas energias dependem do parâmetro de assimetria η . As frequências de transições entre estes subníveis no caso de uma amostra policristalina podem ser obtidas através da função correlação angular, como:

$$W(\theta, t) = \sum_k A_{kk} G_{kk}(t) P_k(\cos \theta) \quad (2.4.15)$$

A eq. (2.4.13), para $I = \frac{3}{2}$, pode ser reescrita de uma forma mais conveniente por:

$$G_{kk}(t) = S_{k0} + S_{k1} \cos \omega_1 t + S_{k2} \cos \omega_2 t + S_{k3} \cos \omega_3 t \quad (2.4.16)$$

onde os coeficientes S_{kn} são valores tabelados [28] e são funções de η .

Através do ajuste da curva teórica dada pela expressão acima com os valores experimentais de $G_{kk}(t)$, é possível obter parâmetros como a frequência de transição de menor energia (ω_1) e o parâmetro de assimetria do GCE(η). Assim, a partir destes valores, podemos extrair a frequência angular elétrica (ω_0) como função de ω_1 e η , e então, deduzir a frequência de quadrupolo ω_Q pela relação $\omega_Q = \frac{\omega_1}{6}$ que é válida para spin semi-inteiro. E usando a expressão (2.4.9) é possível obtermos o valor de V_{zz} e assim determinarmos o valor do tensor GCE.

2.5. Interações Magnéticas Estáticas

Quando um campo magnético \vec{B} age sobre uma amostra que emite radiações gama sucessivas, o spin nuclear precessiona em torno da direção do campo magnético \vec{B} com uma frequência ω_L , chamada frequência de Larmor. Se a permanência do núcleo no nível intermediário for longa o suficiente ($> 10^{-9}$ s), esta frequência é mensurável.

A hamiltoniana que descreve a interação do momento de dipolo magnético nuclear μ com o campo \vec{B} aplicado na direção do eixo $-z$ é:

$$K_B = -\vec{\mu} \cdot \vec{B} = -\mu_z B \quad (2.5.1)$$

onde $\vec{\mu} = g\vec{I}$ é o operador momento de dipolo magnético. Os elementos de matriz de K na representação de m são:

$$\langle Im|K|Im' \rangle = -B \langle Im|\mu_z|Im' \rangle \quad (2.5.2)$$

considerando que $\mu_z = gI_z$ e que a matriz interação é diagonal, temos:

$$E_m = \langle Im|K|Im \rangle = -B \frac{m}{[(2I+1)(I+1)I]^{\frac{1}{2}}} (I\|\mu\|I) \quad (2.5.3)$$

Com a definição convencional do momento magnético:

$$\mu = (II|\mu_z|II) = \frac{I}{[(2I+1)(I+1)I]^{\frac{1}{2}}} (I\|\mu\|I) \quad (2.5.4)$$

os autovalores são dados pela expressão:

$$E_m = -\frac{B\mu m}{I} \quad (2.5.5)$$

Assim podemos definir a frequência de Larmor ω_L , como:

$$\omega_L = \frac{E_{m+1} - E_m}{\hbar} = -\frac{B\mu}{\hbar I} = -g\mu_N \frac{B}{\hbar} \quad (2.5.6)$$

onde g é o fator giromagnético do estado intermediário e μ_N é o magneton nuclear ($\mu_N = 5,05 \times 10^{-24}$ erg/gauss).

Assim, através da eq. (2.5.6) pode-se determinar o campo magnético \vec{B} , bem como o momento magnético μ , se ao menos uma das duas grandezas já for conhecida.

Considerando uma amostra ferromagnética policristalina na ausência de campo magnético externo, sabemos que seus domínios magnéticos estão orientados ao acaso, e cada domínio tem uma função correlação angular dada pela eq. (2.3.9):

$$W(\theta, t) = \sum_k A_{kk} G_{kk}(t) P_k(\cos \theta)$$

O fator de perturbação $G_{kk}(t)$ escrito de uma forma mais conveniente é dado por:

$$G_{kk}(t) = \frac{1}{2k+1} \left[1 + 2 \sum_{n=1}^k \cos N\omega_L t \right] \quad (2.5.7)$$

Considerando que $A_{44}G_{44}(t) \ll A_{22}G_{22}(t)$ traçamos uma curva de $A_{22}G_{22}(t)$, através da qual podemos determinar o valor da frequência ω_L , uma vez que o período da curva é $T = \frac{2\pi}{\omega_L}$. A curva teórica de $A_{22}G_{22}(t)$ é mostrada na fig. 2.3. Conseqüentemente, através da equação (2.5.6) determinamos o valor do CHM.

Já na presença de um campo magnético externo polarizador, os domínios magnéticos da amostra se alinham na direção do campo. Considerando que o campo magnético é aplicado na direção perpendicular ao plano dos detectores podemos escrever a função correlação angular como:

$$W(\theta, t, \pm B) = 1 + \sum_{n=2}^{k=\text{máx}} b_n \cos [n(\theta \mp \omega_L t)] \quad (2.5.8)$$

Correlação Angular gama-gama

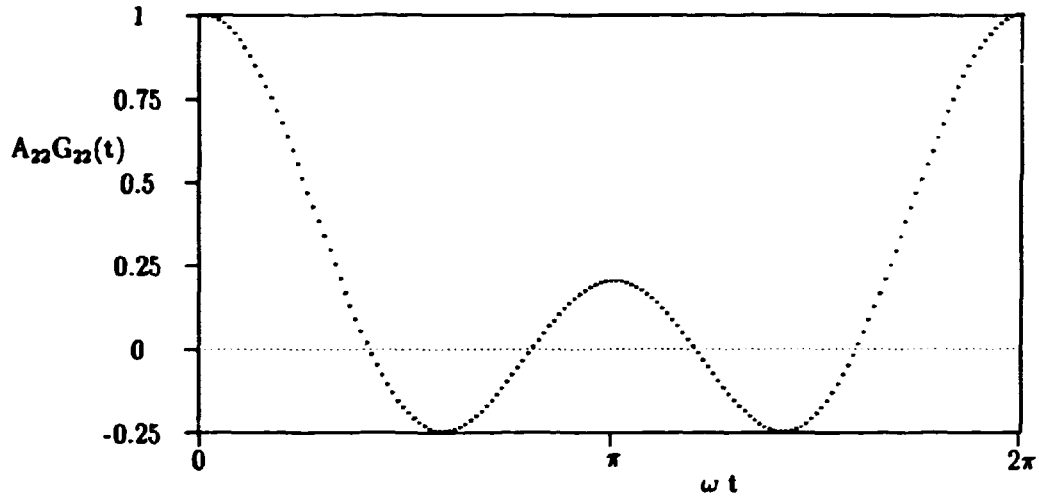


Figura 2.3: Curva teórica de $A_{22}G_{22}(t)$

onde θ é o ângulo formado entre os detectores e, para $k_{\text{máx}} = 4$ os coeficientes b_n são dados por:

$$b_2 = \frac{\frac{3}{4}A_{22} + \frac{5}{16}A_{44}}{1 + \frac{1}{4}A_{22} + \frac{9}{64}A_{44}} \quad (2.5.9)$$

$$b_4 = \frac{\frac{35}{64}A_{44}}{1 + \frac{1}{4}A_{22} + \frac{9}{64}A_{44}} \quad (2.5.10)$$

Assim, através de (2.5.8) podemos definir a taxa de contagem envolvendo coincidências entre duas radiações γ da cascata em um ângulo θ_D :

$$R(t, \theta_D) = 2 \left[\frac{W(\theta_D, t, +\vec{B}) - W(\theta_D, t, -\vec{B})}{W(\theta_D, t, +\vec{B}) + W(\theta_D, t, -\vec{B})} \right] \quad (2.5.11)$$

sendo:

$W(\theta_D, t, \pm\vec{B})$ - número de coincidências observadas em $\theta = \theta_D$ com o sentido do campo magnético aplicado para cima (sinal +) e para baixo (sinal -).

Utilizando $\theta_D = 135^\circ$ e para $A_{22} \gg A_{44}$ a razão $R(t)$ se reduz para:

$$R(t, 135^\circ) = -2b_2 \text{sen}(2\omega_L t) \quad (2.5.12)$$

Correlação Angular gama-gama

onde o período da curva é $T = \frac{\pi}{\omega_L}$.

O período desta curva é a metade do período da curva obtida nas medidas feitas em ausência de campo magnético externo polarizador, pois quando a precessão de todo o sistema de spins alinhados atinge 180° o padrão correlação angular se repete e na ausência do campo externo o sistema tem que precessionar 360° para atingir a situação do alinhamento inicial.

A curva teórica da função $R(t)$ é mostrada na fig. 2.4.

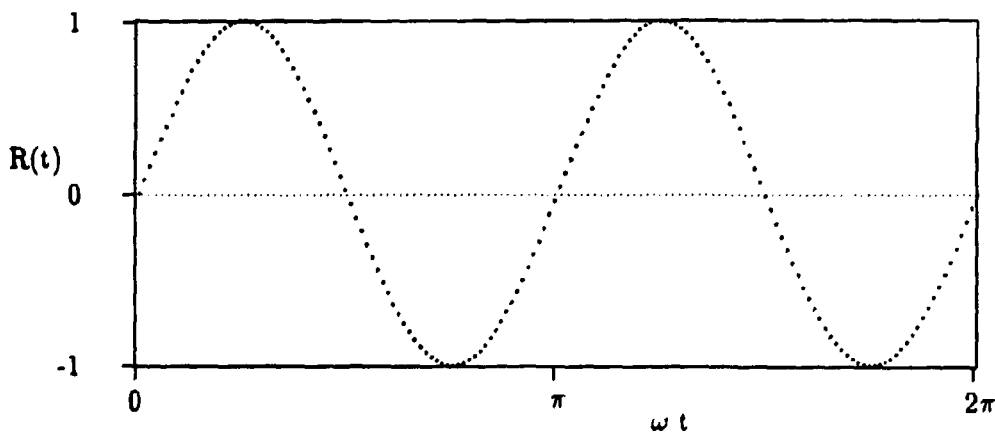


Figura 2.4: Curva teórica de $R(t)$

A função $R(t)$ depende de $\sin 2\omega_L t$, então, para $t \rightarrow 0$, a função $R(t)$ pode ser aproximada para:

$$R(135^\circ, t) = -4b_2\omega_L t \quad (2.5.13)$$

Assim, se $R(t)$ e b_2 tiverem o mesmo sinal, a frequência de Larmor ω_L será negativa, e se o sinal do fator-g for positivo o produto $g.B$ terá um sinal positivo. Agora, se $R(t)$ e b_2 tiverem sinais opostos, ω_L terá um sinal positivo e o produto $g.B$ um sinal negativo.

Desta maneira podemos determinar o sinal do CHM presente na amostra uma vez que o fator-g do nível intermediário é conhecido.

Capítulo 3

Equipamentos Utilizados e Procedimentos Experimentais

3.1. Equipamentos Utilizados

3.1.1. Espectrômetro Automático de Correlação Angular gama-gama Perturbada

As medidas foram realizadas em um espectrômetro automático de correlação angular que consiste de uma mesa de aço circular e fixa com dois detetores de BaF_2 de dimensões $2'' \times 2''$, sendo um dos detetores fixo na mesa e o outro móvel (figura 3.1), associados à eletrônica convencional para medidas de coincidências gama-gama atrasadas (figura 3.2). Os detetores são acoplados à fotomultiplicadoras Philips XP2020/Q e estão protegidos por colimadores de chumbo cônicos com abertura de 2,5 cm de diâmetro para evitar a detecção de fótons espalhados.

O movimento do detetor móvel é controlado por um sistema lógico digital, determinando ângulos pré-estabelecidos por chaves de parada. Estas chaves também acionam microchaves instaladas no sistema que têm por finalidade selecionar memórias distintas no multicanal para cada ângulo. A amostra é colocada no centro da mesa equidistante aos detetores.

As contagens são realizadas em um tempo determinado na unidade de controle através de um Dual Counter/Timer 994 ORTEC. Após o término deste tempo, a unidade de controle envia um sinal ao "scaler-gate", o qual ocasiona a parada dos "scalers" que armazenam as contagens dos dois detetores e das coincidências.

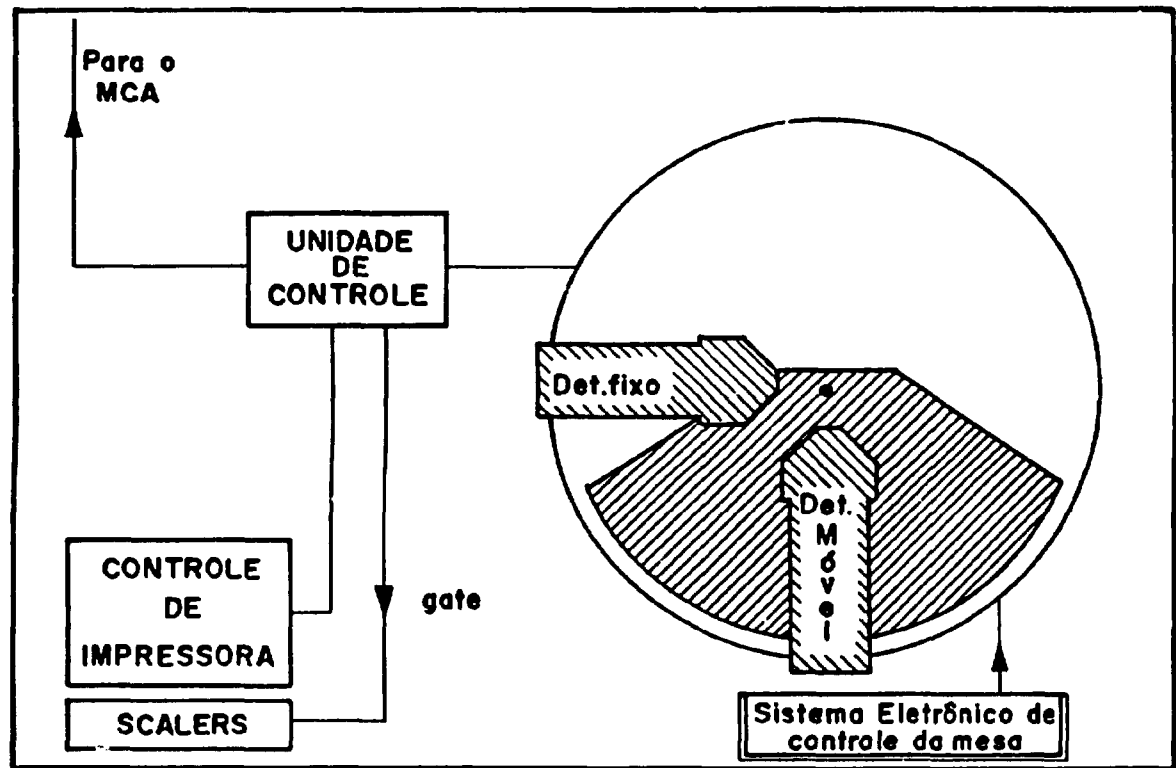


Figura 3.1: Esquema indicativo da mesa automática

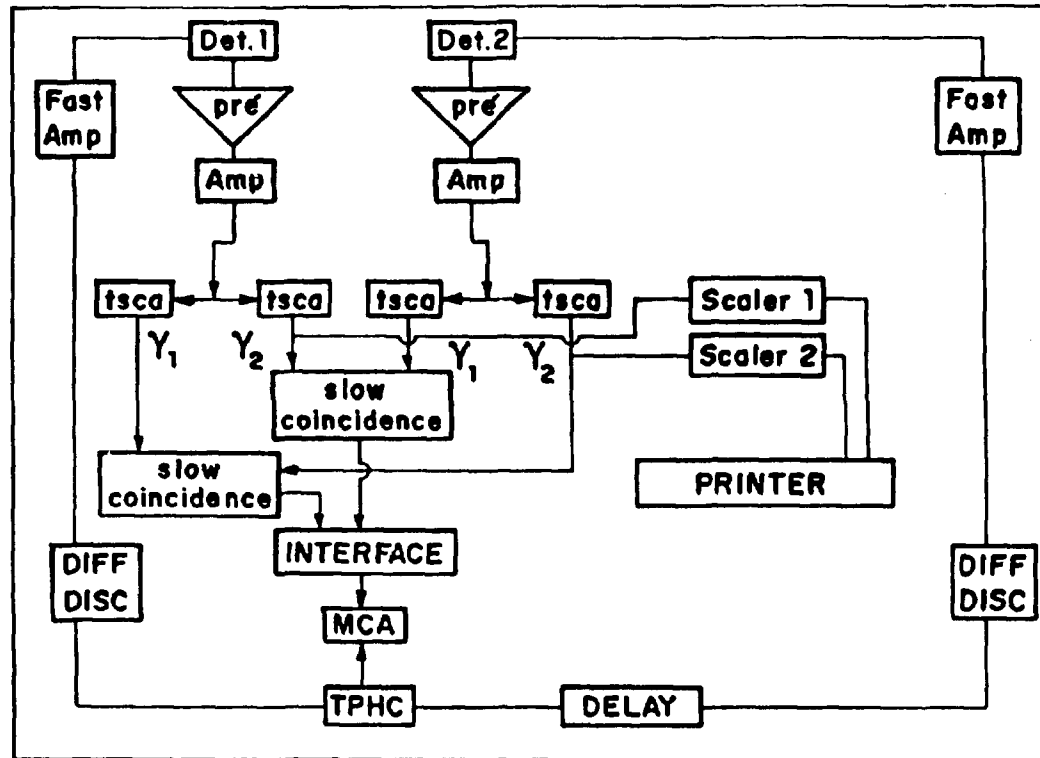


Figura 3.2: Sistema eletrônico diferencial para dois detectores

Equipamentos Utilizados e Procedimentos Experimentais

Os espectros das coincidências gama-gama atrasadas são enviados às memórias do multicanal. Este procedimento é feito automaticamente para cada ângulo selecionado.

As bases dos tubos fotomultiplicadores foram construídas no Departamento de Eletrônica do IPEN; e em cada uma existem duas saídas: o anodo, cuja saída fornece um sinal relativo ao tempo de chegada do fóton no detetor (ramo do tempo); e o dinodo que fornece um pulso positivo proporcional à energia do raio gama (ramo da energia). Os ramos do tempo e energia possuem uma linha para cada detetor. Os pulsos provenientes do anodo são amplificados em um "Quad Amplifier" EGG AN201/N e analisados em um discriminador diferencial EGG TD101/N no modo "ungated LLT" ("Lower Level Timing"). Este discriminador fornece um pulso lógico relacionado ao tempo. Os pulsos lógicos provenientes do detetor fixo (detetor nº 1) e do detetor móvel (detetor nº 2) são enviados à um "Time to Pulse Height Converter" (TPHC) ORTEC modelo 437A. Porém, antes que os pulsos lógicos provenientes do detetor móvel cheguem ao TPHC, estes passam por uma linha de atraso ("Delay box" EGG DB463) e sofrem um atraso convenientemente escolhido.

Os pulsos provenientes do detetor número 1, que correspondem ao primeiro raio gama da cascata (133 keV), são chamados de pulsos de "start"; e os pulsos provenientes do detetor número 2, que correspondem ao segundo raio gama da cascata (482 keV), são chamados de pulsos de "stop".

O TPHC produz um sinal que é proporcional à diferença em tempo entre a chegada dos pulsos de "start" e "stop", a qual é igual a diferença em tempo entre a emissão do primeiro e do segundo raio gama da cascata por um mesmo núcleo. Este sinal é enviado, então, ao analisador multicanal ORTEC modelo 6240B onde é digitalizado e armazenado no canal correspondente.

Os pulsos relativos à energia dos raios gama passam inicialmente por um pré-amplificador ORTEC modelo 113 e em seguida por um amplificador ORTEC modelo 571, para cada detetor. Os pulsos lineares resultantes entram em dois analisadores monocanais TSCA ORTEC modelo 420A, sendo que um seleciona o fotopico do γ_1 (janela do γ_1) e o outro o fotopico do γ_2 (janela do γ_2). Estes produzem pulsos lógicos correspondentes às alturas de pulsos dentro de uma região selecionada.

Equipamentos Utilizados e Procedimentos Experimentais

A seguir os pulsos selecionados na energia do γ_1 do detetor fixo juntamente com os pulsos selecionados na energia do γ_2 do detetor móvel entram em uma unidade de coincidência lenta ORTEC modelo 409 com 1 μ s de tempo de resolução. Os pulsos lógicos da saída da unidade de coincidência são usados como "gate" no multicanal para evitar que um pulso proveniente do TPHC devido à raios gama emitidos por núcleos diferentes seja aceito pelo multicanal.

Com a finalidade de aumentarmos a estatística das medidas utilizamos cada detetor como "start" e "stop" simultaneamente. Para isso foi usada uma interface especialmente construída no Departamento de Eletrônica do IPEN, que permite enviar os sinais de coincidências de cada par "start-stop" dos detetores para duas memórias distintas do analisador multicanal. As memórias no multicanal são divididas em quatro grupos de 1024 canais cada e o espectro obtido corresponde ao espectro de coincidências gama-gama atrasadas. Os resultados acumulados no multicanal são transferidos para um microcomputador PS2 modelo 30 286 IBM através de uma placa de saída serial digital localizada no multicanal e, então, armazenados em disquetes.

Experimentos de Correlação Angular Perturbada Diferencial em Tempo (técnica mais conhecida como "Time Diferencial Perturbed Angular Correlation" - TDPAC) dependem da alta qualidade de espectros de coincidências atrasadas para raios gama que são detetados com boa resolução em tempo e energia. Muitos trabalhos experimentais têm sido feitos com cintiladores NaI(Tl); e estes detetores são conhecidos pela boa resolução em energia, alta eficiência e uma razoável resolução em tempo.

Recentemente foi introduzido o detetor BaF₂ como um material cintilador muito atrativo para detecção de raios gama devido às seguintes características [29]:

- a. A componente rápida da cintilação de luz à 220 nm oferece um tempo de resolução comparável aos rápidos cintiladores plásticos.
- b. A resolução em energia de pequenos cristais é somente da ordem de 30% menor que o detetor NaI(Tl).
- c. A eficiência específica de raios gama é alta devido à densidade de 4,88 g/cm³ (~ 30% maior que o NaI(Tl)).

Equipamentos Utilizados e Procedimentos Experimentais

Essas características, ainda, são combinadas com o fato do cristal ser não higroscópico. Sendo assim, BaF_2 pode ser superior ao $NaI(Tl)$ em todas as aplicações onde uma resposta rápida em tempo é essencial.

Algumas propriedades físicas destes detectores estudadas por Farukhi e Swinehart [30] são comparadas com as propriedades dos detectores $NaI(Tl)$ na tabela 3.1:

Propriedades	BaF_2	$NaI(Tl)$
Constante de decaimento ps (comp. de onda nm)	600(220) ³¹	
Constante de decaimento ns (comp. de onda nm)	630(325)	250(420)
índice de refração	1,495	1,850
densidade(g/cm ³)	4,88	3,67
Higroscópico	não	muito

Tabela 3.1: Propriedades físicas dos cintiladores BaF_2 e $NaI(Tl)$

Para efeito de comparação, podemos observar os resultados apresentados na ref. 32 que mostram um confronto entre as medidas de TDPAC com os detectores $NaI(Tl)$ e BaF_2 apresentados nas figura 3.3 e 3.4 respectivamente.

As figuras representam os espectros de $A_{22}(t)$ de duas amostras para dois tipos de detectores. Através das figuras podemos notar que os espectros obtidos com o detector BaF_2 possuem uma resolução em tempo muito melhor, pois neles é possível observarmos detalhes, que podem representar aspectos físicos importantes, não observados nos espectros obtidos com o detector $NaI(Tl)$.

Também para efeito de comparação mostramos nas figuras 3.5 e 3.6 os espectros de energia do ^{181}Hf feitos no laboratório para ambos os detectores. E podemos concluir o que já foi dito anteriormente, que o detector BaF_2 tem resolução em energia comparável ao $NaI(Tl)$.

Sendo assim, justificamos o uso dos detectores BaF_2 no lugar do $NaI(Tl)$ no espectrômetro e aproveitamos a oportunidade de informar que este foi o primeiro trabalho concluído no laboratório usando os novos detectores. Anteriormente eram utilizados, no espectrômetro, três detectores de $NaI(Tl)$ e a resolução em tempo

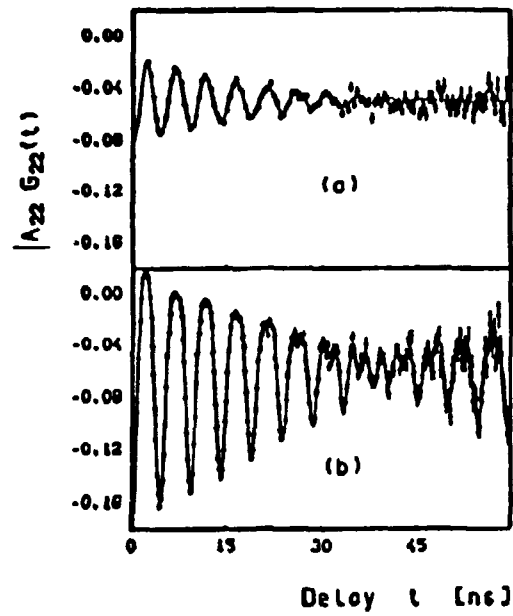


Figura 3.3: Espectro de $A_{22}(t)$ da amostra $\text{HfF}_4 \cdot \text{HF} \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ medida à temperatura ambiente usando: (a) Detetor $\text{NaI}(\text{Tl})$ e (b) Detetor BaF_2

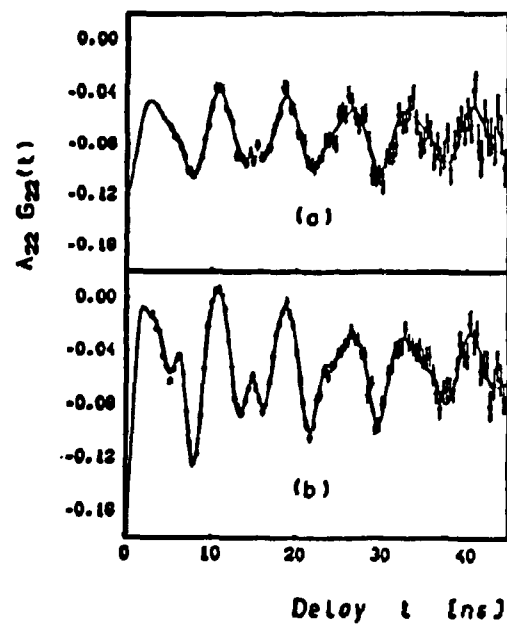


Figura 3.4: Espectro de $A_{22}(t)$ da amostra HfO_2 medida com: (a) Detetor $\text{NaI}(\text{Tl})$ e (b) Detetor BaF_2

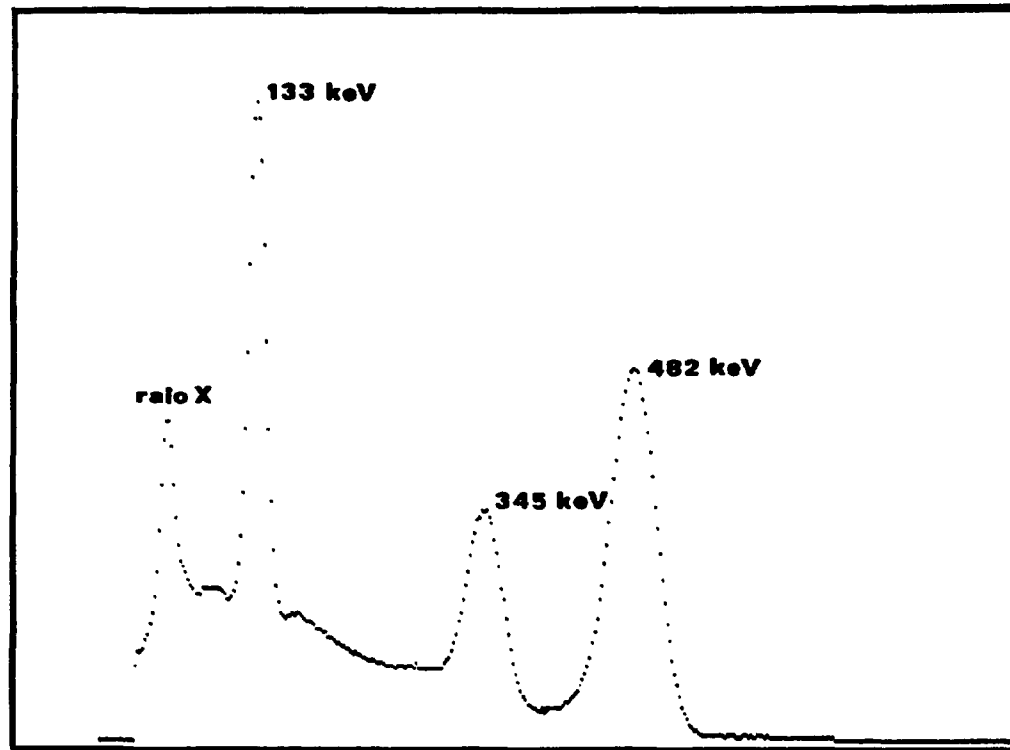


Figura 3.5: Espectro gama no decaimento do ^{181}Hf obtido com detector NaI(Tl)

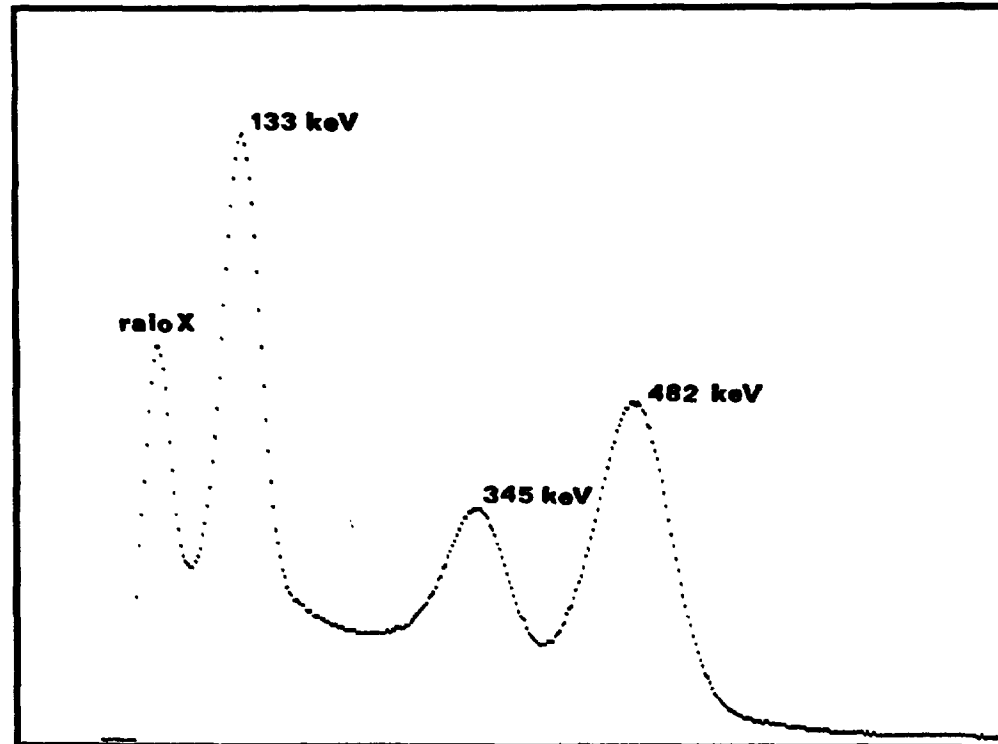


Figura 3.6: Espectro gama no decaimento do ^{181}Hf obtido com detector BaF_2

do sistema era aproximadamente 2 ns. Atualmente são utilizados dois detetores de BaF₂ e a resolução em tempo do sistema é menor que 1 ns.

3.1.2. Sistema para Medidas à Temperatura Ambiente

Nas medidas à temperatura ambiente a amostra é colocada em um porta-amostra de lucite que é encaixado em um pino situado no centro da mesa de correlação angular e que gira com uma velocidade da ordem de 2 rpm afim de diminuir efeitos de assimetria na amostra.

3.1.3. Sistema para Medidas à Altas Temperaturas

Devido ao fato da temperatura de Curie de algumas ligas de Heusler ser acima da temperatura ambiente existe a necessidade de efetuarmos medidas à altas temperaturas. Sendo assim, o laboratório dispõe de um forno chamado “dedo quente”, o qual pode ser visualizado na fig. 3.7. O “dedo quente” consiste de um porta-amostra de Cobre que é rosqueado em um suporte também de Cobre por onde passa uma resistência que é ligada à uma fonte de corrente variável. O conjunto porta-amostra e suporte de Cobre é envolvido por um tubo pirex onde é feito vácuo e a temperatura da amostra é medida através de um termopar de “chromel-alumel”.

3.1.4. Sistema para Medidas à Baixas Temperaturas

Para as medidas à baixas temperaturas dispomos de dois dispositivos diferentes. Um deles consiste de um criostato do tipo “garrafa térmica” com capacidade de armazenar aproximadamente 3 litros de Nitrogênio líquido com autonomia de ~24 horas. Neste dispositivo a amostra é colocada em um porta-amostra de Cobre preso em uma haste de madeira que se fixa na tampa da garrafa, permanecendo equidistante aos dois detetores. A fig. 3.8 ilustra o esquema do criostato utilizado nas medidas à temperatura do Nitrogênio líquido.

Para as medidas efetuadas à temperaturas intermediárias entre a temperatura ambiente e a do Nitrogênio líquido utiliza-se um sistema de “dedo frio” como aquele mostrado na fig. 3.9. Neste dispositivo, a amostra é colocada em um porta amostra de Cobre rosqueado em um suporte de Alumínio que é isolado por anéis

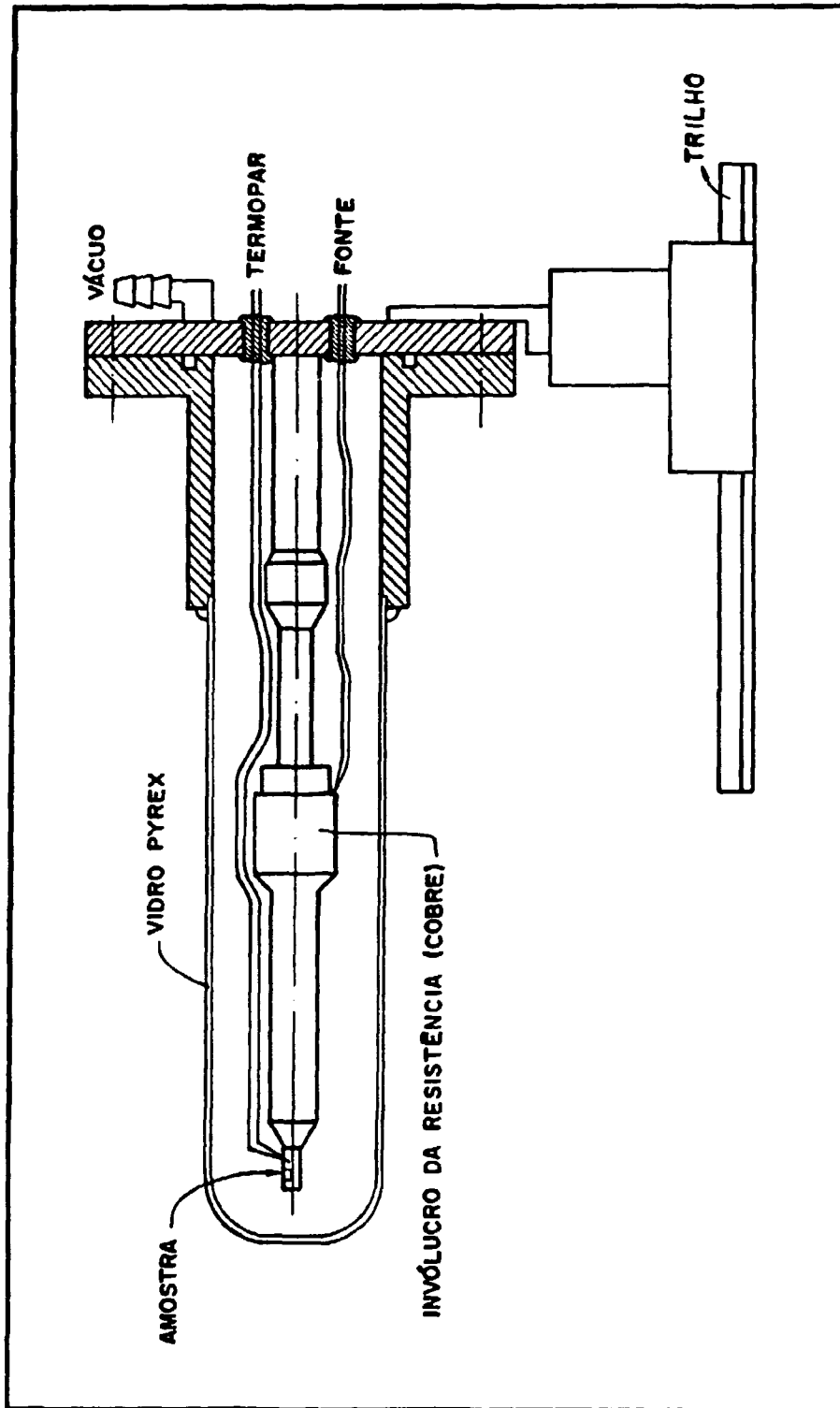


Figura 3.7: Dedo quente

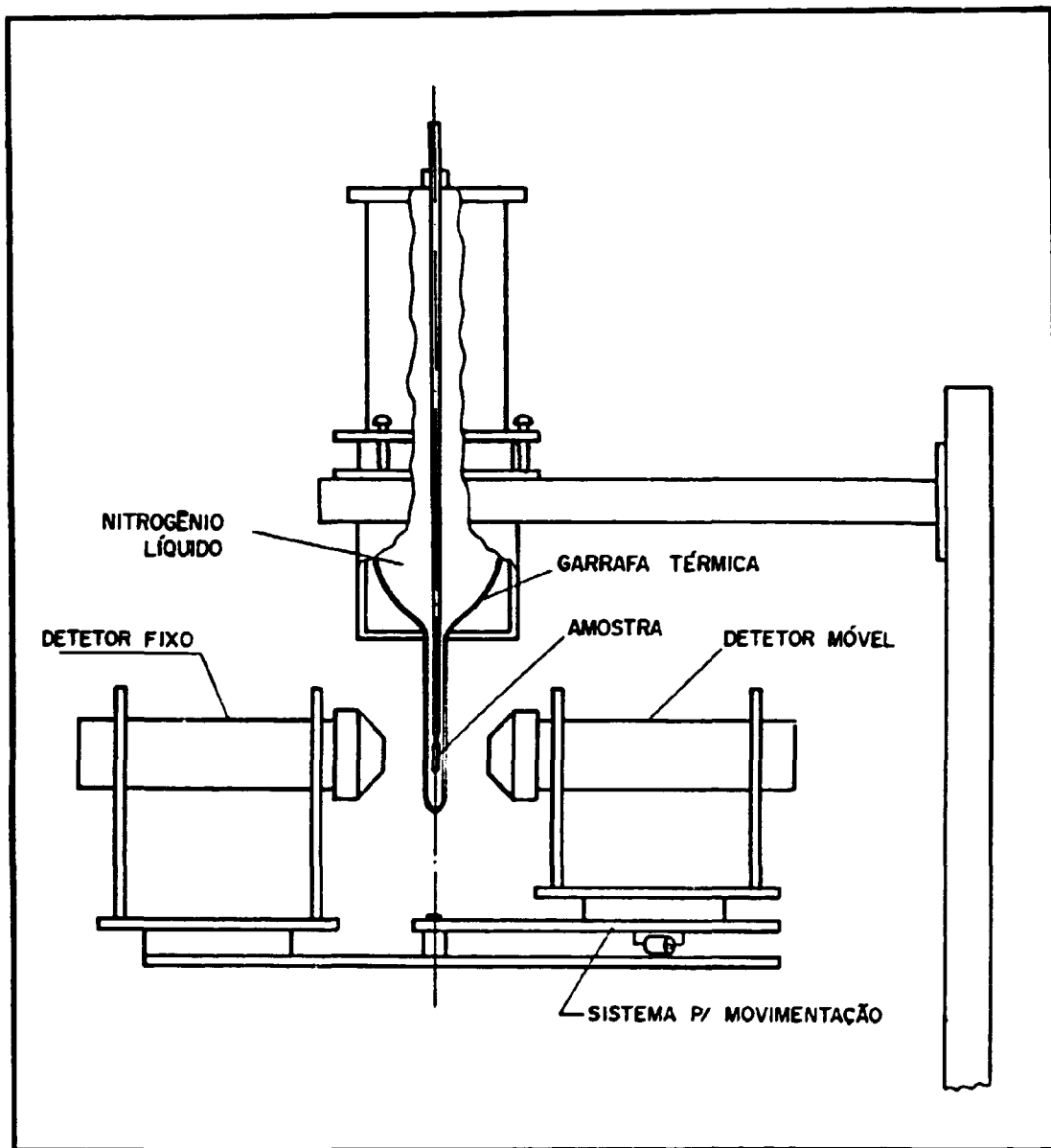


Figura 3.8: Criostato usado nas medidas à 77 K

Equipamentos Utilizados e Procedimentos Experimentais

de isolamento térmico. Este está localizado dentro de um tubo pirex espelhado internamente onde é feito o vácuo. O conjunto é mergulhado em um criostato que contém Nitrogênio líquido e a medida da temperatura é feita através de um termopar localizado próximo à amostra. A ponta do tubo pirex tem um diâmetro de ~10 mm que pode ser colocada entre os pólos de um eletroímã que produz o campo externo. O arranjo fornece temperaturas da ordem de 140 K.

3.1.5. Eletroímã

Como mencionado anteriormente, para se medir o sinal do campo hiperfino magnético é necessário polarizar a amostra por meio de um campo magnético externo. Para tal dispomos de um eletroímã onde as bobinas são refrigeradas à óleo. A distância entre seus pólos é variável, sendo que a distância de ~10 mm obtemos campos com intensidades entre 4 e 5 kGauss. O controle da intensidade do campo é feito através de uma fonte de corrente e de um gaussímetro.

O eletroímã é, então, fixado no centro da mesa de correlação Angular entre os detectores posicionados em 135° entre si. O esquema do eletroímã é mostrado na figura 3.10.

3.2. Confeccção das Ligas de Heusler

As ligas de Heusler Co_2ScSn , Co_2ScGa , Co_2HfSn foram preparadas com massa ~ 0,5 gramas cada com componetes metálicos com 99,9 % de pureza em proporções estequiométricas. Para isso, os componentes metálicos eram pesados, misturados uniformemente e em seguida prensados na forma de pastilhas. Estas, então, eram fundidas em forno de arco sob atmosfera de Argônio formando as ligas metálicas.

Após a fusão em forno de arco, as amostras passavam por alguns tratamentos térmicos como a **homogeneização**, que consiste de um aquecimento à uma temperatura determinada durante um período escolhido seguido de resfriamento lento. Em seguida estas amostras eram trituradas e após sofriam um tratamento térmico chamado **annealing**, que é baseado no aquecimento da amostra à uma temperatura estabelecida durante um determinado período, também seguido de resfriamento lento.

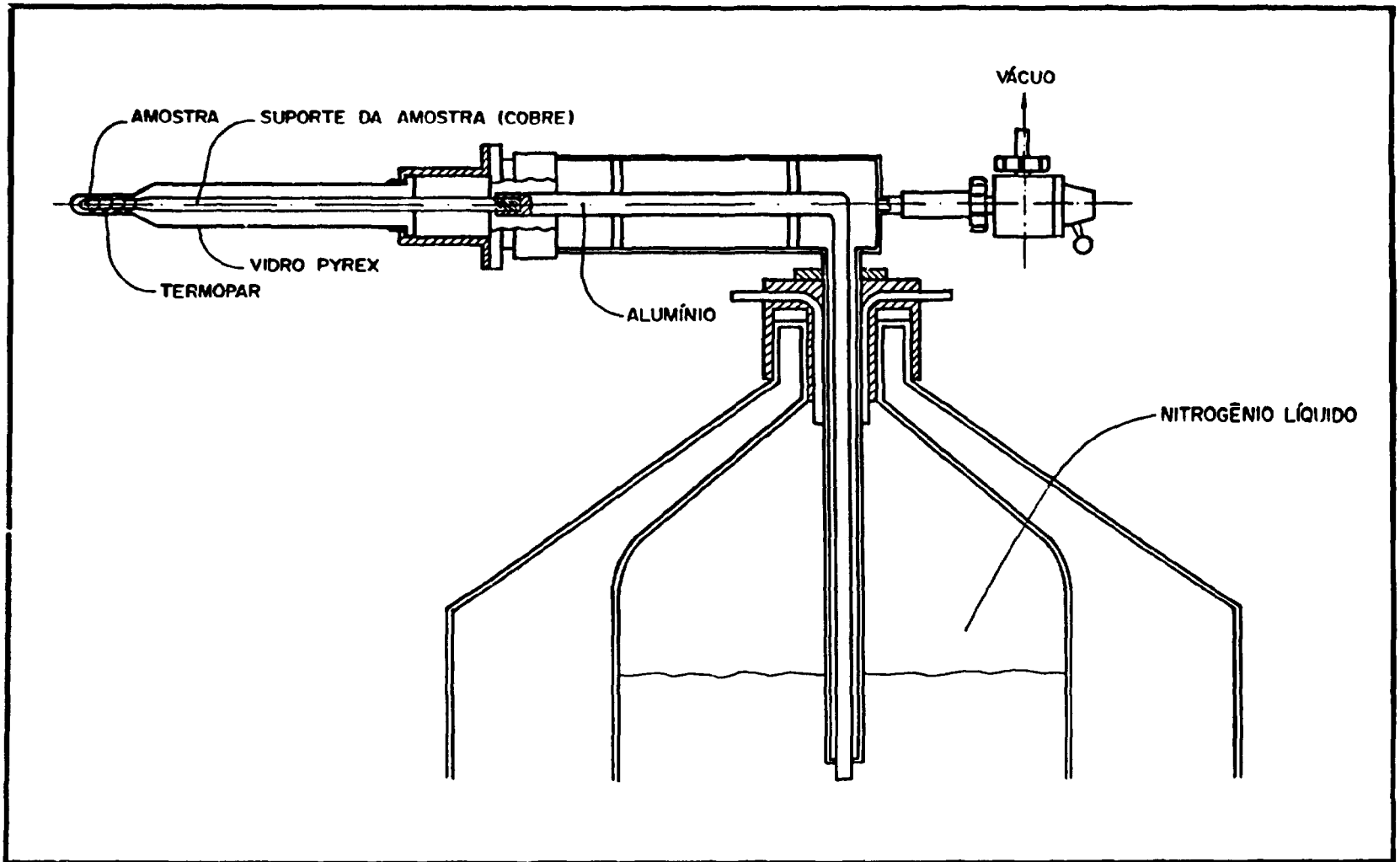


Figura 3.9: Dedo frio

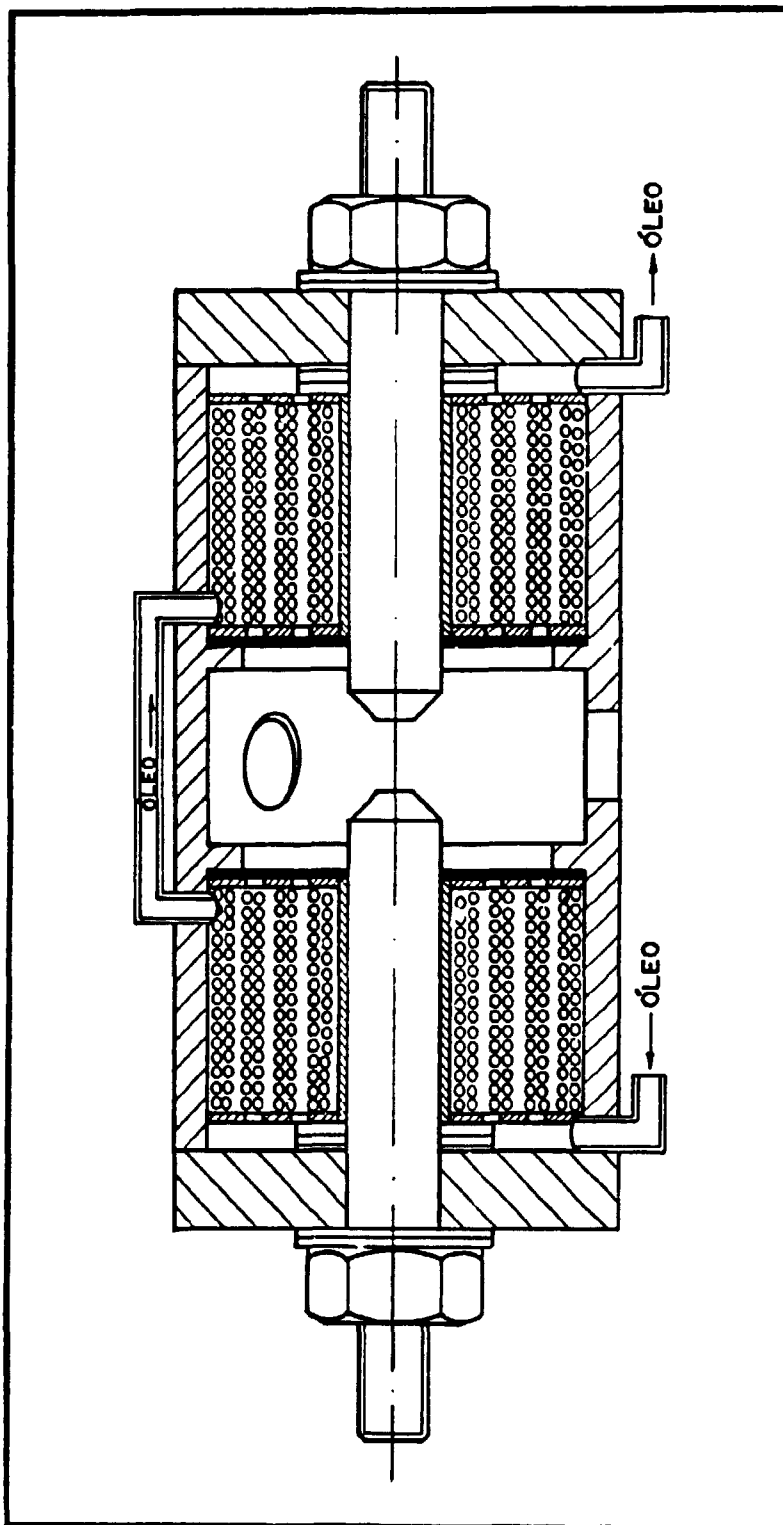


Figura 3.10: Eletrovalvã refrigerado à óleo

A homogeneização tem a finalidade de reagrupar a estrutura cristalina e o "annealing" tem como objetivo eliminar as tensões introduzidas na rede cristalina pela trituração. Os tratamentos térmicos podem ser feitos tanto em vácuo como em atmosfera de gás inerte.

Como no presente trabalho foram estudadas três ligas de Heusler, iremos resumir separadamente o tratamento térmico de cada uma:

- liga Co_2ScSn Para esta liga foi feita uma pastilha que sofreu um pré-cozimento à $300\text{ }^\circ\text{C}$ em vácuo durante 2 horas. Após esta foi fundida em forno de arco sob atmosfera de Argônio formando a liga. Esta liga não era magnética à temperatura ambiente e sim à temperatura do Nitrogênio líquido, uma vez que a sua temperatura de Curie (T_c) é 268 K [33]. Em seguida a liga sofreu o processo de homogeneização à $800\text{ }^\circ\text{C}$ durante 72 horas sob atmosfera de Argônio; e após foi triturada. Então, foi feito "annealing" à $700\text{ }^\circ\text{C}$ durante 72 horas também sob atmosfera de Argônio.
- liga Co_2ScGa Após a fusão da pastilha em forno de arco, a liga foi homogeneizada durante 24 horas à aproximadamente $850\text{ }^\circ\text{C}$. Em seguida a liga foi triturada e, então, foi feito "annealing" sendo que a temperatura foi abaixada lenta e gradativamente conforme mostra a tabela 3.II.

Temperatura ($^\circ\text{C}$)	Tempo (h)
825	72
550	24
350	12

Tabela 3.II: Tratamento Térmico "Annealing" - Amostra Co_2ScGa

Esta liga era magnética à temperatura do Nitrogênio líquido antes do tratamento térmico e após o mesmo esta era magnética à temperatura ambiente. Mas é importante informar que a T_c desta liga é desconhecida.

Para esta amostra foram efetuadas algumas medidas de correlação angular cujos resultados não foram satisfatórios uma vez que as medidas realizadas

em várias temperaturas diferentes apresentaram o mesmo aspecto. Sendo assim, foi feita uma liga Co_2ScGa que após prensada foi fundida em forno de arco sem qualquer tratamento térmico posterior. Esta foi a amostra utilizada para as medidas de correlação angular cujos resultados são apresentados no próximo capítulo. Esta amostra era magnética à temperatura do Nitrogênio líquido.

-liga Co_2HfSn Para a amostra Co_2HfSn foi feita uma pastilha que foi fundida em forno de arco sob atmosfera de Argônio formando a liga metálica que era magnética à temperatura ambiente, pois sua T_c é ~ 394 K [34, 35]. Em seguida a liga sofreu um processo de homogeneização à aproximadamente 900 °C durante 24 horas em vácuo e após foi triturada. Então, foi feito “annealing” à 800 °C durante 72 horas em atmosfera de Argônio.

Após a confecção das ligas, estas foram analisadas pela técnica de difração de raios-x para verificar se as mesmas haviam atingido a estrutura cúbica de Heusler $L2_1$.

3.3. Análise das ligas de Heusler pela técnica de Difração de Raios-x

Com a finalidade de determinar a estrutura das ligas de Heusler é utilizada a técnica de difração de raios-x. Assim, sabemos que a radiação é refletida em um ângulo θ obedecendo a lei de Bragg:

$$2d_{hkl}\text{sen}\theta = n\lambda \quad (3.3.1)$$

onde:

d_{hkl} ... distância interplanar

λ ... comprimento de onda da radiação

Para sistemas cúbicos a distância interplanar é dada por

$$d_{hkl}^2 = \frac{a^2}{(h^2 + k^2 + l^2)} \quad (3.3.2)$$

onde a é o parâmetro de rede e h,k,l são os índices de Miller.

Assim, substituindo (3.3.2) em (3.3.1) temos:

$$\sin^2 \theta = \frac{\lambda^2}{4a^2} (h^2 + k^2 + l^2) \quad (3.3.3)$$

Entretanto, nem todas as combinações de h,k,l são possíveis devido à ocorrência de interferência destrutiva entre as ondas espalhadas na célula unitária. Tratando-se das ligas de Heusler, as reflexões de Bragg somente são diferentes de zero quando h,k,l forem todos pares ou ímpares. Assim, utilizando-se a equação (3.3.3) podemos fazer a indexação dos planos de Miller traçando uma curva de $\sin^2 \theta \times (h^2 + k^2 + l^2)$ onde a tangente fornece o valor do parâmetro de rede a , sendo λ um valor conhecido.

3.4. Confeção das ligas de Heusler com Ponta de Prova Radioativa

O núcleo radioativo escolhido como ponta de prova deve ter as mesmas propriedades químicas do elemento localizado no sítio que se deseja medir a interação. Sendo assim, a radiação emitida por este núcleo incorporado carrega as informações sobre a interação hiperfina que age naquele sítio.

Logo após a caracterização das ligas de Heusler Co_2ScSn , Co_2ScGa e Co_2HfSn foram preparadas as amostras destas ligas com a ponta de prova. Esta ponta de prova, que substitui menos de 1 % dos átomos de Sc e Hf nestas ligas, era prensada juntamente com os componentes metálicos formando as pastilhas que eram fundidas em forno de arco sob atmosfera de Argônio formando, então, as ligas metálicas. Em seguida, estas ligas passavam pelos tratamentos térmicos descritos anteriormente.

O núcleo utilizado como ponta de prova é o ^{181}Hf obtido através da reação nuclear $^{180}\text{Hf}(n, \gamma) ^{181}\text{Hf}$. O ^{181}Hf decai por β^- para ^{181}Ta com uma meia vida de 42,5 dias, sendo o esquema de decaimento radioativo simplificado mostrado na figura 3.11 [36].

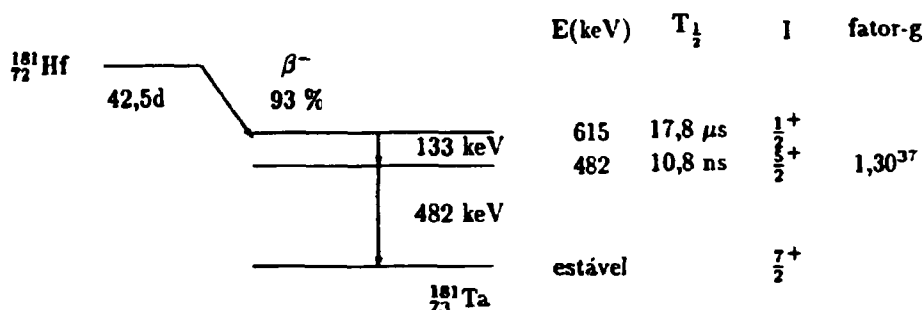


Figura 3.11: Esquema de decaimento radioativo simplificado do ^{181}Hf

Para esta cascata os coeficientes de correlação angular gama-gama não perturbada são muito bem conhecidos, apresentando os seguintes valores [38, 39]:

$$A_{22} = -0,282 \pm 0,006 \quad (3.4.1)$$

$$A_{44} = -0,065 \pm 0,003 \quad (3.4.2)$$

3.5. Medidas de Correlação Angular Gama-Gama Perturbada Diferencial

Para as medidas de correlação angular gama-gama perturbada utilizamos a cascata gama 133-482 keV do ^{181}Ta , conforme o esquema de decaimento simplificado mostrado acima.

As medidas foram realizadas em três condições diferentes para as amostras. Inicialmente foram feitas medidas acima da temperatura de Curie (T_c) de cada amostra (fase paramagnética), após foram efetuadas medidas abaixo da T_c de cada amostra (fase ferromagnética), e então, medidas abaixo da T_c na presença de campo magnético externo.

As medidas feitas acima da temperatura de Curie nos fornecem informações à respeito das interações quadrupolares, caso estejam presentes, no sítio do ^{181}Ta ; enquanto que as medidas efetuadas abaixo da T_c permitem determinar

a frequência de Larmor e conseqüentemente o valor absoluto do CHM naquele sítio; e as medidas efetuadas abaixo da T_c com polarização externa permitem determinar o sinal do CHM.

Para a liga Co_2ScSn cuja T_c é 268 K foram realizadas medidas à temperatura ambiente (fase paramagnética), à temperatura do Nitrogênio líquido (fase ferromagnética) e à temperatura de 140 K com campo magnético externo polarizador.

Para a liga Co_2ScGa cuja T_c é desconhecida foram efetuadas medidas à temperatura ambiente e à 77 K.

Já, para a liga Co_2HfSn cuja T_c é da ordem de 394 K foram realizadas medidas à 673 K (fase paramagnética), à temperatura ambiente (fase ferromagnética) e à temperatura ambiente com campo magnético externo polarizador.

Para todas as medidas efetuadas na ausência de campo externo, a tomada de dados foi feita com os detetores posicionados à 90° e 180° entre si. Inicialmente, era escolhido um intervalo de tempo determinado (~ 6 horas) em que o detetor móvel ficava posicionado à 180° em relação ao detetor fixo. Durante este intervalo de tempo duas memórias do analisador multicanal acumulavam espectros de coincidências gama-gama para este par de detetores. Ao terminar este intervalo, o detetor móvel se posicionava automaticamente à 90° em relação ao detetor fixo utilizando as outras duas memórias do multicanal para acúmulo dos espectros de coincidências. A cada intervalo de 24 horas os espectros obtidos no multicanal eram transferidos para o microcomputador e armazenados em disquetes. A tomada de dados foi de aproximadamente 48 horas para as amostras na fase paramagnética e aproximadamente 96 horas para as amostras na fase ferromagnética.

Na presença de campo magnético externo, a tomada de dados foi feita com os detetores posicionados à 135° entre si. As contagens eram acumuladas em duas memórias do multicanal durante um intervalo de tempo previamente estabelecido com o campo magnético externo num sentido também determinado previamente. No final deste intervalo de tempo, era enviado um sinal pelo sistema eletrônico que possibilitava a inversão do campo externo, bem como a troca de memórias do multicanal. Os dados acumulados no multicanal também eram armazenados em disquetes à cada 24 horas. A tomada de dados com o campo magnético polarizador

foi, em média, 72 horas para cada amostra e o campo magnético aplicado foi da ordem de 5 kGauss.

3.6. Tratamento de Dados e Cálculo dos Coeficientes de Correlação Angular Gama-Gama Perturbada Diferencial

Após o término de cada tomada de dados fazíamos uma verificação do espectro “prompt” para averiguarmos se não estava ocorrendo variações no espectro de coincidências. Para verificarmos a posição do pico do espectro “prompt” utilizamos uma fonte de ^{22}Na emissor de um pósitron que se aniquila com um elétron emitindo dois raios gama de 511 keV cada no ângulo de 180° entre si ;ou ainda utilizamos a própria fonte de ^{181}Hf deslocando apenas a janela da linha de “stop” para a energia de 345 keV.

Os espectros de coincidências gama-gama atrasadas em um mesmo ângulo que estavam armazenados nos disquetes eram somados deslocando, se necessário, cada espectro em relação à posição do pico do espectro “prompt”. Os novos arquivos acumulados de cada conjunto de detetores foram normalizados pelas contagens acumuladas nos “scallers” em relação à cada ângulo. A normalização era feita para corrigir efeitos de descentralização das amostras ou variação nas janelas. Também foram determinadas as coincidências acidentais que foram subtraídas dos espectros totais afim de obtermos apenas espectros de coincidências verdadeiras. As coincidências acidentais são aquelas correspondentes à todos raios gama que chegam aos dois detetores em um intervalo de tempo menor que o tempo de resolução da unidade de coincidência lenta; e estas coincidências acidentais são calculadas pela média aritmética das contagens armazenadas nos canais da região anterior ao canal zero ou $t = 0$ (posição do “prompt”) e posterior ao canal $t \simeq 100 \text{ ns}$, que equivale aproximadamente à 10 meias vidas do estado intermediário da cascata gama no ^{181}Ta .

Para amostras não polarizadas externamente os valores de $A_{22}(t)$ foram obtidos pela razão:

$$A_{22}(t) = A_{22}G_{22}(t) = 2 \cdot \left[\frac{W(180^\circ, t) - W(90^\circ, t)}{W(180^\circ, t) + 2W(90^\circ, t)} \right] \quad (3.6.1)$$

onde:

$W(90^\circ, t)$ número de coincidências observadas no ângulo de 90° .

$W(180^\circ, t)$ número de coincidências observadas no ângulo de 180° .

As curvas experimentais obtidas pela eq. (3.6.1) são ajustadas pela função teórica $G_{22}(t)$. Considerando que $A_{44}(t) \ll A_{22}(t)$ e que a função está normalizada em relação à A_{00} , temos:

$$A_{22}G_{22}(t) = A_{22} [0, 2 + 0, 4 \cos(\omega_L t) + 0, 4 \cos(2\omega_L t)] \quad (3.6.2)$$

O ajuste dos dados experimentais com a função teórica (3.6.2) fornece o valor da frequência de Larmor (ω_L), e conhecendo-se o fator giromagnético do estado intermediário, determinamos a valor do CHM através da equação (2.5.6).

Muitas vezes, para o ajuste dos dados experimentais, é necessário um fator exponencial na equação (3.6.2), que leva em conta a atenuação da amplitude das oscilações. Assim, a equação (3.6.2) pode ser escrita como:

$$A_{22}G_{22}(t) = A_{22} [0, 2 + 0, 4 \cos(\omega_L t) + 0, 4 \cos(2\omega_L t)] e^{-\lambda t} \quad (3.6.3)$$

onde λ é uma constante de atenuação exponencial.

Para amostras polarizadas externamente os valores experimentais de $R(135^\circ, t, \pm \vec{B})$ foram obtidos pela relação:

$$R(135^\circ, t, \pm \vec{B}) = 2 \cdot \left[\frac{W(135^\circ, t, +\vec{B}) - W(135^\circ, t, -\vec{B})}{W(135^\circ, t, +\vec{B}) + W(135^\circ, t, -\vec{B})} \right] \quad (3.6.4)$$

A curva experimental obtida pela eq. (3.6.4) é ajustada pela expressão teórica (2.5.12):

$$R(t) = -2b_1 \text{sen}(2\omega_L t)$$

O sinal é determinado através da análise da curva experimental quando $t \rightarrow 0$, pois nestas condições a expressão (2.5.12) é aproximada para a equação (2.5.13):

$$R(135^\circ, t) = -4b_2\omega_L t$$

De acordo com as expressões (2.5.9), (3.4.1) e (3.4.2) o coeficiente b_2 tem sinal negativo e conseqüentemente a função $R(135^\circ, t)$, bem como a frequência de Larmor ω_L têm sinais positivos. E como o fator-g para o estado 482 keV do decaimento do ^{181}Ta é positivo ($g = 1,3$) [37], a expressão (2.5.6) determina um valor negativo para o campo hiperfino.

Na determinação do sinal do CHM as medidas são realizadas em qualquer temperatura que as amostras sejam ferromagnéticas.

3.7. Teste do Espectrômetro

Com o objetivo de testar todo o equipamento do espectrômetro para uma dada medida de interação hiperfina foram determinados a intensidade, bem como o sinal do CHM atuando no sítio do ^{181}Ta em matriz de Níquel. O CHM nesta amostra é muito bem conhecido na literatura permitindo, então, fazermos uma comparação dos resultados obtidos e verificarmos as condições de funcionamento do equipamento empregado.

A amostra $\text{Ni}(^{181}\text{Hf})$ foi preparada incorporando-se à um cadinho de Níquel ($\sim 99,9\%$ de pureza) uma massa da ordem de 1% atômico de ^{181}Hf radioativo. O cadinho de Níquel com ^{181}Hf foi fechado em vácuo e em seguida fundido em forno de arco sob atmosfera de Argônio.

Antes de iniciarmos esta experiência foi feita a calibração e a determinação da resolução em tempo do sistema.

Para a determinação do valor absoluto do CHM as medidas foram efetuadas à temperatura ambiente ($T_{cNi} = 631 \text{ K}$ [40]), e a curva experimental de $A_{22}(t)$ é mostrada na figura 3.12. As barras representam os pontos experimentais com seus respectivos erros e foi ajustada uma curva teórica representada pela linha cheia. A frequência obtida pela curva ajustada foi:

$$\omega_L = 546,6 \pm 9,8 \quad \text{Mrad/s}$$

e utilizando a equação (2.5.6) obtivemos para o CHM o valor de:

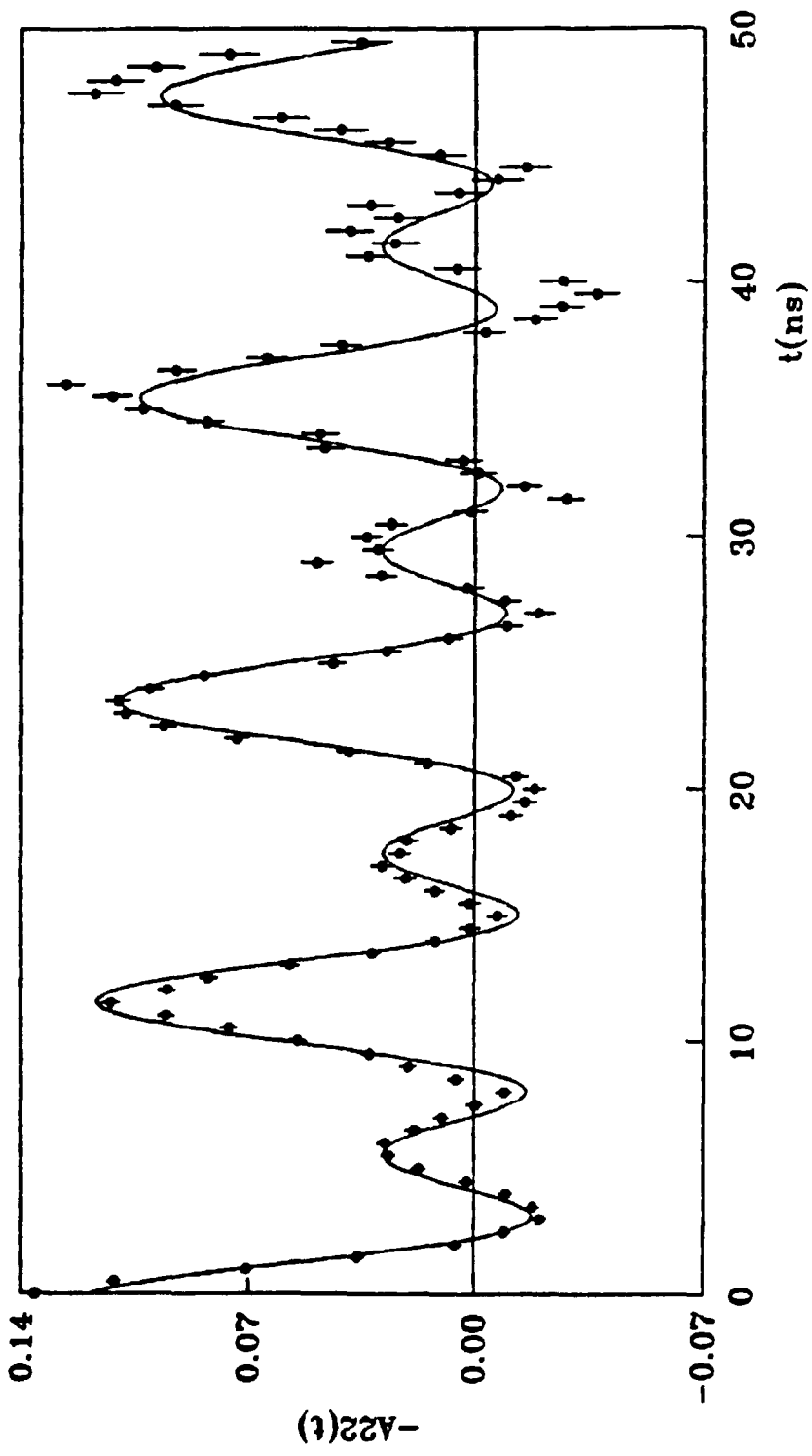


Figura 3.12: Curva experimental de $A_{22}(t)$ da liga Ni(¹⁰¹Hf)

Equipamentos Utilizados e Procedimentos Experimentais

$$\vec{B}_{hf} = 87,8 \pm 1,6 \quad \text{kOe}$$

Para a determinação do sinal do CHM as medidas também foram realizadas à temperatura ambiente só que com a aplicação de um campo magnético externo ~ 5 kGauss sobre a amostra.

A curva experimental de $R(t)$ é mostrada na figura 3.13. Da curva ajustada obtivemos os seguintes resultados:

$$2\omega_L = 1053,0 \pm 19,0 \quad \text{Mrad/s}$$

$$\vec{B}_{med} = -84,6 \pm 1,6 \quad \text{kOe}$$

mas utilizando a eq. (1.2.2), temos:

$$\vec{B}_{med} = \vec{B}_{hf} + \vec{B}_{ext}$$

onde: $\vec{B}_{ext} = 5$ kGauss.

Então, o CHM é:

$$\vec{B}_{hf} = -89,6 \pm 1,6 \quad \text{kOe}$$

Assim, podemos verificar que estes resultados estão de pleno acordo com os resultados $-89,7 \pm 1,6$ kOe [41] e $-89,9 \pm 1$ kOe [42] da literatura e, então, comprovamos o bom funcionamento do equipamento experimental utilizado.

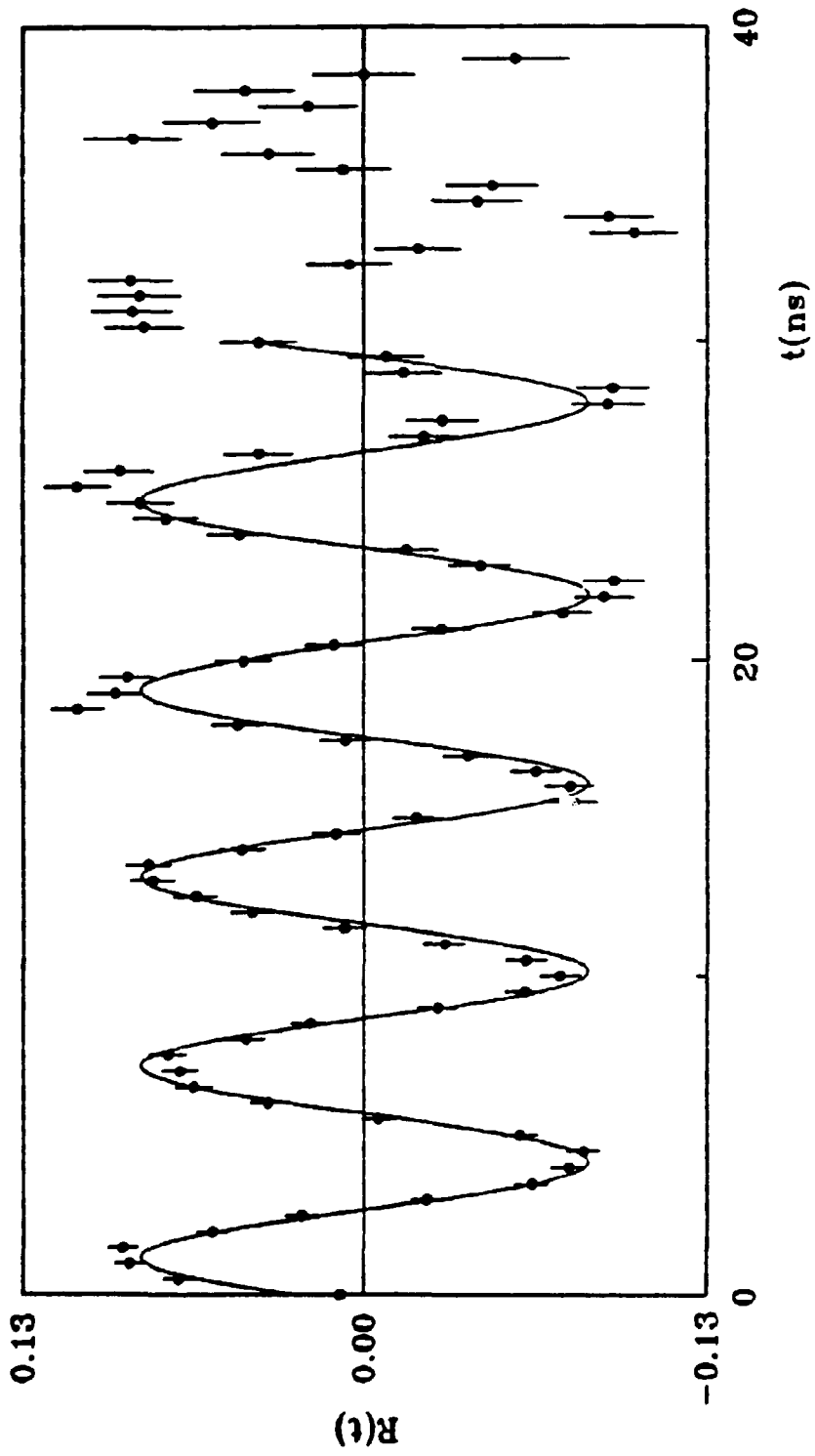


Figura 3.13: Curva experimental de $R(t)$ da liga Ni^{161}HF

Capítulo 4

Resultados Experimentais e Discussão

4.1. Resultados

4.1.1. Resultados das análises das ligas de Heusler pela difração de raios-x

As figuras 4.1, 4.2 e 4.3 apresentam os difratogramas das amostras de Co_2ScSn , Co_2ScGa e Co_2HfSn correspondentes aos tratamentos térmicos descritos no capítulo anterior respectivamente; e as figuras 4.4, 4.5 e 4.6 mostram as curvas de indexação dos planos cristalinos de Miller para as mesmas amostras.

A amostra Co_2ScSn foi analisada utilizando a radiação do Cromo cujo comprimento de onda é $2,2909 \text{ \AA}$ e as amostras de Co_2ScGa e Co_2HfSn foram analisadas utilizando a radiação do Cobre cujo comprimento de onda é $1,542 \text{ \AA}$.

Para o cálculo do parâmetro de rede utilizamos a equação (3.3.3) e os coeficientes angulares das retas apresentadas nas figuras 4.4, 4.5 e 4.6. Os parâmetros de rede obtidos são mostrados na tabela 4.1 juntamente com outros valores encontrados na literatura.

Os valores dos parâmetros de rede a experimentais obtidos neste trabalho estão em bom acordo com aqueles encontrados na literatura. Sendo assim, tudo indica que as ligas Co_2ScSn , Co_2ScGa e Co_2HfSn foram caracterizadas como estruturas de Heusler do tipo $L2_1$ muito embora os difratogramas destas amostras apresentem alguns picos que não foram indexados, i.é., alguns picos que provavelmente pertençam à outras fases.

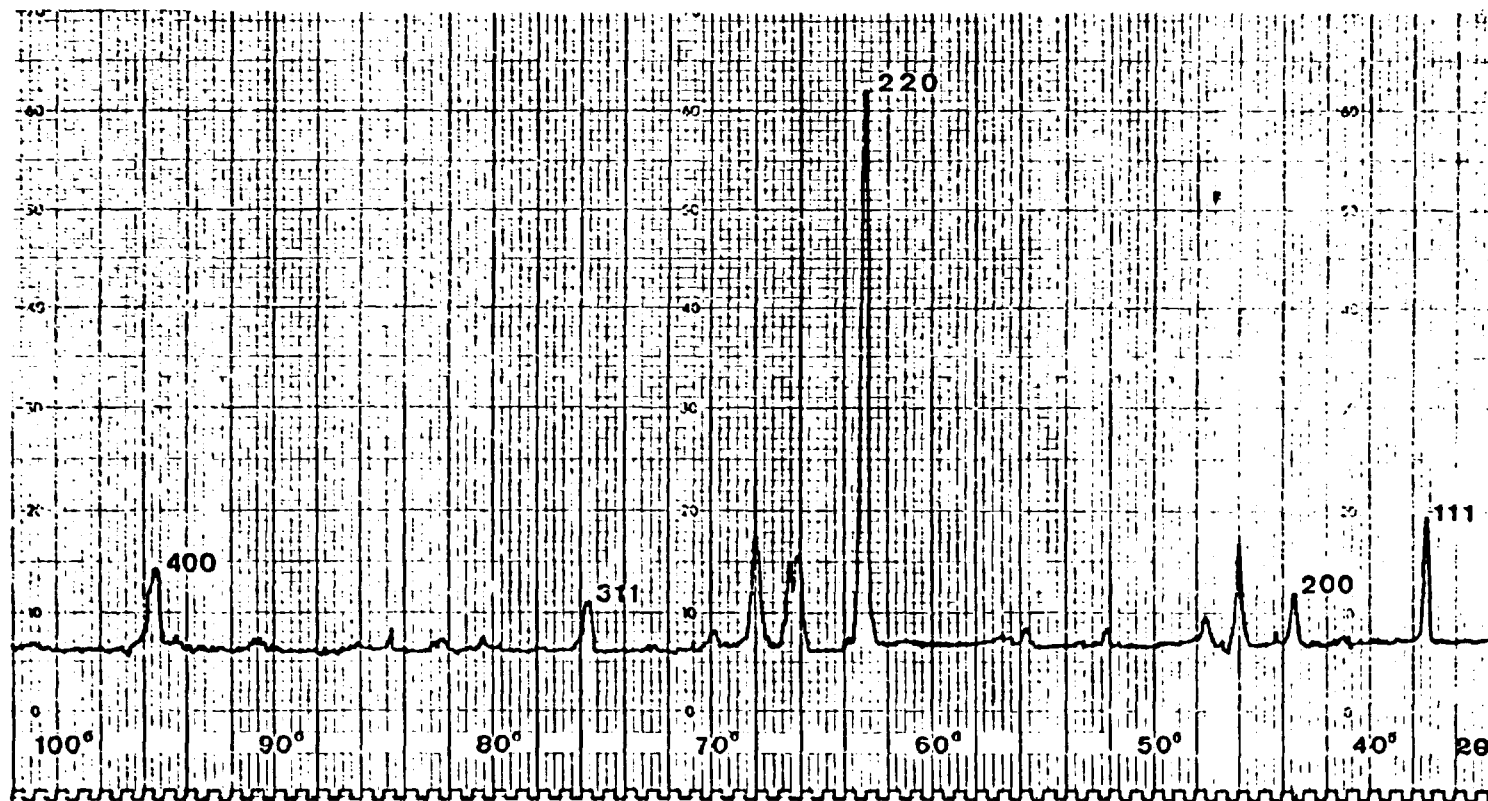


Figura 4.1: Difratoograma da amostra Co_2ScSn

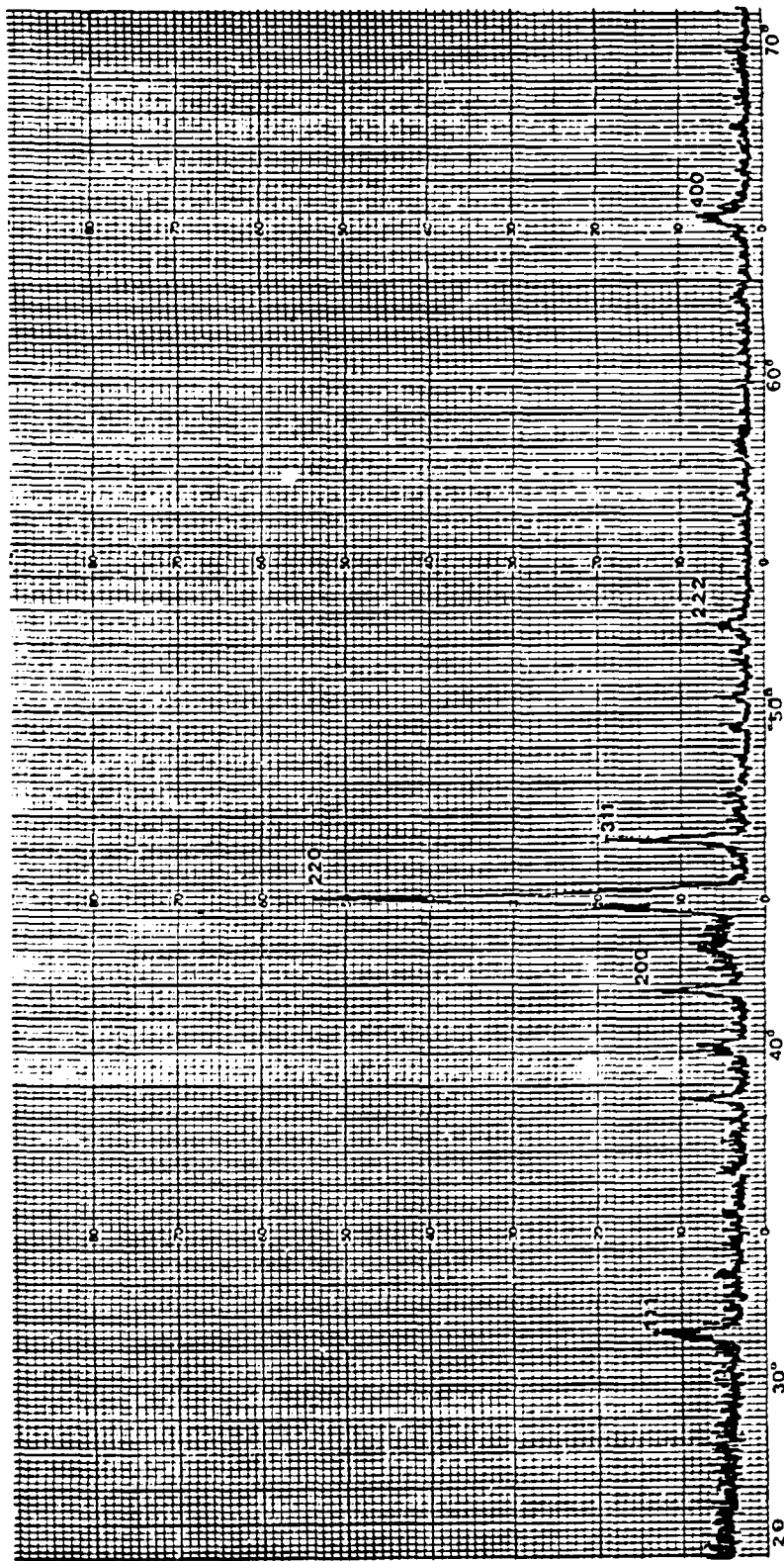


Figura 4.2: Difratoograma da amostra Co_2ScGa

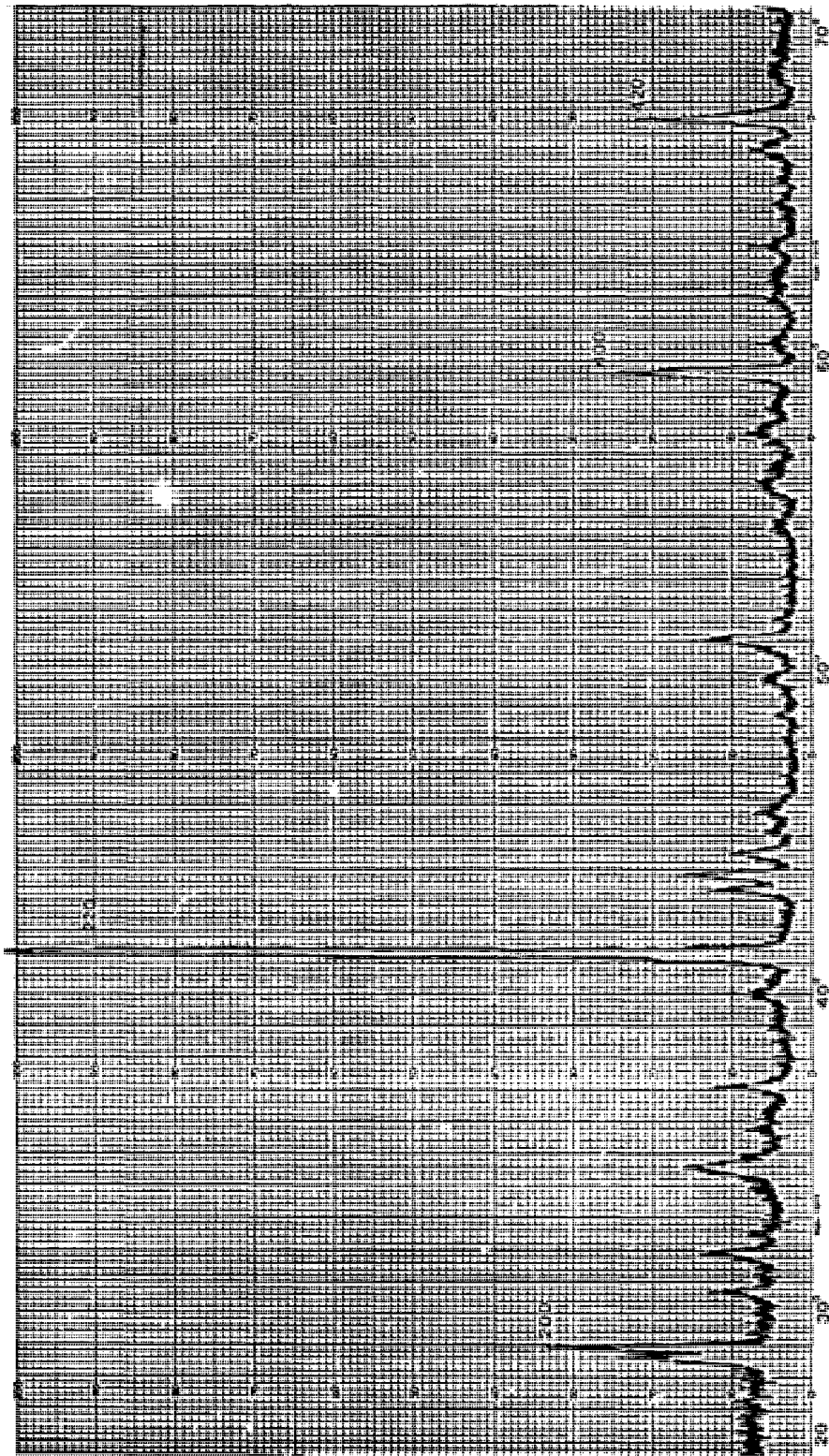


Figura 4.3: Difratoograma da amostra Co_2HfSn

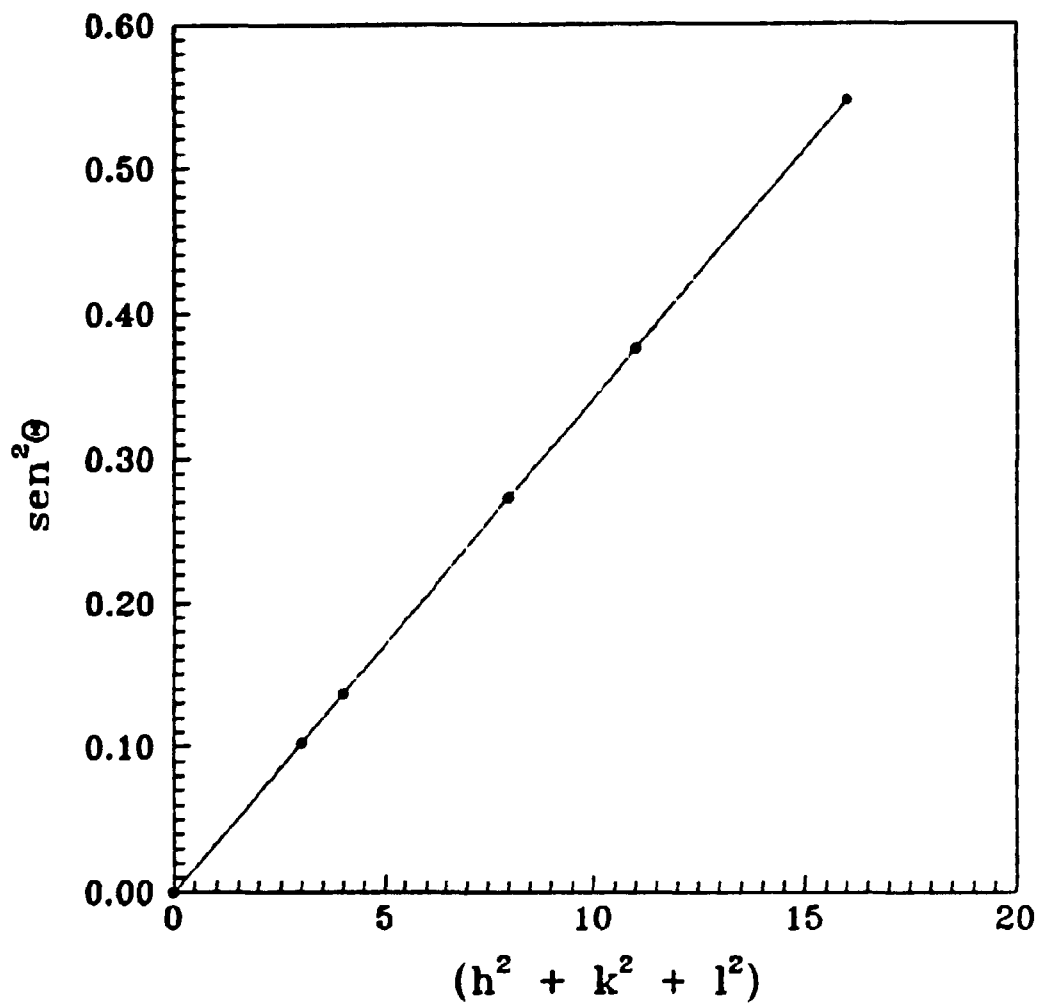


Figura 4.4: Indexação dos planos de Miller da amostra Co_2ScSn



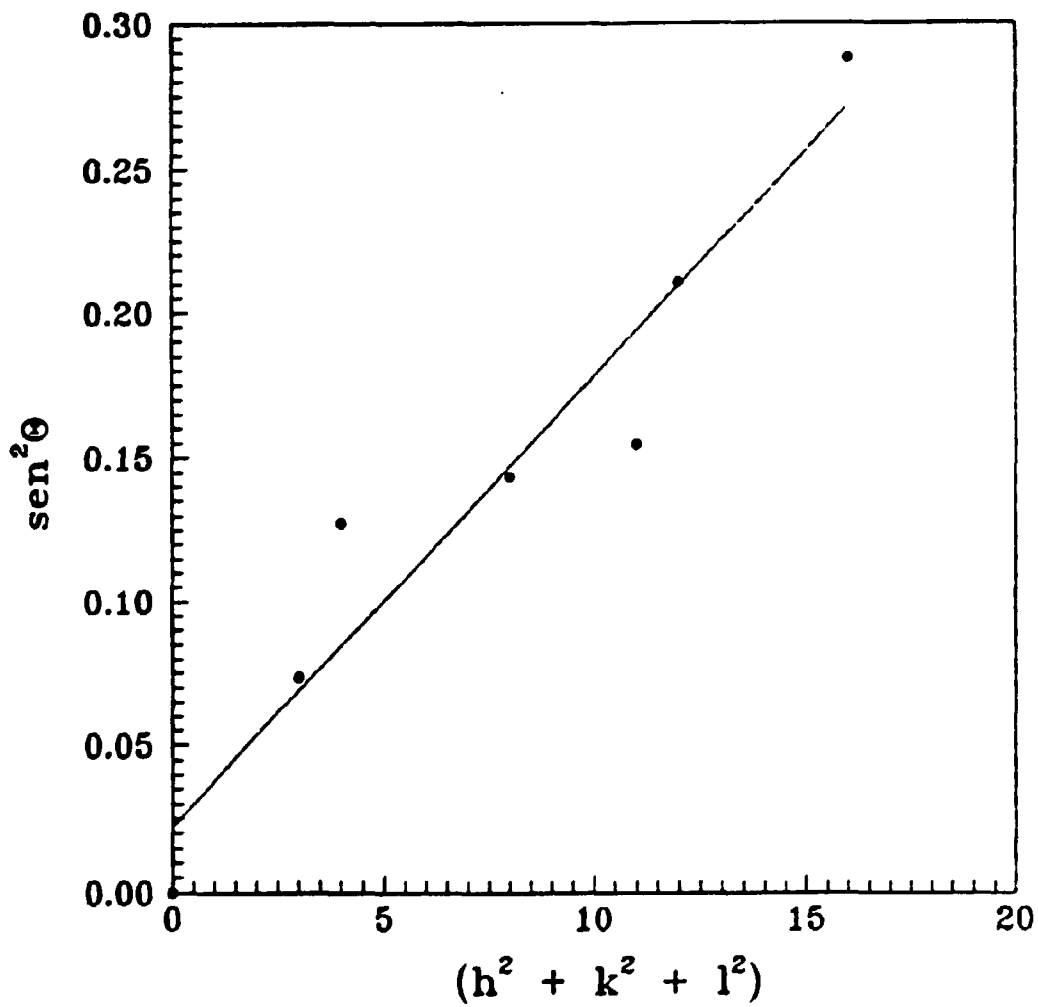


Figura 4.5: Indexação dos planos de Miller da amostra Co_2ScGa

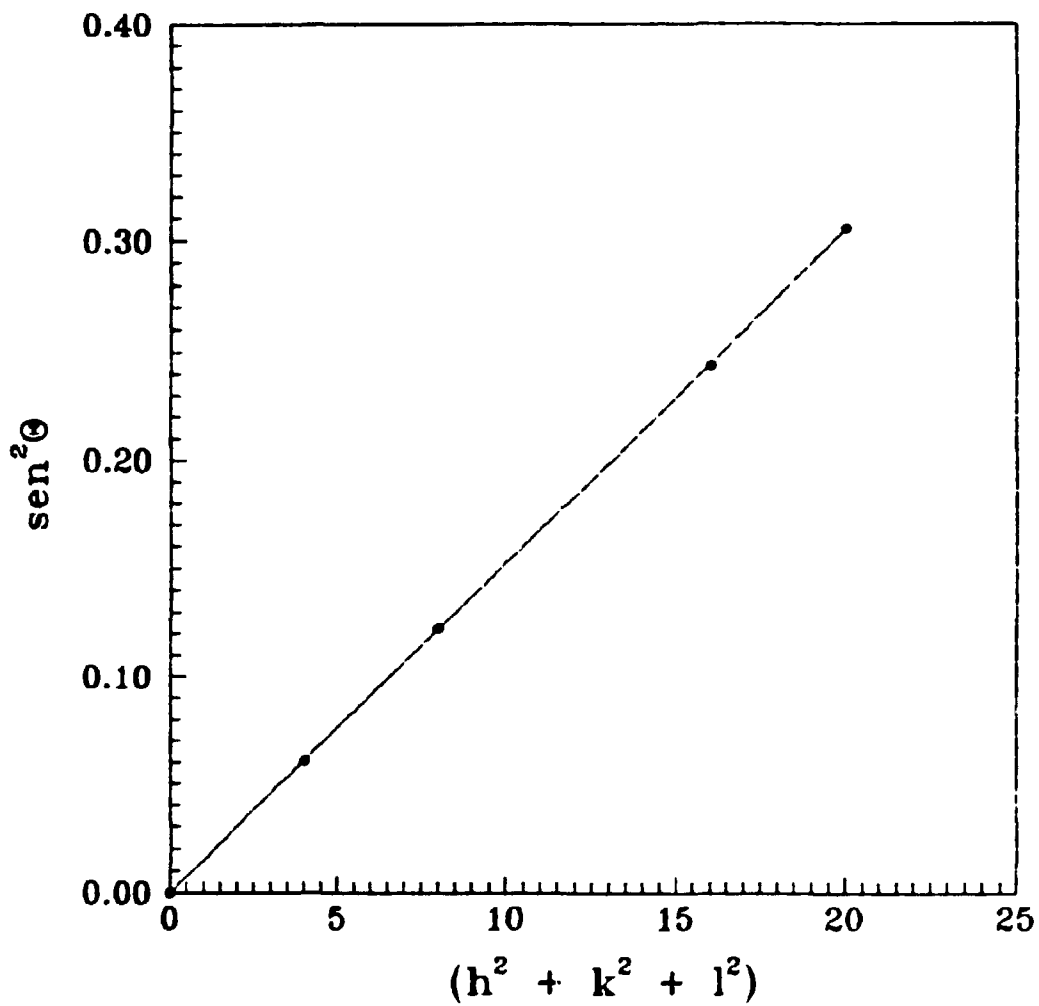


Figura 4.6: Indexação dos planos de Miller da amostra Co_2HfSn

Amostra	Parâmetro de rede a (Å)	
	valor deste trabalho	valor da literatura
Co ₂ ScSn	6,17	6,19 ^(a)
Co ₂ ScGa	6,17	-
Co ₂ HfSn	6,24	6,20 ^(b) 6,227 ^(c)

(a) Ref. 33 (b) Ref. 34 (c) Ref. 35

Tabela 4.1: Parâmetros de Rede das amostras Co₂ScSn, Co₂ScGa e Co₂HfSn

4.1.2. Determinação dos Campos Hiperfinos Magnéticos nas ligas de Heusler Co₂ScSn, Co₂ScGa e Co₂HfSn

Resultados Experimentais da Liga Co₂ScSn

Os resultados das medidas de $A_{22}(t)$ para a liga Co₂ScSn nas temperaturas ambiente e 77 K são mostrados nas figuras 4.7 e 4.8 respectivamente enquanto que o resultado da medida de $R(t)$ para esta liga na temperatura de 140 K com o campo magnético externo é mostrado na figura 4.9. As curvas cheias são resultados de um ajuste por mínimos quadrados dos dados experimentais com as expressões teóricas (3.6.3) e (2.5.12) respectivamente, enquanto os pontos experimentais são indicados com seus respectivos erros nestas figuras. Pela figura 4.7 podemos notar a presença de interação quadrupolar que provoca uma atenuação na curva de $A_{22}(t)$.

Acreditamos que a presença do gradiente de campo elétrico (GCE) deve-se principalmente à pequena desordem entre os átomos da amostra, já que liga sendo cúbica não deveria apresentar GCE.

A curva de $A_{22}(t)$ à 77 K (figura 4.8) mostra claramente a presença de interações magnéticas nesta amostra. Nesta curva também podemos notar a atenuação da amplitude de $A_{22}(t)$ em função do tempo e isto ocorre devido à presença das interações quadrupolares. O ajuste desta curva foi feito pela equação (3.6.3) que leva em conta esta fraca interação quadrupolar através de um fator

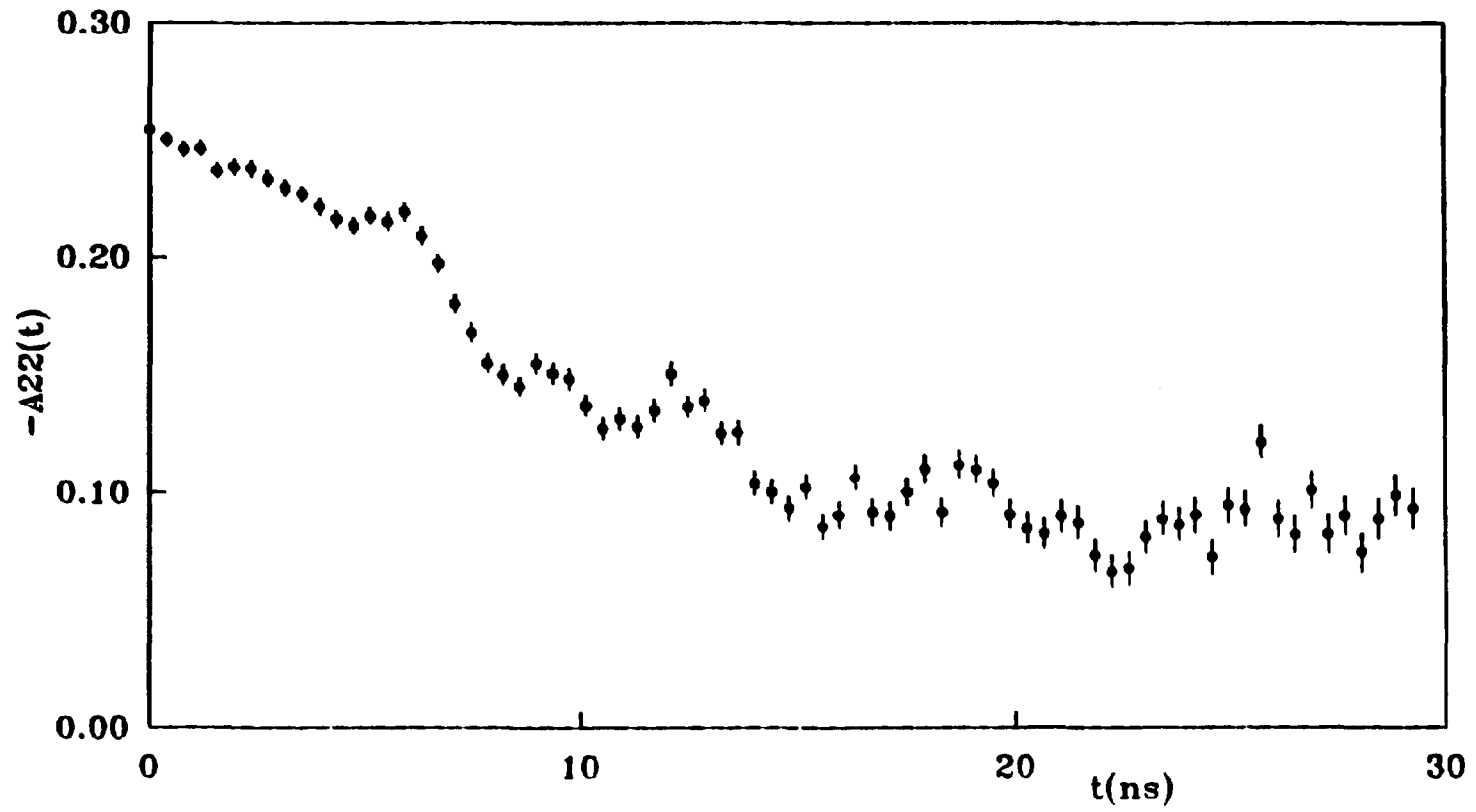


Figura 4.7: Curva Experimental de $A_{22}(t)$ à temperatura ambiente - liga Co_2ScSn

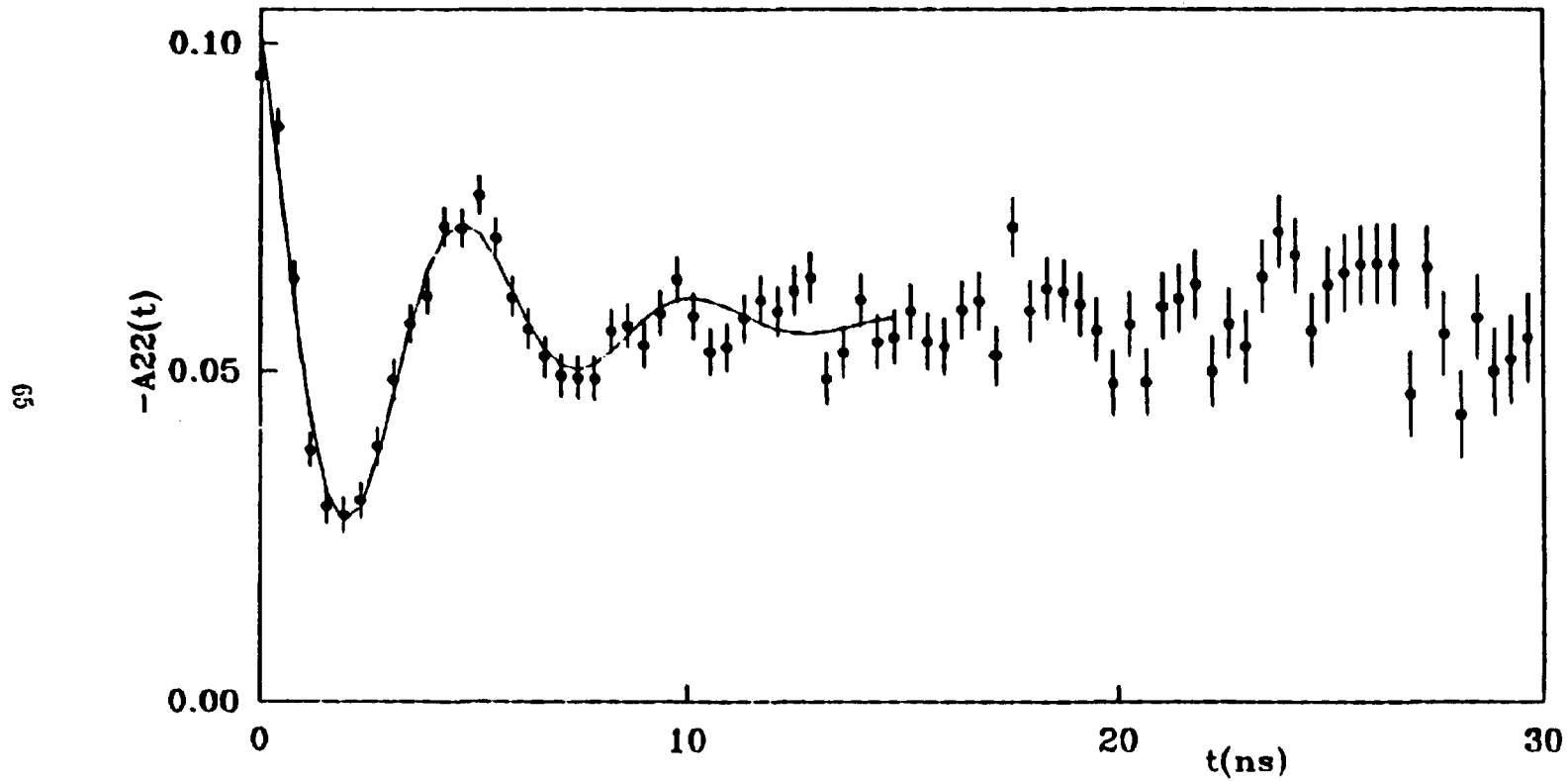


Figura 4.8: Curva Experimental de $A_{22}(t)$ à 77 K - liga Co_7ScSn

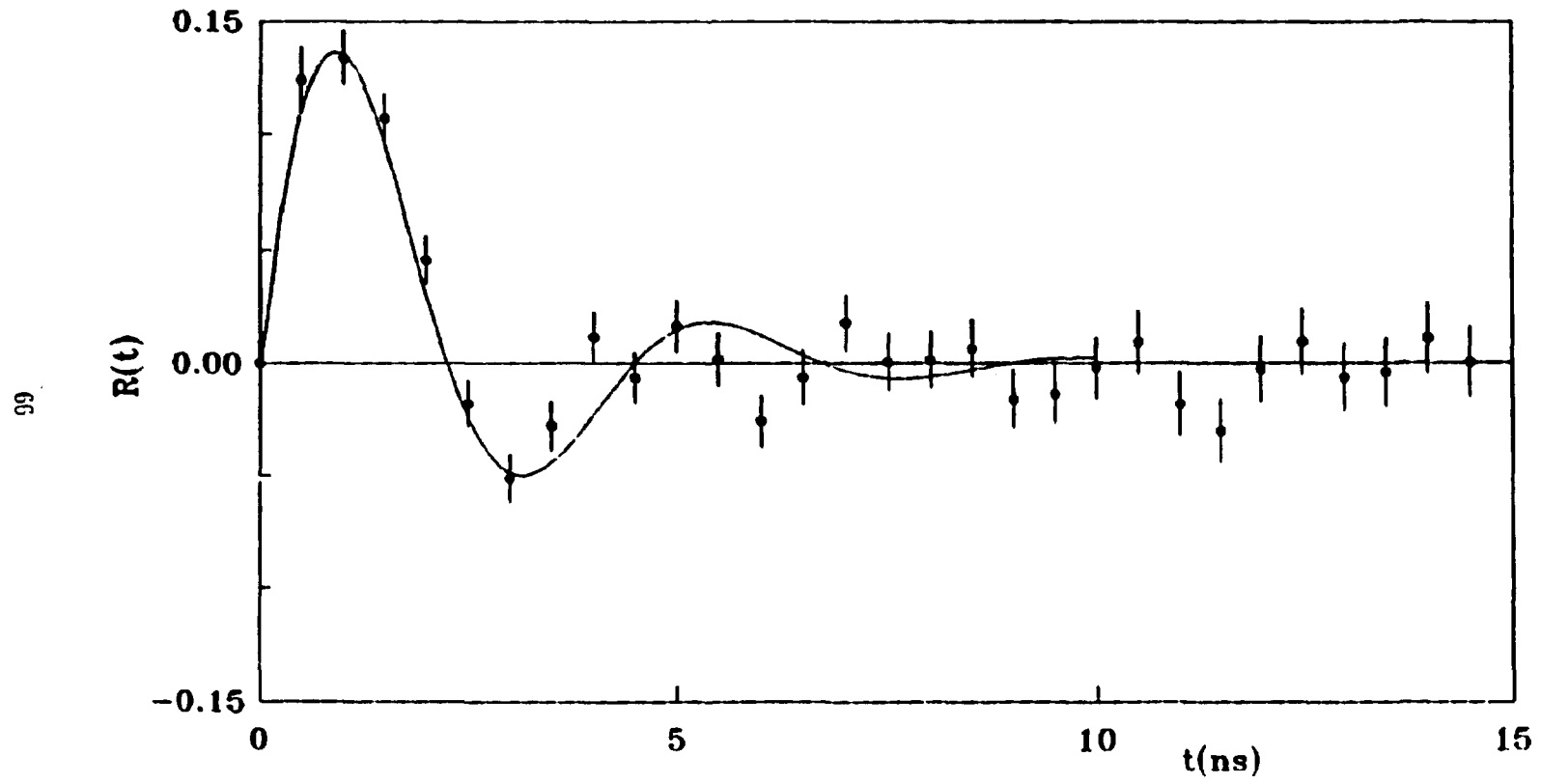


Figura 4.9: Curva Experimental de $R(t)$ à 140 K - liga Co_2ScSn

Resultados Experimentais e Discussão

exponencial. Foi escolhido este tipo de função devido ao fato da frequência causada pela interação elétrica ser muito menor que a frequência de Larmor, logo o seu período é muito grande e pode ser considerado como uma atenuação exponencial. Este ajuste forneceu um valor de $1168,0 \pm 20,4$ Mrad/s para a frequência de Larmor ω_L . Conseqüentemente, com o auxílio da equação (2.5.6) calculamos o valor absoluto do CIIM como $187,6 \pm 3,3$ kOe.

Na figura 4.9 está representado o espectro $R(t)$ da amostra medido à 140 K com um campo magnético externo polarizador de 5 kGauss. O sinal do campo foi determinado como negativo.

Assim, concluímos que o CIIM sobre o núcleo de ^{181}Ta na liga Co_2ScSn tem o valor de $-187,6 \pm 3,3$ kOe. O modulo deste valor é aquele do experimento sem campo externo (pois possui maior estatística) e o sinal foi obtido pelas medidas com campo externo polarizador.

Resultados Experimentais da liga Co_2ScGa

Para esta amostra foram efetuadas medidas apenas à temperatura ambiente e à 77 K; e o espectros de $A_{22}(t)$ são mostrados nas figuras 4.10 e 4.11 respectivamente. Ambas as curvas parecem caracterizar a amostra na sua fase ferromagnética, mas vale lembrar mais uma vez que a sua temperatura de Curie não é conhecida na literatura.

As curvas mostradas nas figuras 4.10 e 4.11 também evidenciam a presença de interações quadrupolares e também foram ajustadas pela eq. (3.6.3) fornecendo os valores $393,4 \pm 29,7$ e $560,4 \pm 13,9$ Mrad/s para a frequência de Larmor respectivamente. Os valores absolutos dos Campos Hiperfinos Magnéticos calculados pela equação (2.5.6) foram $63,2 \pm 4,8$ kOe para a amostra na temperatura ambiente e $90,0 \pm 2,2$ kOe para a amostra à 77 K.

Não foram realizadas medidas com campo externo polarizador para esta amostra.

Resultados Experimentais da liga Co_2HfSn

As curvas experimentais de $A_{22}(t)$ para esta amostra nas temperaturas 622 K e ambiente são apresentadas nas figuras 4.12 e 4.13 respectivamente. A figura

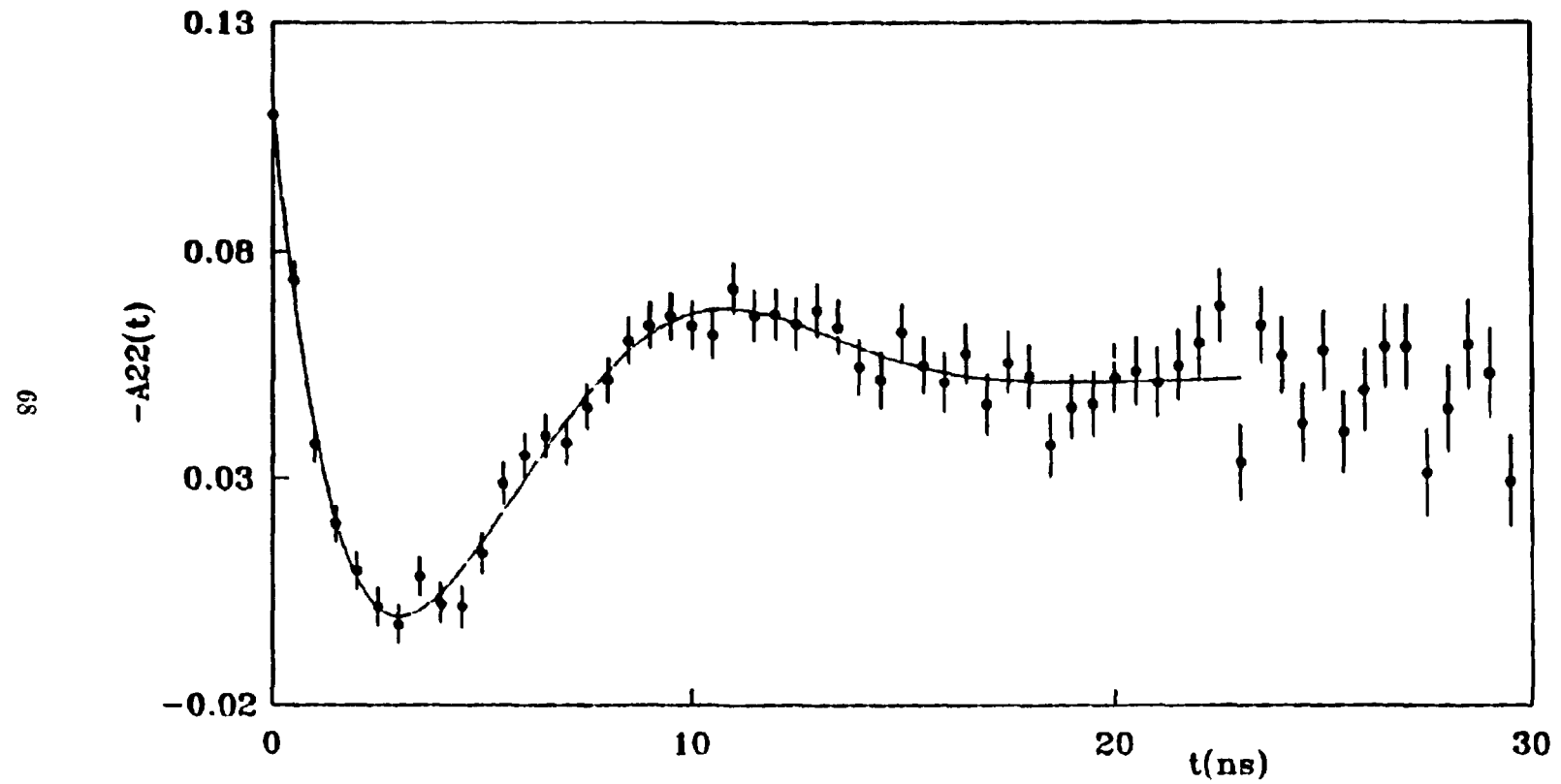


Figura 4.10: Curva Experimental de $A_{22}(t)$ à temperatura ambiente - liga Co_2ScGa

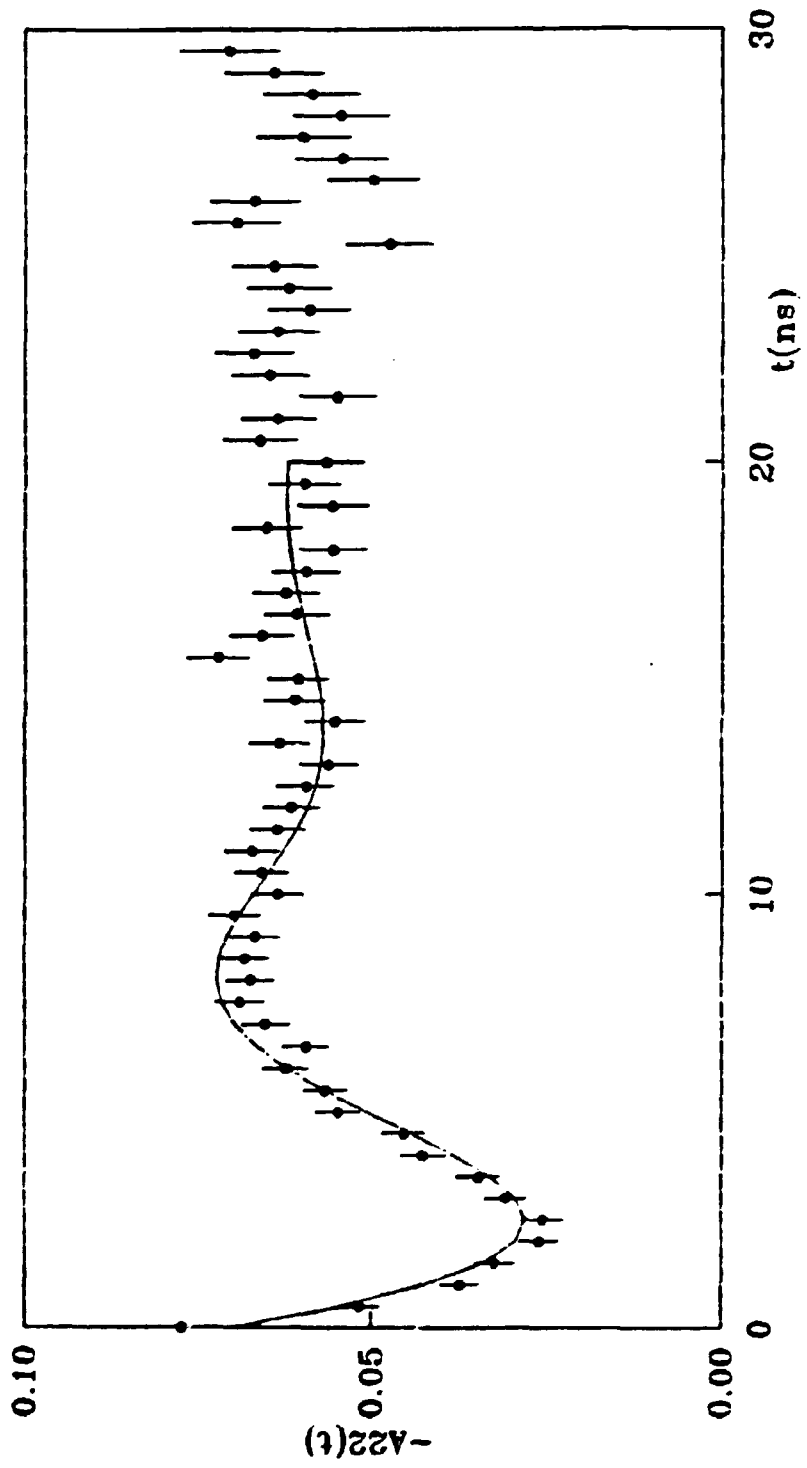


Figura 4.11: Curva Experimental de $A_{22}(t)$ à 77 K - liga Co_2ScGa

Resultados Experimentais e Discussão

4.12, que se refere às medidas na fase paramagnética da amostra, evidencia a presença de interação quadrupolar que provoca uma atenuação na curva de $A_{22}(t)$. Entretanto, a figura 4.13 mostra que foi possível observarmos uma frequência devida à interação magnética na curva experimental de $A_{22}(t)$ que representa as medidas efetuadas na fase ferromagnética da liga. Nesta curva também ocorre a atenuação da amplitude de $A_{22}(t)$ em função do tempo, o que evidencia novamente a presença de interação quadrupolar.

A frequência de Larmor obtida através do ajuste dos pontos experimentais pela função (3.6.3) para a curva de $A_{22}(t)$ na temperatura ambiente foi $2132,00 \pm 63,2$ Mrad/s e o cálculo do campo hiperfino apresentou o valor absoluto de $342,4 \pm 10,1$ kOe.

A figura 4.14 apresenta a curva experimental de $R(t)$ medida à temperatura ambiente com o campo externo de 5 kGauss. O sinal também foi determinado como negativo. É importante informar que a medida do sinal do CIIM para esta liga é inédita e sua maior dificuldade deve-se à alta frequência de Larmor (vale lembrar que o valor da frequência dobra sob a ação de campo magnético externo), que somente pode ser determinada se o equipamento utilizado nas medidas tiver resolução suficiente para tal.

Resumindo, o valor do CIIM no ^{181}Ta nesta liga é $-342,4 \pm 10,1$ kOe. Sendo que o módulo deste valor é aquele encontrado nas medidas sem campo externo devido ao fato de possuir maior estatística; e o sinal foi determinado pelas medidas realizadas na presença do campo externo polarizador.

Com a finalidade de concluir a apresentação dos resultados é mostrada, à seguir, uma tabela na qual constam os resultados obtidos neste trabalho e na literatura para os Campos Hiperfinos Magnéticos medidos no sítio do ^{181}Ta nas ligas de Heusler Co_2ScSn , Co_2ScGa e Co_2MnSn . Ainda nesta tabela constam os valores de temperatura de Curie e momento magnético por átomo de Cobalto encontrados na literatura.

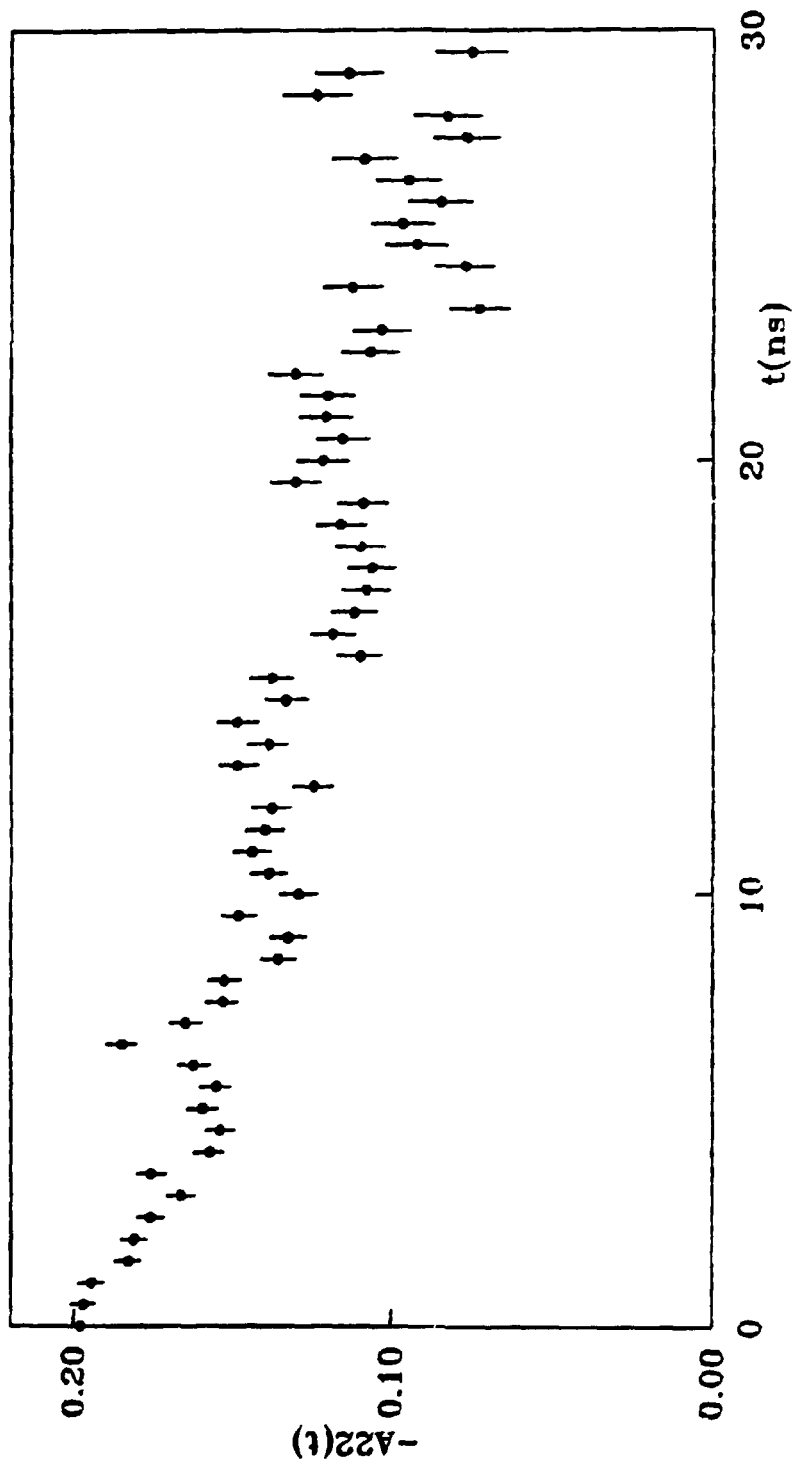


Figura 4.12: Curva Experimental de $A_{22}(t)$ à 623 K - liga Co_2HfSn

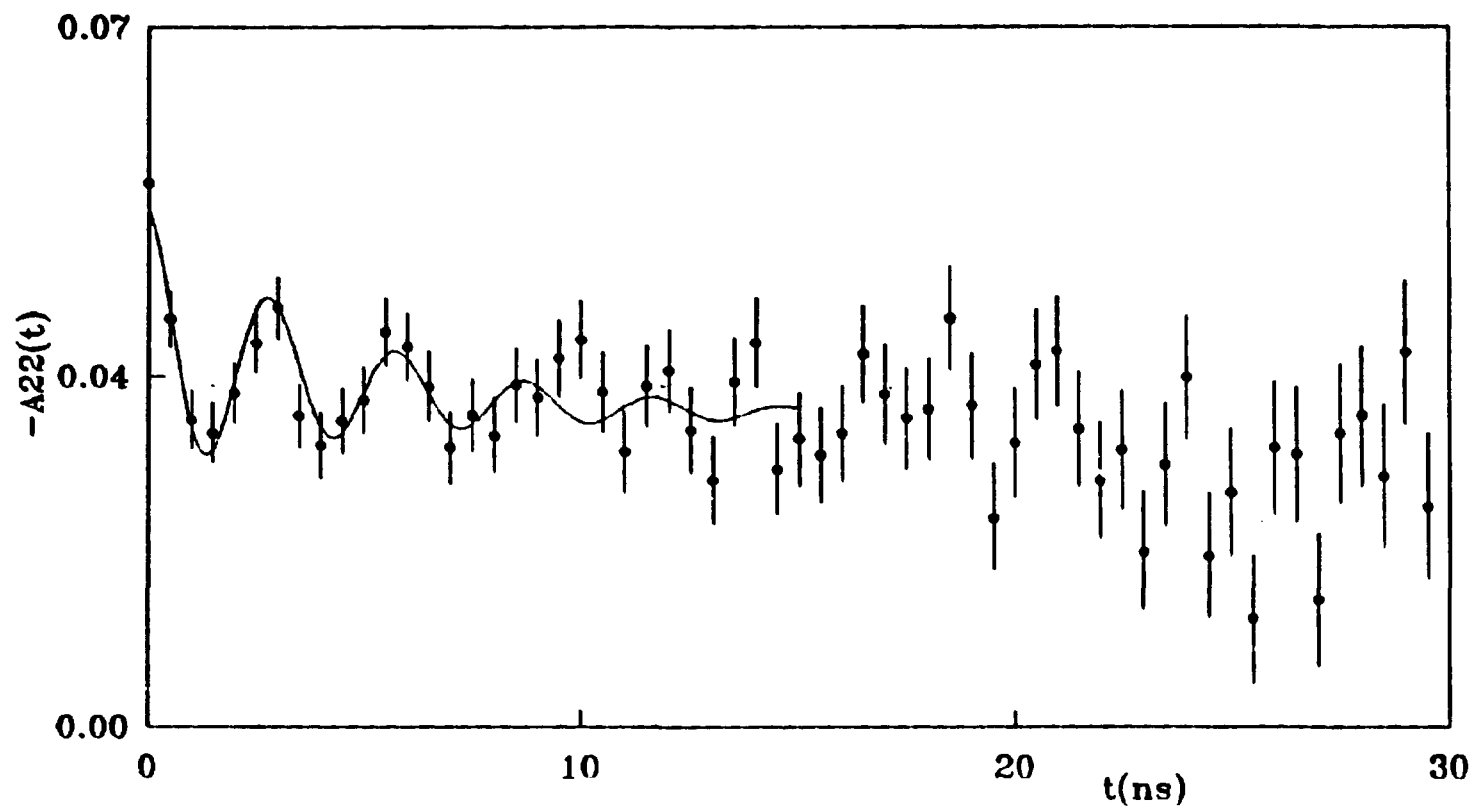


Figura 4.13: Curva Experimental de $A_{22}(t)$ à temperatura ambiente - liga Co_2HfSn

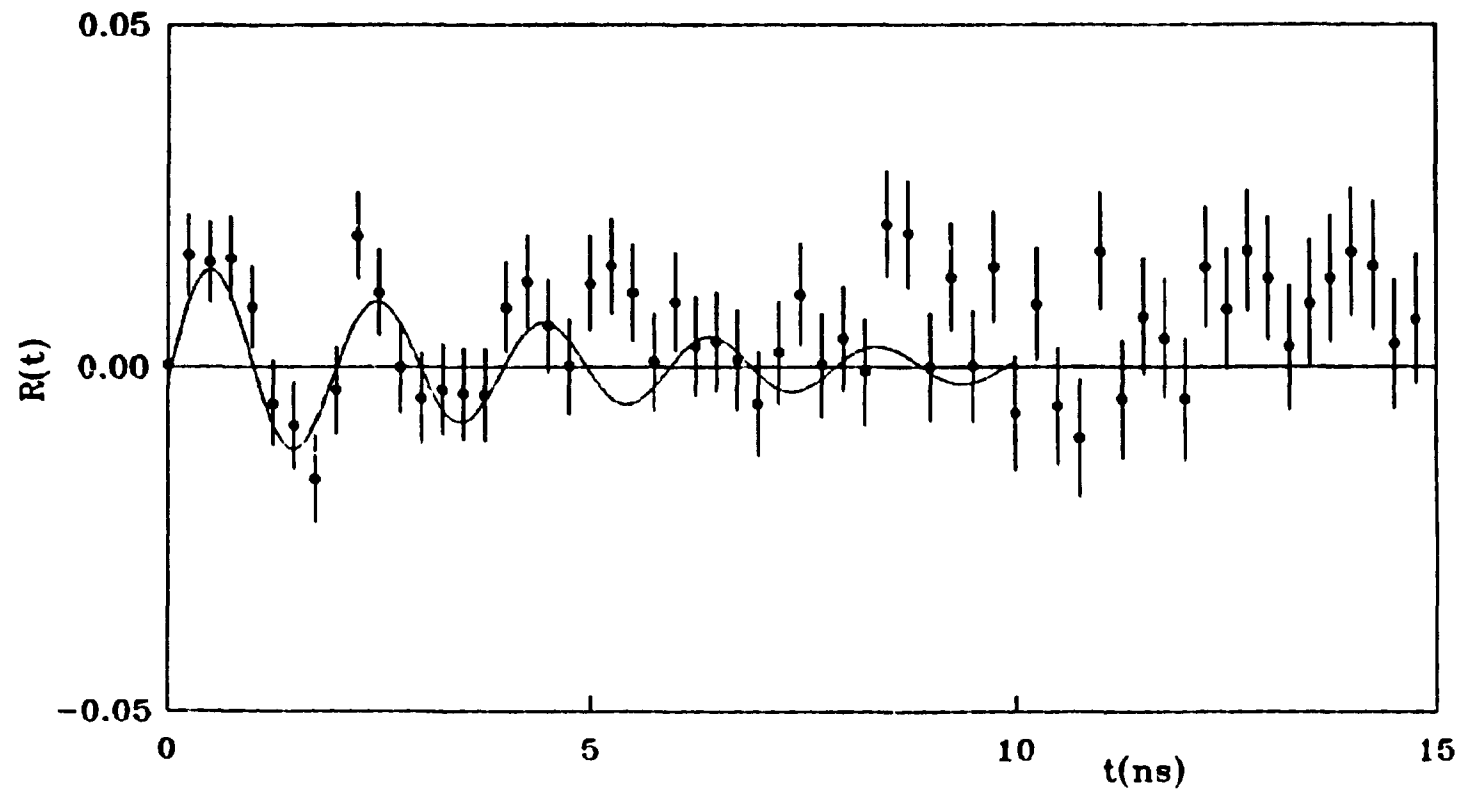


Figura 4.14: Curva Experimental de $R(t)$ à temperatura ambiente - liga Co_2HfSn

Resultados Experimentais e Discussão

liga	H_{T_a} (kOe) (Temperatura medida (K))		T_c (K)	μ_{Co} (μ_B)
	Presente Trabalho	Literatura		
Co ₂ ScSn	-187,6 ± 3,3 (77)	-	268 ^(a)	0,55 ^(a)
Co ₂ ScGa	63,2 ± 4,8 (295)	-	-	-
	90,0 ± 2,2 (77)	-		
Co ₂ HfSn	-342,4 ± 10,1 (295)	347 ± 8 (295) ^(b)	394 ^(b)	0,75 ^(b)

(a) Ref. 33 (b) Ref. 34

Tabela 4.II: Resultados de CIIM para as ligas de Heusler Co₂ScSn, Co₂ScGa e Co₂HfSn

4.2. Discussão dos Resultados

Os resultados do CIIM obtidos neste trabalho para as ligas Co₂ScSn, Co₂ScGa e Co₂HfSn já foram apresentados na tabela 4.II. Agora, o nosso objetivo é comparar estes resultados com aqueles já existentes para ligas similares medidas no nosso laboratório e que são mostrados na tabela 4.III.

Como podemos notar, todas as ligas estudadas neste trabalho revelam a presença de uma única frequência, o que evidencia que os núcleos de ¹⁸¹Ta ocuparam realmente o sítio Y das ligas de Heusler e que as ligas não apresentam grandes distorções na rede ou outras fases.

O valor apresentado nesta tabela para o H_{T_a} na liga Co₂HfSn é um valor extrapolado à 77 K, uma vez que esta medida foi realizada à temperatura ambiente. Esta correção corresponde à um aumento do campo hiperfino no Ta de um fator 1,23 calculado a partir dos campos hiperfinos magnéticos no Sn nesta liga, à temperatura ambiente e à 80 K [52].

Os valores de campos hiperfinos magnéticos no ¹⁸¹Ta no sítio Y das ligas de Heusler do tipo Co₂YZ, onde Y é um elemento do grupo IIIA (Sc), IVA (Ti, Zr, Hf) ou VA (Nb, V) encontrados nas tabelas 4.III são todos negativos onde foram medidos os sinais, i.é., similares aos campos hiperfinos magnéticos em impurezas não magnéticas diluídas em matrizes magnéticas como Cobalto, Ferro e Níquel. Isto deve-se ao fato de uma impureza não magnética diluída em matriz de Cobalto,

Resultados Experimentais e Discussão

liga	Parâmetro de rede a (Å)	T _c (K)	μ _{Co} (μ _B)	Π _{Ta} (77K) (kOe)	Π _{Ta} /μ _{Co} (kOe/μ _B)	Π _{Ta} /T _c (kOe/K)
Co ₂ TiAl	5,85 ^(a)	148(2) ^(c)	0,35(0,1) ^(a)	-143 ^(e)	-409(117)	-0,97
Co ₂ TiGa	5,85 ^(a)	130(2) ^(e)	0,40(0,1) ^(a)	(-)159 ^(e)	(-)317(99)	(-)1,22
Co ₂ TiSn	6,07 ^(a)	370(2) ^(e)	1,03(0,1) ^(a)	(-)480 ^(e)	(-)466(45)	(-)1,30
Co ₂ TiSi	5,74 ^(b)	375(4) ^(b)	0,55 ^(b)	-287(6) ^(d)	-522(95)	-0,76
Co ₂ TiGe	5,83 ^(b)	386(4) ^(b)	0,89 ^(b)	-335(6) ^(d)	-376(43)	-0,87
Co ₂ ZrAl	6,08 ^(a)	185(2) ^(e)	0,30(0,1) ^(a)	-184 ^(e)	-613(204)	-0,99
Co ₂ ZrSn	6,25 ^(a)	460(2) ^(e)	0,80(0,1) ^(a)	(-)380 ^(e)	(-)475(58)	(-)0,83
Co ₂ HfAl	6,02 ^(a)	193(4) ^(a)	0,40(0,1) ^(a)	-189(4) ^(j)	-472(118)	-0,98
Co ₂ HfGa	6,03 ^(a)	186(3) ^(a)	0,30(0,1) ^(a)	-213 ^(j)	-710(327)	-1,14
Co ₂ NbAl	5,95 ^(c)	383 ^(f)	0,67 ^(f)	(-)138(4) ^(e)	(-)206(31)	(-)0,36
Co ₂ VAl	5,80 ^(c)	310(4) ^(a)	0,92(0,1) ^(a)	(-)116(4) ^(e)	(-)126(14)	(-)0,37
Co ₂ VSn	5,98 ^(d)	105 ^(g)	0,60 ⁽ⁱ⁾	(-)63(3) ^(e)	(-)68(8)	(-)0,20
				(-)130(1) ^(d)	(-)172(29)	(-)0,98
				(-)71(1) ^(d)	(-)118(20)	(-)0,68
Co ₂ ScGa	6,17	-	0,25*	(-)90,0(2,2)	(-)360(169)*	-
Co ₂ ScSn	6,17	268 ^(h)	0,55 ^(h)	-187,6(3,3)	-341(62)	-0,70
Co ₂ HfSn	6,24	396 ^(a)	0,77(0,1) ⁽ⁱ⁾	-421,1(12,4)	-547(73)	-1,07

(a) Ref. 43 (b) Ref. 44 (c) Ref. 45 (d) Ref. 46 (e) Ref. 47

(f) Ref. 48 (g) Ref. 49 (h) Ref. 33 (i) Ref. 35 (j) Ref. 50

* Observações citadas no texto

Tabela 4.III: Propriedades Magnéticas das ligas de Heusler do Tipo Co₂YZ

por exemplo, ter como primeiro vizinho um átomo magnético (ambiente análogo ao das ligas de Heusler se considerarmos a impureza localizada no sítio Y das mesmas) e também das distâncias entre os átomos de Cobalto nestas ligas (~ 3,0 Å) serem quase as mesmas que no Cobalto puro ou com impurezas diluídas (~ 2,5 Å).

Outra evidência deste fato é a proporcionalidade entre o campo hiperfino

Resultados Experimentais e Discussão

no ^{181}Ta e a temperatura de Curie para as diferentes ligas. A razão $\frac{H_{\text{Ta}}}{T_c}$ é praticamente constante (com variações entre 10 % e 15 %) para as ligas cujos sítios Y são ocupados por elementos da mesma família. Esta proporcionalidade também se verifica para a razão $\frac{H_{\text{Ta}}}{\mu_{\text{Co}}}$. À medida que o momento magnético aumenta, podemos perceber que o campo hiperfino magnético também aumenta mantendo uma razão constante para as ligas formadas por elementos da mesma família no sítio Y.

A discussão e comparação dos resultados para CHM apresentados na tabela pode ser feita de uma maneira mais conveniente se utilizarmos o campo hiperfino magnético reduzido ($\frac{H_{\text{Ta}}}{\mu_{\text{Co}}}$), pois dessa maneira eliminamos os efeitos dos diferentes valores de momentos magnéticos nos átomos de Cobalto (μ_{Co}) para as diferentes ligas. Os valores dos momentos magnéticos no Co para as diversas ligas na tabela 4.III foram obtidos da literatura; porém para a liga Co_2ScGa o momento magnético no átomo de Cobalto não foi medido. Este valor foi estimado com base nas sistemáticas de momentos magnéticos para ligas de Heusler do tipo Co_2YGa e Co_2YSn mostradas nas referências 35 e 48. Segundo estas referências, o momento magnético para as ligas Co_2YGa decresce linearmente com o aumento da diferença de eletronegatividade (em valor absoluto) entre o Cobalto e o elemento Y. Também nos baseamos na sistemática de momentos magnéticos apresentada na tabela 4.III. Como podemos observar, a razão entre os momentos magnéticos nas ligas Co_2YGa e Co_2YSn onde Y é Ti, III, V e Nb é praticamente constante e o momento magnético nos átomos de Cobalto nestas ligas aumenta à medida que passamos da família IIIA, para IVA e VA. Dessa maneira o valor estimado para o μ_{Co} na liga Co_2ScGa é da ordem de $0,25 \mu_B$. Consequentemente, o valor do campo hiperfino reduzido para esta liga é $\sim 360 \text{ kOe}/\mu_B$.

Os valores dos erros dos campos hiperfinos reduzidos mostrados na tabela são grandes devido aos erros dos valores dos momentos magnéticos nos átomos de Cobalto. Estes erros experimentais são $\sim 0,1 \mu_B$ para todas as ligas onde foram medidos. Sendo assim, para as ligas cujos valores dos erros experimentais dos momentos magnéticos não eram conhecidos também adotamos o valor $0,1 \mu_B$.

Os resultados apresentados na tabela 4.III revelam que os valores de CHM reduzidos aumentam, em magnitude, quando passam das ligas que contém elementos IIIA ($\sim 350 \text{ kOe}/\mu_B$) para ligas que contém elementos

Resultados Experimentais e Discussão

IVA ($\sim - 500 \text{ kOe}/\mu_B$); e sofrem uma queda para as ligas que contém elementos VA ($\sim (-) 170 \text{ kOe}/\mu_B$). Mas é importante ressaltar que antes de efetuarmos as medidas de CHM nas ligas de Heusler contendo um elemento de transição IIIA (Sc), esperávamos que estes resultados fossem maiores em magnitude do que para as ligas contendo Ti, Zr, Hf, V e Nb; entretanto os resultados mostraram um valor intermediário.

Estudos feitos por espectroscopia Mössbauer no sítio do Sn das ligas de Heusler do tipo Co_2YSn evidenciam este mesmo comportamento. Alguns dados da literatura podem ser vistos na tabela 4.IV.

liga	Parâmetro de rede a (Å)	T_c (K)	μ_{Co} (μ_B)	$H_{Sn}(4, 2K)$ (kOe)	H_{Sn}/μ_{Co} (kOe/ μ_B)	H_{Sn}/T_c (kOe/K)
Co_2ScSn	6,19 ^(a)	268 ^(a)	0,55 ^(a)	+40 ^{*(a)}	+73(13)	+0,15
Co_2TiSn	6,06 ^(b)	375 ^(d)	1,03(0,1) ^(d)	+82(1) ^(f)	+80(8)	+0,22
Co_2ZrSn	6,25 ^(c)	468 ^(c)	0,80(0,1) ^(d)	+88 ^(g)	+110(14)	+0,22
Co_2HfSn	6,20 ^(b)	394 ^(d)	0,77(0,1) ^(e)	+106(2) ^(f)	+138(18)	+0,27
Co_2VSn	5,98 ^(b)	105 ^(c)	0,60 ^(c)	+10(1) ^(f)	+17(3)	+0,09
Co_2NbSn	a=6,2! ^{Δ(b)} c=6,06	119 ^(d)	0,32(0,1) ^(b)	+15(1) ^(f)	+47(15)	+0,13

(a) Ref. 33 (b) Ref. 50 e 51 (c) Ref. 48 (d) Ref. 43

(e) Ref. 35 (f) Ref. 34 (g) Ref. 52

* medida realizada à 8 K

Δ Estrutura Tetragonal Distorcida

Tabela 4.IV: Propriedades magnéticas das ligas de Heusler do tipo Co_2YSn

O valor do CHM medido sobre o Sn na liga Co_2YSn onde Y é um elemento IIIA (^(c)) é de +40 kOe, para as ligas onde Y pertence ao grupo IVA (Ti, Zr, Hf) os valores são de +82, +88 e +106 kOe respectivamente e para as ligas onde Y é do grupo VA (V, Nb) os valores de CHM medidos foram +10 e +15 kOe.

Resultados Experimentais e Discussão

Comparando-se, agora, os campos hiperfinos reduzidos mostrados na tabela 4.IV observamos novamente que a liga Co_2ScSn apresenta um valor intermediário ($\sim 73 \text{ kOe}/\mu_B$) aos valores das ligas $\text{Co}_2(\text{Ti}, \text{Zr}, \text{Hf})\text{Sn}$ ($\sim 100 \text{ kOe}/\mu_B$) e $\text{Co}_2(\text{V}, \text{Nb})\text{Sn}$ ($\sim 30 \text{ kOe}/\mu_B$).

Dos dados apresentado nas tabelas 4.III e 4.IV podemos concluir que o campo hiperfino reduzido no átomo da série s-p (sítio Z) depende da natureza do elemento de transição no sítio Y, porém o valor do CHM reduzido no átomo de transição (sítio Y) é praticamente insensível à natureza do elemento s-p. Além disso, o CHM reduzido no sítio Y é totalmente dependente da natureza química, i.é., da família química do próprio elemento Y.

Através da fig. 4.15 podemos visualizar de uma maneira mais ilustrativa o comportamento dos campos hiperfinos reduzidos em função do elemento químico localizado no sítio Y das ligas de Heusler do tipo Co_2YZ . Os pontos “vazios” representam o campo hiperfino reduzido no ^{181}Ta , enquanto os pontos “cheios” representam o campo hiperfino reduzido no ^{119}Sn .

Um fato interessante é que se calcularmos valores médios para os campos hiperfinos magnéticos reduzidos no Sn e no Ta para as ligas contendo no sítio Y elementos das famílias IIIA (Sc), IVA (Ti, Zr, Hf) e VA (V, Nb) separadamente e, então, fizermos razões destes valores encontramos resultados proporcionais entre os CHM reduzidos nestas famílias. Como exemplo temos:

$$\frac{H_{\text{Ta}}/\mu_{\text{Co}, Y = \text{IIIA}}}{H_{\text{Sn}}/\mu_{\text{Co}, Y = \text{IIIA}}} \approx \frac{H_{\text{Ta}}/\mu_{\text{Co}, Y = \text{IVA}}}{H_{\text{Sn}}/\mu_{\text{Co}, Y = \text{IVA}}} \approx \frac{H_{\text{Ta}}/\mu_{\text{Co}, Y = \text{VA}}}{H_{\text{Sn}}/\mu_{\text{Co}, Y = \text{VA}}} \approx 4,8$$

Isto sugere que os campos hiperfinos magnéticos medidos nos sítios Y e Z apresentam sistemáticas similares.

Alguns modelos teóricos tentam explicar o comportamento dos campos hiperfinos nas ligas de Heusler, porém ainda não existe um único modelo que ofereça uma explicação satisfatória para estes comportamentos em diversas ligas. Os modelos existentes apenas prevêem um comportamento sistemático para alguns tipos de ligas, mas não conseguem sugerir valores teóricos para os campos hiperfinos nas mesmas.

O modelo de Jena-Geldart [11], por exemplo, prevê para as ligas X_2MnZ que os campos hiperfinos no sítio de impureza Z, por exemplo o Sn, aumentam com o

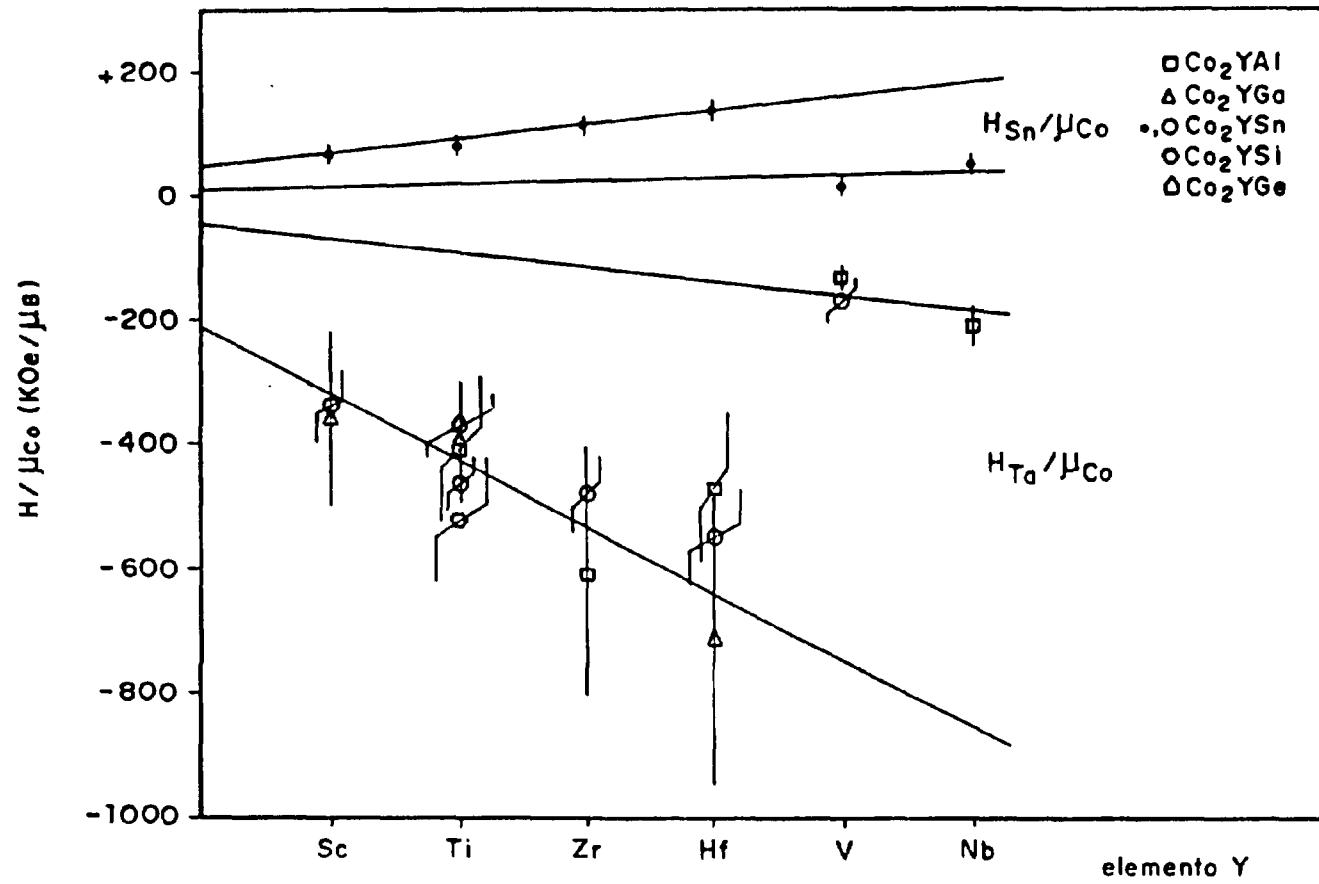


Figura 4.15: Curva $H/\mu_{Co} \times$ elemento Y

Resultados Experimentais e Discussão

aumento da densidade de elétrons de condução. Para as ligas Ni_2MnSn e Cu_2MnSn os campos hiperfinos são da ordem de +90 kOe e +280 kOe respectivamente e isto mostra que à medida que passamos do Ni para o Cu o campo aumenta, uma vez que o Cobre contribui com mais elétrons na banda de condução.

Para as ligas de Heusler do tipo Co_2YZ , este modelo até explica o fato do campo hiperfino reduzido aumentar (em valor absoluto) à medida que o elemento Y passa de Sc para Ti, Zr e Hf; entretanto não consegue explicar a diminuição no valor do campo hiperfino reduzido para as ligas cujos sítios Y são ocupados por V e Nb. Isto sugere que a teoria de Jena-Geldart não pode ser aplicada para as ligas de Heusler baseadas no Cobalto.

Já, o modelo de Blandin-Campbell [13] prevê um campo no sítio do Sn nas ligas de Heusler que depende da densidade de elétrons de condução através do parâmetro k_F (raio de Fermi) pela relação:

$$H = \frac{\mu_m \cdot \alpha^2}{(k_F \cdot a)^2}$$

onde α é o fator de Bloch, μ_m é o momento magnético e a é o parâmetro de rede. Este modelo prevê que o campo hiperfino reduzido diminui à medida que a densidade de elétrons de condução aumenta. Os autores da ref. 54 utilizam este modelo para explicar o fato do campo hiperfino reduzido diminuir quando passamos da liga Co_2TiSn para a liga Co_2VSn . E isto não concorda com a teoria de Jena-Geldart.

Os outros modelos teóricos citados no capítulo 1 também não conseguem dar explicações viáveis para as ligas de Heusler do tipo Co_2YZ , mas apenas conseguem oferecer previsões teóricas para ligas de Heusler do tipo X_2MnZ . Entretanto, existem algumas diferenças entre estas ligas que devem ser consideradas; como por exemplo o fato dos momentos magnéticos nos átomos de Mn para diferentes ligas serem próximos, o que não ocorre para as ligas baseadas no Cobalto, e também do fato do momento magnético nas ligas X_2MnZ ser localizado no elemento Y, enquanto que nas ligas Co_2YZ este é localizado no elemento X.

O fato destes modelos parecerem inadequados para explicarem satisfatoriamente o CIHM nas ligas Co_2YZ , pelo menos até o momento, mostra que existe a necessidade de ampliarmos a sistemática de Campos Hiperfinos Magnéticos neste

Resultados Experimentais e Discussão

tipo de liga, sendo os dados obtidos, ainda, insuficientes para uma previsão teórica precisa. É neste sentido que o laboratório vem trabalhando, sendo que os resultados obtidos neste trabalho contribuem para a ampliação desta sistemática.

Capítulo 5

Conclusões

O campo hiperfino magnético transferido de um íon magnético aos seus vizinhos em um cristal é um dos fenômenos do magnetismo que ainda não foi explicado satisfatoriamente, e as ligas de Heusler têm sido estudadas extensivamente com a finalidade de abordar esta questão. As ligas de Heusler são ótimos sistemas magnéticos e têm despertado um enorme interesse devido à variedade de possíveis ligas.

Medidas de CHM no Sn no sítio Z das ligas de Heusler Co_2YZ revelam campos positivos, enquanto que as medidas de CHM no sítio Y das respectivas ligas revelam campos negativos. As conclusões estabelecidas até o momento para as ligas Co_2YZ são:

1. Os campos hiperfinos no ^{181}Ta no átomo de transição não magnético comportam-se como os campos em impurezas não magnéticas diluídas em matrizes magnéticas como Cobalto, Ferro e Níquel; sugerindo que os mecanismos que produzem os campos hiperfinos nos dois sistemas seja o mesmo;
2. Os campos hiperfinos medidos nos sítios do Sn (sítio Z) e do Ta (sítio Y) nas ligas Co_2YZ apresentam uma forte dependência do elemento de transição localizado no sítio Y, e são praticamente insensíveis à natureza do elemento s-p situado no sítio Z;
3. Os campos hiperfinos medidos no sítio Y não dependem da natureza química do próprio elemento Y.

Conclusões

4. Os campos hiperfinos medidos dependem de outros parâmetros como momento magnético localizado, parâmetro de rede, etc.

Ainda existem poucas informações sobre os campos hiperfinos nestas ligas para que se possa estabelecer sistemáticas específicas que permitam o desenvolvimento de um modelo teórico adequado para explicar os valores destes campos obtidos experimentalmente. Em virtude deste fato foram feitas, neste trabalho, as medidas dos campos hiperfinos magnéticos nos núcleos de ^{181}Ta no sítio Y das ligas de Heusler Co_2ScSn , Co_2ScGa e Co_2HfSn . As medidas foram realizadas pela técnica de Correlação Angular Gama-Gama Perturbada Diferencial em Tempo.

A presença de interações quadrupolares nas medidas acima da temperatura de Curie para as três amostras estudadas indica que há a necessidade de um tratamento térmico prolongado com a finalidade de eliminar possíveis defeitos nas redes cristalinas das mesmas aumentando, assim suas simetrias; o que tornaria a análise das curvas de $A_{22}(t)$ abaixo de T_c mais simples. Os resultados de $R(t)$ obtidos confirmaram que o CIIM no ^{181}Ta nas ligas de Heusler do tipo Co_2YZ são negativos onde foram medidos o sinal. Para a liga Co_2HfSn o resultado determinado para o campo hiperfino concorda com o valor absoluto encontrado na literatura [34] e o sinal foi uma medida inédita deste trabalho. Para a liga Co_2ScGa o resultado obtido para o CIIM parece coerente em relação ao resultado obtido para a liga Co_2ScSn , entretanto é necessário efetuar-se as medidas da temperatura de Curie e momento magnético no átomo de Cobalto para esta amostra, além de fazer as medidas para a determinação do sinal do CIIM.

A principal dificuldade experimental do trabalho foi a confecção das amostras na estrutura de Heusler cúbica $L2_1$, uma vez que os tratamentos térmicos para o preparo das mesmas são desconhecidos e empíricos. Além disso, foi despendido muito tempo nas análises por difração de raios-x devido ao fato desta facilidade ser bastante deficiente no IPEN, sendo necessário contarmos com a colaboração do Instituto de Física da USP de São Paulo e de São Carlos e da Escola Politécnica da USP.

O laboratório está fazendo um grande esforço no sentido de determinar o CIIM em diversas outras ligas de Heusler com a finalidade de ampliar a sistemática de campos hiperfinos em ligas baseadas no Cobalto e, então, procurar propor um

Conclusões

modelo teórico capaz de explicar estes resultados:

Bibliografia

- [1] WEISS, P. Hypothesis of the molecular field and ferromagnetic properties. **J. Phys.**, 6:661-90, 1907.
- [2] HEISENBERG, W. Zur theorie des ferromagnetismus. **Z. Phys.**, 49:619-36, 1928
- [3] RAO, G.N. Dilute impurity hyperfine fields in Fe, CO, Ni and Gd. **At. Data Nucl. Data Tables**, 15:553-76, 1975.
- [4] SEMBA, M. **Temperature Dependences of hyperfine Fields at s-p impurities in fcc-cobalt studied by nuclear Spin precession following heavy-ion reactions.** New Brunswick, New Jersey, Oct., 1980. (PhD thesis)
- [5] WATSON, R.E. and FREEMAN, A.J. Origin of Effective Fields in Magnetic Materials. **Phys. Rev.**, 123:2027, 1961
- [6] WEBSTER, P.J. Heusler Alloys. **Contemp. Phys.**, 10(6):559-577, 1969
- [7] HEUSLER, F. Magnetic Mn alloys. **Ber. Dtsch. Phys. Ges.**, 5:219, 1903
- [8] BRADLEY, A.J. and RODGERS, J.W. The Crystal Structure of the Heusler Alloys. **Proc. R. Soc. London, Ser. A**, 144:340-59, 1934 .
- [9] DANIEL, E. and FRIEDEL, J. Sur la polarisation de spin des electrons de conductibilite dans les metaux ferromagnetiques. **J. Phys. Chem. Solids**, 24:1601-1607, 1963
- [10] J. A. CAMPBELL. Hyperfine fields on impurities in ferromagnetic metals. **J. Physics., C (London). Solid State Phys., Ser. 2**, 2:, 1969.
- [11] JENA, P. and GELDART, D.J.W. Interpretation of Hyperfine Fields in concentrated ferromagnetic alloys. **Solid State Commun.**, 15:139-142, 1974.

Bibliografia

- [12] CAROLI, B. and BLANDIN, A. Champs Hyperfins dans les alliages D'Heusler. **J. Phys. Chem. Solids**, **27**:503-508, 1966
- [13] BLANDIN, A. and CAMPBELL, J.A. Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida spin polarization in a strongly perturbed medium and applications to hyperfine fields. **Phys. Rev. Lett.**, **31**(1):51-4, 1973.
- [14] CAMPBELL, J.A. and BLANDIN, A. Hyperfine fields at non-magnetic sites in metals. **J. Magn. Magn. Mater.**, **1**:1-10, 1975.
- [15] DUNWORTH, J.V. The Application of the Method of Coincidence Counting to Experiments in Nuclear Physics. **Rev. Sci. Instr.**, **11**:167, (1940)
- [16] HAMILTON, D.R. On Directional Correlation of Successive Quanta. **Phys. Rev.**, **58**:122-131, 1940
- [17] BRADY, E.L. and DEUTSCH, M. Angular correlation of successive gamma ray quanta. **Phys. Rev.**, **72**(9):870-1, 1947.
- [18] GOERTZEL, G. Angular Correlation of Gamma-Rays. **Phys. Rev.**, **70**:897-909, 1946.
- [19] ALDER, K. Beitrage Zur Theorie der Richtung- skorrelation. **Helv. Phys. Acta**, **25**:235, 1952
- [20] ALDER, K. Angular Correlation in Magnetic Fields. **Phys. Rev.**, **84**:369, 1951
- [21] STEFFEN, R.M. and ALDER, K. Angular Distribution and Correlation of Gamma-Rays. In: HAMILTON, W.D., ed. **The electromagnetic interaction in nuclear spectroscopy**. Amsterdam, North-Holland, 1975. Cap. 12, p. 502-582
- [22] FALKOFF, D.L. and LING, D.S. Interference effects in gamma-gamma angular correlation. **Phys. Rev.**, **76**(11):1639-1648, 1949.
- [23] FERENTZ, M.E. and ROSENZWEIG, N. Table of angular correlation coefficients. In: SIEGBAHN, K., ed. **Alpha, Beta and Gamma Ray Spectroscopy**. Amsterdam, North-Holland, 1965. V. 2, p. 1687-90.
- [24] STEFFEN, R.M. and FRAUENFELDER, H. The influence of extranuclear fields on angular correlation. In: KARISSEN, E.; MATHIAS, E.;

Bibliografia

- SIEGBAIN, K., eds. **Perturbed Angular Correlation**. Amsterdam, North-Holland, 1964. Cap. 1, p. 3-89.
- [25] BIEDENHARN, L. C. and ROSE, M.E. Theory of Angular Correlation of Nuclear Radiations. **Rev. Mod. Phys.**, **25**:729, 1953
- [26] DEVONS, S.E. and GOLDFARB, L.J.B. In: FLUGGE, S., ed. **Encyclopedia of Physics**. Berlin, Springer, 1957. Vol. 42, p. 362. apud STEFFEN, R.M. and FRAUENFELDER, H. The influence of extra-nuclear fields on angular correlations. In: KARLSSON, E.; MATTHIAS, E.; SIEGBAIN, K. **Perturbed angular correlations**. Amsterdam, North-Holland, 1964. Cap. 1
- [27] MATTHIAS, E.; SCHNEIDER, W.; STEFFEN, R.M. Nuclear Level Splitting Caused by a Combined Electric Quadrupole and Magnetic Dipole Interaction. **Phys. Rev.**, **125**:261, 1962
- [28] ALDER, K.; ALBERS-SCHÖNBERG, H.; HEER, E.; NOVEY, T.B. The measurement of nuclear moments of excited states by angular correlation methods I. **Helv. Phys. Acta**, **26**:761-84, 1953.a
- [29] WISSIAK, K. and KAPFFLER, F. Large barium fluoride detectors. **Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.**, **227**:91-96, 1984.
- [30] FARUKHI, M.R. and SWINEHART, C.F. Barium Fluoride as a Gamma Ray and Charged Particle Detector. **IEEE Trans. Nucl. Sci.**, **NS-18**:200, 1971.
- [31] LAVAL, M.; MOSZYNSKI, M.; ALLEMAND, R.; CORMORECIE, E.; GUINET, P.; ODRU, R.; VACHER, J. Barium fluoride - inorganic scintillator for subnanosecond timing. **Nucl. Instrum. Methods**, **206**: 169-176, 1983.
- [32] HEINDINGER, R.; THIES, W.G.; APPEL, H.; THEN, G.M. High Resolution ¹⁸¹Hf TDPAC Spectroscopy using fast BaF₂ Detectors. **Hyperfine Interact.**, **35**:1007-1010, 1987
- [33] MALIK, S.K.; PAULOSE, P.L.; NAGARAJAN, R.; DWIGHT, A. E.; VAISHNAVA, P.P.; KIMBALL, C.W. Magnetic and Sn Mossbauer

Bibliografia

- Studies on a New Heusler Alloy CoZrScSn. **Hyperfine Interact.**, **34**:427-430, 1987
- [34] BAGGIO-SAITOVITCH, E.; BUTZ, T.; VASQUEZ, A.; VINCZE, J.; WAGNER, F.E.; ENDO, K. Hyperfine Fields in Co-Based Heusler Alloys. **J. Phys.(Les Ulis), Collog.**, **37** (12 suppl. c6): 417-20, 1976.
- [35] VAN ENGEN, P.G.; BUSCHOW, K.H.J.; ERMAN, M. Magnetic Properties and Magneto Optical Spectroscopy of Heusler Alloys Based on Transition Metals and Sn. **J. Magn. Magn. Mat.**, **30**:374-382, 1983
- [36] LEDERER, C.M., ed. and SHIRLEY, U.S., ed. **Table of isotopes**. 7.ed. New York, Wiley, 1978, p.1135.
- [37] NUCLEAR data sheets, **43**(3):329, 1984.
- [38] GRABOWKI, Z.; PETERSSON, B.G.; GERHOLM, T.R.; THUM, J.E. Penetration matrix elements and nuclear structure effects in ^{181}Ta . **Nucl. Phys.**, **24**:251-268, 1961
- [39] MACGOWAN, F.K. Angular Correlations of Gamma Rays in ^{181}Ta . **Phys. Rev.**, **93**(3):471-7, 1954
- [40] WEAST, E.C. **Handbook of Chemistry and Physics**. 51. ed. Cleveland, OH, Chemical Rubber, 1970.
- [41] LIVI, R.P.; LIVI, F.P.; RODGERS, J.D.; ZAWISLAK, F.C. Study of the Hyperfine Magnetic field acting on ^{181}Ta in Ni Matrix. **Phys. Rev., B: Condens. Matter**, **8**(7):3098-3102, 1973
- [42] CAMERON, J.A.; GARDNER, P.R.; PRESTWICH, W.V.; ZAMORI, Z.; SANTRY, D.C. Hyperfine field at ^{181}Ta nuclei in a nickel lattice. **Can. J. Phys.**, **48**:2725-9, 1970.
- [43] ZIEBECK, K.R.A. and WEBSTER, P.J. A neutron diffraction and magnetization study of Heusler alloys containing Co and Zr, Hf, V or Nb. **J. Phys. Chem Solids**, **35**:1-7, 1974.
- [44] WEBSTER, P.J. and ZIEBECK, K.R.A. Magnetic and Chemical order in Heusler alloys containing cobalt and titanium. **J. Phys. Chem. Solids**, **34**:1647, 1973.

Bibliografia

- [45] PENDL JR, W. **Estudo do campo hiperfino magnético no ^{181}Ta nos sítios de Nb e V nas ligas de Heusler Co_2YAl ($\text{Y}=\text{Nb}, \text{V}$).** São Paulo, 1990, (Dissertação de Mestrado, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares).
- [46] CARBONARI, A.W.; PENDL JR, W.; ATTILI, R.N.; SAXENA, R.N. Magnetic hyperfine field in the Heusler alloys Co_2YZ ($\text{Y}=\text{Sc}, \text{Ti}, \text{Hf}, \text{V}$, $\text{Nb}; \text{Z}=\text{Al}, \text{Si}, \text{Ge}, \text{Sn}$). (no prelo)
- [47] SOUZA, S.D. DE; SAXENA, R.N.; SHREINER, W.; ZAWISLAK, F.C. Magnetic hyperfine fields in Heusler alloys Co_2YZ ($\text{Y}=\text{Ti}, \text{Zr}; \text{Z}=\text{Al}, \text{Ga}, \text{Sn}$). **Hyperfine Interact.**, **34**:431-4, 1987.
- [48] BUSCHOW, K.H.J. and VAN ENGEN, P.G. Magnetic and magneto-optical properties of Heusler alloys based on aluminium and gallium. **J. Magn. Magn. Mater.**, **25**:90-96, 1981.
- [49] GÖRLICH, E.A.; KMIEC, R.; LAIKA, K.; MATLAK, T.; RUEBENBAUER, K.; SZYTULA, A.; TOMALA, K. Transferred hyperfine fields at the tin site in the Heusler type alloys Co_2YSn ($\text{Y}=\text{Ti}, \text{Zr}, \text{Hf}, \text{V}$). **Phys. Stat. Solidi A**, **30**, 765 (1975)
- [50] SILVA, R. DA; SAXENA, R.N.; SCHAF, J.; LIVI, F.P.; ZAWISLAK, F.C. Magnetic hyperfine field on Ta in Co_2HfAl and Co_2HfGa Heusler alloys. **Hyperfine Interact.**, **9**:489-94, 1981
- [51] FUJITA, Y.; ENDO, K.; TERADA, M.; KIMURA, R. Magnetic properties of Heusler type alloys M_2XSn ($\text{M}=\text{Fe}, \text{Co}$ or Ni , $\text{X}=\text{Ti}$ or V). **J. Phys. Chem. Solids**, **33**:1443, 1972.
- [52] TERADA, M.; FUJITA, Y.; ENDO, K. Magnetic properties of the Heusler alloys M_2XSn ($\text{M}=\text{Co}$ or Ni , $\text{X}=\text{Zr}, \text{Nb}$ or Hf). **J. Phys. Soc. Jpn.**, **36**:620, 1974.
- [53] ENDO, K.; SHINOGI A. and VINCZE I. Hyperfine field at tin site in Heusler alloys Co_2TiSn , Co_2ZrSn and Co_2HfSn . **J. Phys. Soc. Jpn.**, **40**:674, 1976.
- [54] DUNLAP, R.A. and STROINK, G. Conduction electron contributions to Sn hyperfine field in the Heusler alloy $\text{Co}_2\text{Ti}_{1-x}\text{V}_x\text{Sn}$. **J. appl. Phys.**, **53**:8210, 1982.