UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO
INSTITUTO DE FÍSICA

Metodologia de Redução dos Espectros de Correlação Angular Perturbada

Rogério Tramontano

TESE DE DOUTORADO
apresentada ao
Instituto de Física da
Universidade de São Paulo

INSTITUTO DE FÍSICA
Serviço de Biblioteca e Informação
Tombo: 3818
ex. 1

Comissão Examinadora:
Prof. Dr. Vito Roberto Vanin (orientador)
Prof. Dra. Márcia de A. Rizzutto (IFUSP)
Prof. Dr. Artur Wilson Carbonari (IPEN)
Prof. Dra. Maristela Olzon M. Dionysio de Souza (UFSCar)
Prof. Dr. Henrique Saitovitch (CBPF)

SÃO PAULO
2003

Prof. Armando Corbani Ferraz
Presidente da Comissão de Pós Graduação

25/04

537.5352
T771m
D
ex.1

FICHA CATALOGRÁFICA
Preparada pelo Serviço de Biblioteca e Informação do Instituto de Física da Universidade de São Paulo

Tramontano, Rogério

Metodologia de Redução dos Espectros de Correlação Angular Perturbada.
São Paulo, 2003.

Tese (Doutoramento) Universidade de São Paulo
Instituto de Física. Departamento de Física Experimental

Orientador: Prof. Vito Roberto Vanin
Área de Concentração: Física

Unitermos: 1. Correlação Angular Perturbada;
2. Espectroscopia Gama;
3. Análise Multivariada;
4. Efeitos Extranucleares;
5. Análise de Dados de Convolução.

USP/IF/SBI-032/2003

aos meus filhos
Guilherme e Eduardo

Agradecimentos

Agradeço em especial ao Professor Vito Roberto Vanin, pela extrema paciência, apoio e dedicação com que conduziu a orientação e o desenvolvimento desse trabalho.

Ao Grupo de Interações Hiperfinas do IPEN pelos espectros fornecidos para a análise e pelas informações que muito contribuíram para a realização desse trabalho.

À Prof. Maristela Olzon Dyonisio pelas sugestões.

Também agradeço a todos os professores, funcionários e estudantes do Laboratório do Acelerador Linear pelo ótimo convívio que tivemos durante todo o tempo.

Ao Instituto de Física da USP, em destaque a comissão de Pós Graduação, pela oportunidade do início e término do trabalho.

Ao CNPq pelo apoio financeiro.

Á FAPESP pelo apoio financeiro.

Resumo

Metodologia de Redução de Espectros de Correlação Angular Perturbada

Medidas de correlação angular perturbada diferencial no tempo – TDPAC – foram efetuadas com um sistema de detetores de HPGe com o objetivo de ampliar o conjunto de nuclídeos utilizáveis como sondas de prova de campo magnético e de gradiente de campo elétrico na matéria. A análise dos espectros obtidos considera a convolução da função de perturbação com a resposta temporal dos detetores e coeficientes de correlação angular de ordem superior a dois, o que está fora do escopo do procedimento convencional quando se utiliza o arranjo experimental padrão. O algoritmo é baseado no método dos mínimos quadrados e considera rigorosamente as incertezas estatísticas dos dados. O programa de cálculo implementado é orientado a objetos, que representam as estruturas matemáticas envolvidas na redução dos dados pelo método dos mínimos quadrados e os sistemas físicos característicos do experimento. Os detetores semicondutores mostraram-se inadequados ao estudo de materiais por TDPAC nas condições experimentais disponíveis. O método de análise proposto aqui foi aplicado à redução dos espectros obtidos em outros laboratórios, que utilizam cintiladores rápidos, resultando na determinação de parâmetros associados à estrutura cristalina para os quais a análise convencional não é sensível, em particular dos coeficientes de atenuação temporal da correlação para cada uma das freqüências de oscilação. Esta metodologia permite calcular corretamente as incertezas nos parâmetros, notadamente nas frações de ocupação de diferentes sítios pela sonda de prova.

Abstract

Perturbed Angular Correlation Spectra Reduction Methodology

Time dependent perturbed angular correlation – TDPAC – measurements were performed with a HPGe detector array aiming to increase the set of nuclides usable as magnetic field and electric field gradient probes in matter. The analysis of the obtained spectra takes into account the convolution of the perturbation function with the detector time response and angular correlation coefficients of order greater than two, which is not in scope of the conventional procedure. The algorithm is based on the least-squares method and considers rigorously the data statistical uncertainties. The implanted computer code is built on objects representing the mathematical entities used in data reduction by the least-squares method and the physical components of the experiment. The semiconductor detectors were found unsuitable for material study through TDPAC in the available experimental conditions. The analysis method proposed here was applied to the reduction of spectra obtained by other Laboratories that use fast scintillators, giving crystalline structure related parameters which cannot be determined in the conventional analysis, particularly correlation time attenuation parameters for each oscillation frequency. The uncertainties in the fitted parameters are correctly calculated by this method, notably in the site probe occupation fractions.

Índice

Capítulo 1 - Introdução 1

Capítulo 2 - Correlação Angular Perturbada 3
2.1 – Introdução 3
2.2 – Função de Correlação Angular 3
2.3 – Correlação Angular Perturbada 6
2.4 – Interações Magnéticas 8
2.5 – Interações Elétricas 10
2.5.1 – Campo Axialmente Simétrico 11
2.5.2 – Campo Assimétrico 12

Capítulo 3 - Método Experimental 17
3.1 – Espectrômetro 17
3.2 – Sondas de Prova 18
3.3 – Eletrônica Associada 20
3.4 – Espectros Obtidos 22
3.5 – Função Decaimento 24
3.6 – Convolução temporal com uma gaussiana 26
3.7 – Convolução Temporal Numérica 29

Capítulo 4 - Análise de Dados 31
4.1 – Introdução 31
4.2 – Método Convencional 32
4.2.1 – Espectro Razão 32
4.2.2 – Espectro de Fourier 34
4.3 – Análise Proposta 36
4.3.1 – Ajuste Simultâneo 36
4.3.2 – Escolha de Modelos 37
4.3.3 – Modelos Propostos 39
4.3.3 – Múltiplos Sítios 42

Capítulo 5 - Resultados Obtidos 45
5.1 – Espectros Analisados 45
5.2 – Interação Quadrupolar no Oxido de Háfnio 46
5.3 – Interação Quadrupolar de ^{111}Cd em $HfV_2H_{1,78}$ 53
5.4 – Interação Magnética do Níquel em ^{181}Ta 58
5.5 – Outras Medidas Analisadas 63
5.5.1 – Interação Quadrupolar no Háfnio Metálico 63
5.5.3 – Interação Magnética do Níquel em ^{111}Cd 64

Capítulo 6 - Medidas com HPGe 67
6.1 – Introdução 67
6.2 – Sistema Detetor 68
6.3 – Eletrônica de Aquisição 69
6.4 – Espectros Obtidos 71
6.5 – Respostas Temporais 73
6.6 – Análise Utilizada 74

Capítulo 7 - Discussão 77
7.1 – Espectro Razão Rigoroso 77
7.2 – Correlação entre parâmetros 79
7.3 – Múltiplos Deltas 81
7.4 – Resolução Temporal Grande 82
7.5 – Eficiência dos Detetores 84

Capítulo 8 - Conclusão 87

Apêndice A - Método dos Mínimos Quadrados 89
A.1 – Funções Lineares 89
A.2 – Funções Não Lineares 91

Apêndice B - Documentação Computacional 95
B.1 - Modulo Grafico 95
B.2 – Modulo Álgebra 96
B.3 – Módulo Dado 97
B.4 – Modulo Modelo 98
B.5 – Modulo Função 99
B.6 – Modulo Ajuste 100
B.7 – Modulo Exceção 100

Referências 103

Capítulo 1

Introdução

A espectroscopia gama desenvolveu-se com o objetivo de estudar a estrutura nuclear do isótopo que emite tal radiação. Umas das técnicas utilizadas é a correlação angular que permite determinar spins dos níveis nucleares e/ou as multipolaridades das transições. Neste estudo, aproveitamos o fato do núcleo interagir com um campo eletromagnético externo, alterando a probabilidade de emissão numa certa direção, dando origem à correlação angular perturbada. A análise dessa correlação permite determinar propriedades tanto do núcleo radiativo quanto do campo extranuclear. Então, se núcleos radiativos com momentos de dipolo magnético e/ou quadrupolo elétrico conhecidos, chamados de sondas de prova, forem colocados numa rede cristalina, podemos determinar o campo magnético e/ou o gradiente do campo elétrico existentes no sítio ocupado pelo núcleo radioativo dessa estrutura analisando a perturbação causada à correlação angular. Esse gradiente de campo elétrico reflete a simetria da estrutura cristalina e responde a defeitos pontuais, transições de fase, etc. Portanto a correlação angular perturbada diferencial no tempo conhecida por TDPAC ou PAC simplesmente, é uma técnica de Física Nuclear Experimental com aplicação na Física da Matéria Condensada. Vários trabalhos demonstram sua grande utilidade na determinação de fenômenos relacionados à estrutura dos materiais.

O método de análise utilizado nesses experimentos consiste na análise de espectros de coincidências da cascata gama a ser estudada, que se afasta da lei exponencial simples devido à perturbação da correlação angular. A composição dos vários espectros de

decaimento separa as oscilações da exponencial do decaimento e forma um conjunto de dados que, ao ser ajustado, fornece parâmetros relacionados à estrutura cristalina em que a sonda de prova está inserida. Este trabalho tem como principal objetivo analisar os espectros de TDPAC mais rigorosamente, ajustando os espectros de decaimento sem nenhuma composição. Essa análise é capaz de fornecer parâmetros que não podem ser obtidos facilmente pela análise convencional. Além disso, propomos modelos que modificam sensivelmente a forma da função utilizada nos ajustes, através de considerações sobre a resolução temporal do sistema detetor utilizado.

Como teste do método de análise ajustamos espectros obtidos por grupos de pesquisa como o da Universidade de Bonn e o Grupo de Interações Hiperfinas do IPEN. Além disso, foram feitas medidas no Laboratório do Acelerador Linear em espectrômetros de HPGe, que, por não possuírem boa resolução temporal, não são indicados para medidas de TDPAC. A obtenção de resultados nesse experimento, mesmo que com pequena precisão, já indica a eficiência do método de análise proposto por este trabalho.

O capítulo 2 apresenta a teoria de correlação angular perturbada e das interações hiperfinas de um núcleo quando sujeito a um gradiente de campo elétrico ou campo magnético. No capítulo 3 apresentamos toda a metodologia experimental utilizada normalmente e a descrição completa dos dados obtidos por tal aparato.

No capítulo 4 formalizamos a análise de dados utilizada nesse trabalho que comparamos com a análise convencional que também está descrita nesse capítulo. No capítulo 5 mostramos resultados obtidos na análise dos espectros de outros grupos de pesquisa, enquanto que no capítulo 6 é mostrado como foram adquiridos e analisados os espectros do espectrômetro de HPGe.

As discussões físicas sobre a análise de dados e os resultados obtidos por ela foram feitas no capítulo 7. O capítulo 8 apresenta as conclusões deste trabalho. Toda a teoria de ajuste de funções pelo método dos mínimos quadrados está descrita no apêndice A. Uma visão geral do programa utilizado nos ajustes está descrita no apêndice B.

Capítulo 2

Correlação Angular Perturbada

2.1 – Introdução

A probabilidade de emissão de partículas por núcleos radiativos depende em geral do ângulo entre o spin nuclear e a direção de emissão. Sob condições normais, a radiação emitida é isotrópica, pois os núcleos numa certa amostra estão orientados aleatoriamente. Para a observação de radiação anisotrópica é necessário um alinhamento desses dos spins desses núcleos, que pode ser obtido, por exemplo, mantendo a amostra sob baixa temperatura e submetendo-a a um forte campo magnético ou gradiente de campo elétrico, que pode alinhar ou polarizar esse núcleo. Daí então se mede a distribuição angular da radiação emitida em relação à direção do campo aplicado. Outro método consiste em observar o decaimento de gamas de uma cascata de níveis de um núcleo, medindo-se um gama em coincidência com o outro em detetores separados por um dado ângulo. Dessa forma a primeira radiação estará correlacionada angularmente com a segunda, surgindo daí o termo correlação angular.

2.2 - Função de Correlação Angular

A função de correlação angular entre gamas de direções de emissão $\vec{k}_1$ e $\vec{k}_2$ provenientes de uma cascata foi primeiramente derivada por Hamilton [Ha40] em 1940. Em seu artigo, ele usa a teoria de perturbação de segunda ordem onde calcula a probabilidade

com que um dado núcleo depois de completar seu decaimento em cascata terá dois gamas emitidos com energias, direções e polarizações definidas. A probabilidade média entre todos os núcleos de uma amostra com todas as energias gamas emitidas além de todas as outras propriedades observadas dos quantas, é a função de correlação angular.

A derivação utilizada aqui é fundamentalmente diferente, pois usa a teoria de perturbação de primeira ordem. Além disso, o único processo considerado está esquematizado na figura 2.1, ou seja, um núcleo decai de seu nível inicial com spin I_i para o nível intermediário com spin I e em seguida para o nível final I_f sendo que são observadas as radiações R_1 e R_2 nas direções $\vec{k}_1$ e $\vec{k}_2$. A teoria de perturbação de primeira ordem produz a matriz densidade $Q(\vec{k}_1)$ [Sa94] que por sua vez define o estado intermediário I e indica que a primeira radiação já foi observada. A segunda radiação emitida pela cascata é tratada da mesma maneira, porém com a diferença de que a matriz densidade Q não é conhecida a priori pois depende da transição precedente. Após a emissão de $\vec{k}_2$ a matriz densidade $Q_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2)$ que relata por completo o decaimento em cascata fica completamente definida.

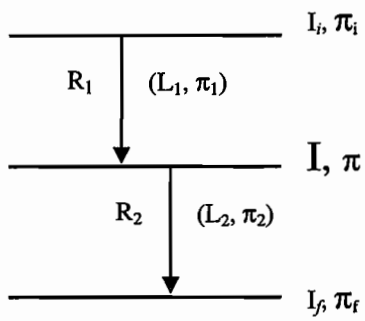


Figura 2.1: Números quânticos envolvidos numa cascata nuclear. O gama R_1 com momento angular e paridade definidos decai do estado inicial I_i ao estado intermediário I, enquanto o gama R_2 decai de I ao estado final I_f. Cada um desses estados também tem momento angular e paridade bem definidos.

A probabilidade $P_f(m_f)$ de se achar o núcleo no estado final m_f, quando os dois gamas são emitidos nas direções $\vec{k}_1$ e $\vec{k}_2$, é dada pelos elementos diagonais de Q_f, e portanto a função de correlação angular é dada por:

$$W(\vec{k}_1,\vec{k}_2)=\sum_{m_f}P_f(m_f)=\sum_{m_f}\left\langle m_f \,|\, Q_f(\vec{k}_1,\vec{k}_2)\,|\, m_f\right\rangle. \tag{2.1}$$

Como os estados existentes com mesmo número quântico m têm o mesmo peso e são igualmente populados temos então que a função de correlação angular passa a ser escrita através das matrizes densidades individuais, ou seja:

$$W(\vec{k}_1,\vec{k}_2)=\sum_{m,m'}\left\langle m \,|\, Q(\vec{k}_1)\,|\, m'\right\rangle\left\langle m' \,|\, Q(\vec{k}_2)\,|\, m\right\rangle \tag{2.2}$$

Usando as propriedades de hermiticidade do operador densidade de matriz Q e a teoria quântica do momento angular a expressão para a função de correlação angular perturbada torna-se [Fr65]:

$$\begin{aligned} W(\vec{k}_1,\vec{k}_2)=(-1)^{2I-I_i-I_f}\sum_{k}\sum_{L_1L_1'L_2L_2'}\sum_{\tau_1\tau_2}(-1)^{k-L_1'-L_2'}\begin{Bmatrix} I & I & k \\ L_1 & L_1' & I_i \end{Bmatrix}\begin{Bmatrix} I & I & k \\ L_2 & L_2' & I_f \end{Bmatrix}\times \\ \times\left\langle I_f \,\|\, L_2\pi_2 \,\|\, I\right\rangle\left\langle I_f \,\|\, L_2'\pi_2' \,\|\, I\right\rangle^*\left\langle I \,\|\, L_1\pi_1 \,\|\, I_i\right\rangle\left\langle I \,\|\, L_1'\pi_1' \,\|\, I_i\right\rangle^*\times \\ \times\ {}_{k\tau_1}(L_1'L_1)\ {}^*_{k\tau_1}(L_2'L_2')D^k_{\tau_2\tau_1}(\vec{k}_2\rightarrow\vec{k}_1). \end{aligned} \tag{2.3}$$

onde $C_{k\tau}(LL')$ são as autofunções para o momento angular total L e sua projeção m com autovalores k e τ. Experimentalmente observamos somente as direções dos dois gamas emitidos, e não suas polarizações.

O operador D aqui representa uma matriz unitária chamada de matriz rotação originária da representação do grupo de rotação tridimensional. Com $\tau_1=\tau_2=0$, D^k pode ser representado por polinômios de Legendre e a expressão (2.3) simplifica-se para:

$$W(\vec{k}_1,\vec{k}_2)=W(\theta)=\sum_{k.par}A'_{kk}P_k(cos\theta), \tag{2.4}$$

onde θ é o ângulo entre as direções $\vec{k}_1$ e $\vec{k}_2$. Os coeficientes A_{kk} são dados por:

$$A'_{kk} = A'_k(L_1L'_1I_iI)A'_k(L_2L'_2I_fI), \tag{2.5}$$

onde

$$A'_k(L_1L'_1I_iI) = \sum_{L_1L'_1}(-1)^{L_1}C^*_{k0}(L_1L'_1)\begin{Bmatrix} I & I & k \\ L_1 & L_1 & I_i \end{Bmatrix}\langle I \,\|\, L_1\pi_1 \,\|\, I_i\rangle\langle I \,\|\, L'_1\pi'_1 \,\|\, I_i\rangle^*,$$

$$A'_k(L_2L'_2I_fI) = \sum_{L_2L'_2}(-1)^{L_2}C^*_{k0}(L_2L'_2)\begin{Bmatrix} I & I & k \\ L_2 & L_2 & I_f \end{Bmatrix}\langle I \,\|\, L_2\pi_2 \,\|\, I_f\rangle\langle I \,\|\, L'_2\pi'_2 \,\|\, I_f\rangle^* \tag{2.6}$$

dependendo basicamente dos spins dos estados inicial e final e das multipolaridades das transições gama. Os valores de A_{kk} dados em (2.5) não estão normalizados. Em geral faz-se A_{00} = 1 e os demais são normalizados a partir deste valor, sendo o valor de k máximo considerado nas aplicações usuais igual a 4, pois as transições gama são na maioria do tipo dipolar ou quadrupolar. Dessa forma, a equação $W(\theta)$, torna-se simplificadamente,

$$W(\theta) = 1 + A_{22}P_2(\cos\theta) + A_{44}P_4(\cos\theta) \tag{2.7}$$

2.3 – Correlação Angular Perturbada

Vamos assumir agora a presença de interação do núcleo no seu estado intermediário I com algum campo extranuclear. Este campo pode desdobrar os estados degenerados desse estado I e essa abertura causa uma perturbação na correlação angular, que provoca transições entre os autoestados de momento angular com projeções diferentes e faz a mudança da matriz densidade $Q_a(\vec{k}_1)$ para $Q_b(\vec{k}_1)$ durante o tempo que este estado intermediário fica exposto à interação extranuclear. Esse tipo de interação é chamado de interação hiperfina e é da ordem de μeV em comparação com a ordem de grandeza da interação nuclear que é de MeV e da interação eletrônica que é de eV. A mudança na matriz

densidade pode ser descrita por uma transformação unitária que depende da interação extranuclear.

A mudança dos estados devido a esse campo pode ser descrita através do operador de evolução temporal unitário $\Lambda(t)$. Tal operador de evolução temporal deve satisfazer a equação de Schrödinger:

$$\frac{\partial}{\partial t}\Lambda(t) = -\frac{i}{\hbar}K\Lambda(t) \tag{2.8}$$

onde K descreve o hamiltoniano da interação extranuclear. Através dessa interação a função de correlação angular (2.5) passa a depender do tempo na forma:

$$W(k_1,k_2,t) = \sum_{k_1,k_2,N} A_{k_1}(1)A_{k_2}(2)G_{k_1k_2}^{N\,N}(t)[(2k_1+1)(2k_2+1)]^{-1/2} \times Y_{k_1}^{N*} \times Y_{k_2}^{N} \tag{2.9}$$

e quando utilizamos o ângulo θ como ângulo entre as direções k_1 e k_2 a expressão torna-se:

$$W(k_1,k_2,t) = W(\theta,\mathrm{t}) = \sum_{k\,\mathrm{par}} A'_{kk}G_{kk}(t)P_k(cos\theta) \tag{2.10}$$

onde

$$G_{kk}(t) = (2k+1)^{-1}\sum_{N=-k}^{+k} G_{kk}^{NN}(t) \tag{2.11}$$

Analisando fisicamente a expressão (2.11) chegamos à conclusão de que a forma básica da função de correlação angular dada pela expressão (2.4) não foi alterada, exceto pela introdução do fator de perturbação $G_{kk}(t)$ que contém toda a informação sobre a interação com os campos extranucleares. Dessa forma podemos identificar a expressão (2.11) com a função de correlação angular perturbada. O termo de perturbação $G_{kk}(t)$ será diferente para

cada tipo de interação pois depende do hamiltoniano K. No caso de interações estáticas, isto é, não dependentes do tempo, o fator de perturbação $G_{k_1k_2}^{NN}$ será dado por:

$$G_{k_1k_2}^{NN} = \sum_m [(2k_1+1)(2k_2+1)]^{1/2} \begin{pmatrix} I & I & k_1 \\ m_a' & -m_a & N \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I & I & k_2 \\ m_b' & -m_b & N \end{pmatrix} \times \exp\left[-\frac{i}{\hbar}(E_m - E_{m'})t\right] \tag{2.12}$$

onde E_m representa os autovalores do hamiltoniano de perturbação K, que faz a mudança do sub-estado m_a para o sub-estado m_b durante o tempo em que ocorre a interação com o núcleo.

2.4 – Interações Magnéticas

Fisicamente o spin nuclear de um núcleo com momento de dipolo magnético relevante $\vec{\mu}$ quando sujeito a um campo magnético $\vec{B}$ precessa em torno da direção desse campo, com uma dada freqüência. Tal precessão provoca uma mudança na direção de emissão da radiação gama perturbando assim a função de correlação angular. O hamiltoniano de uma interação magnética estática é dado por:

$$H = -\vec{\mu}.\vec{B} \tag{2.13}$$

Tal hamiltoniano tem autovalores dados por:

$$E_m = \hbar\omega_L m, \tag{2.14}$$

sendo a freqüência ω_L a freqüência de precessão, chamada freqüência de Larmor dada por:

$$\omega_L = \frac{g\mu_N B}{I} \tag{2.15}$$

onde μ_N é o magneton nuclear (5,05 x 10^{-31} J/Gauss) e g o fator giromagnético. Nesse caso m na expressão (2.14) é a projeção do spin I do nível intermediário. O efeito dessa interação, é portanto um desdobramento Zeeman eqüidistante, como pode ser verificado no exemplo da figura 2.2 onde consideramos I=5/2.

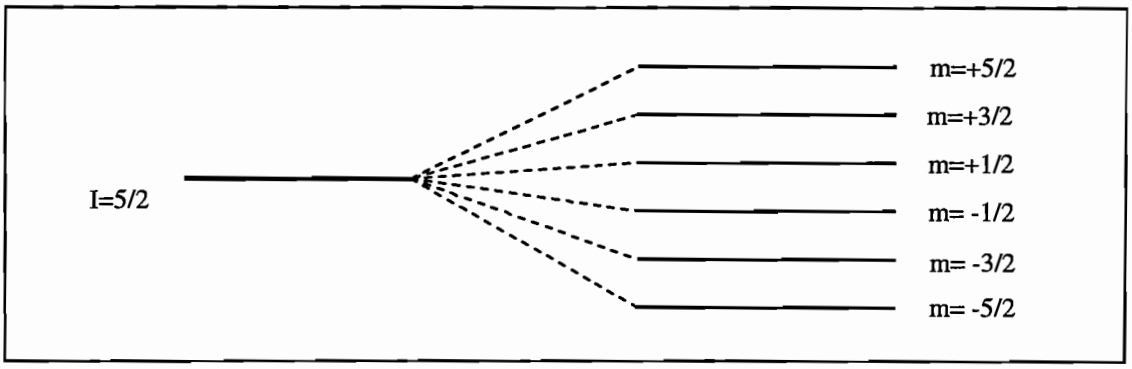


Figura 2.2: Desdobramento de um nível de energia de um núcleo com I=5/2 antes degenerado em suas projeções de momento angular devido à interação hiperfina de natureza magnética.

Inserindo os dados autovalores (2.14) em (2.12) e usando a condição que $m - m' = N$, o que faz com que apliquemos a propriedade de ortogonalidade dos símbolos de *3j*, obtemos:

$$G_{kk}^{N\,N}(t) = e^{-iN\omega_L t} \tag{2.16}$$

Note que a função não é real e não depende de *k*. A soma na expressão (2.11) gera os fatores de perturbação dados por:

$$\begin{aligned} G_{22}(t) &= \frac{1}{5}(1 + 2\cos\omega_L t + 2\cos 2\omega_L t), \\ G_{44}(t) &= \frac{1}{9}(1 + 2\cos\omega_L t + 2\cos 2\omega_L t + 2\cos 3\omega_L t + 2\cos 4\omega_L t) \end{aligned} \tag{2.17}$$

sendo que as ordens maiores, que não importam para a nossa análise, são construídas da mesma forma.

2.5 – Interações Elétricas

A interação hiperfina de natureza elétrica está ligada à existência de um momento de quadrupolo elétrico grande por parte do núcleo. Tal momento de quadrupolo elétrico interage com o gradiente do campo elétrico gerado por uma distribuição de cargas ao redor desse núcleo. Seu hamiltoniano é dado por:

$$H = \frac{eQ}{6I(2I-1)} \sum_{i,j} V_{i,j} \left[\frac{3}{2}(I_i I_j + I_j I_i) - \delta_{ij} I^2 \right] \tag{2.18}$$

sendo o valor do gradiente do campo elétrico *V(r)* podendo ser representado tensor $V_{i,j}$ cartesiano de tamanho (3 x 3) da forma:

$$V_{i,j} = \frac{\partial^2 V(r)}{\partial x_i \partial x_j} \qquad \text{com } x_1, x_2, x_3 = x,y,z \tag{2.19}$$

É possível escolher um sistema de coordenadas tal que as derivadas mistas do potencial *V(r)* se anulem deixando o tensor $V_{i,j}$ diagonal. Nesse sistema de coordenadas o hamiltoniano será dado por:

$$H = \frac{eQV_{zz}}{4I(2I-1)} \left[(3I_z^2 - I^2) + \frac{1}{2}\eta (I_x^2 - I_y^2) \right] \tag{2.20}$$

onde

$$\eta = \frac{V_{xx} - V_{yy}}{V_{zz}} \tag{2.21}$$

com $|V_{xx}| \leq |V_{yy}| \leq |V_{zz}|$ implicando assim em $0 \leq \eta \leq 1$.

2.5.1 – Campo Axialmente Simétrico

Se o campo é axialmente simétrico então $\eta = 0$ e os autovalores do hamiltoniano são dados por

$$E_m = \left[3m^2 - I(I+1)\right] \cdot 3\omega_Q \hbar \tag{2.22}$$

onde

$$\omega_Q = \frac{{}^{zz}}{4\hbar I(2I-1)} \tag{2.23}$$

é a chamada freqüência de precessão de quadrupolo elétrico, que apesar do nome não pode ser descrita como sendo uma simples precessão do ponto de vista semi-classico. Note que a degenerescência é mantida para estados de $+m$ e $-m$ devido ao termo m^2 na equação (2.22). Normalmente utiliza-se a freqüência dada por:

$$\nu_Q = \frac{eQV_{zz}}{h} \tag{2.24}$$

pois essa freqüência é característica da amostra, independente do spin da sonda de prova. Dessa forma a relação ω_Q e ν_Q é dada por:

$$\omega_Q = \frac{\nu_Q \cdot 2\pi}{4I(2I-1)} \tag{2.25}$$

Com os autovalores (2.22) colocados na equação (2.12) temos que o fator de perturbação se torna:

$$G_{k_1k_2}^{N\,N} = \sum_m [(2k_1+1)(2k_2+1)]^{1/2} \begin{pmatrix} I & I & k_1 \\ m' & -m & N \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I & I & k_2 \\ m' & -m & N \end{pmatrix} \times \exp\left[-3i(m^2 - m'^2)t\right] \tag{2.26}$$

ou mais instrutivamente como:

$$G_{k_1k_2}^{N\,N}(t) = \sum S_{n\,N}^{k_1k_2} \cos(n\omega_0 t) \tag{2.27}$$

onde a freqüência angular ω_0 é a menor freqüência de precessão do spin dada por:

$$\omega_0 = \begin{cases} 3\omega_Q & \text{para I inteiro} \\ 6\omega_Q & \text{para I semi-inteiro} \end{cases} \tag{2.28}$$

Substituindo (2.27) em (2.11) temos que os fatores de atenuação $G_{kk}(t)$ são dados por:

$$G_{kk}(t) = \sum_n S_{kn} \cos(n\omega_0 t)\,, \tag{2.29}$$

com os valores de S_{kn} podem ser associados à amplitudes de cada freqüência:

$$S_{kn} = \sum_{m,m'} \begin{pmatrix} I & I & k \\ m' & -m & -m'+m \end{pmatrix}. \tag{2.30}$$

onde $|m^2 - m'^2| = n$ e $2|m^2 - m'^2| = n$ para valores inteiros e semi-inteiros de I respectivamente.

2.5.2 – Campo Assimétrico

O cálculo para gradientes de campo elétrico onde $\eta \neq 0$ é bem mais complicado pois o Hamiltoniano deve ser diagonalizado e os autovalores e autofunções determinados para cada valor de ω_Q e η pois os operadores de momento angular projetam subestados m diferentes. Como conseqüência, as freqüências de transição ω_n e suas amplitudes S_{kn}

mudam com η. A diagonalização da matriz desse Hamiltoniano, cujo tamanho depende do valor do spin I, pode ser feita analiticamente para vários valores de I, como pode ser visto, por exemplo em [Bu89]. A figura 2.3 mostra os desdobramentos dos níveis para o estado intermediário com spin I=5/2, em função do parâmetro de assimetria η.

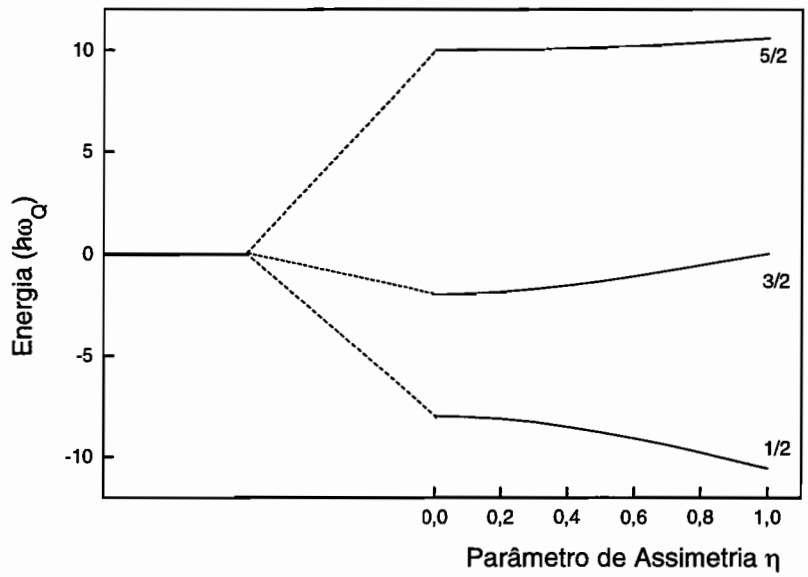


Figura 2.3: Desdobramento de um estado nuclear com I=5/2 causado por um gradiente de campo elétrico em função do parâmetro de assimetria. Os valores de energia estão em unidades de $\hbar\omega_Q$

A diferença dos autovalores de energia serve ao cálculo das freqüências de oscilação e conseqüentemente à determinação da freqüência de quadrupolo, enquanto que as amplitudes dessas freqüências são calculadas de forma complexa, através dos autoestados do hamiltoniano diagonalizado. Os valores das freqüências são denotados por ω_i (independentes de k) e as amplitudes por S_{ki}, ambos dependentes de η na equação:

$$G_{kk}(t) = S_{k0} + \sum_i S_{ki}.\cos(\omega_i t) \tag{2.29}$$

Em especial para o spin I=5/2, [Me77] coloca equações mais simplificadas para o cálculo de $G_{22}(t)$ para $\eta \neq 0$ sendo que $G_{44}(t)$ pode ser calculado pela propriedade de que as amplitudes de cada função obedecem [Bu89]:

$$5 \cdot (S_{20} \quad S_{21} \quad S_{22} \quad S_{23}) + 9 \cdot (S_{40} \quad S_{41} \quad S_{42} \quad S_{43}) = (2 \quad 4 \quad 4 \quad 4) \qquad (2.30)$$

A figura 2.4 mostra a forma de $G_{22}(t)$ para alguns valores de η para o spin de I=5/2 e a figura 2.5 mostra a forma de $G_{44}(t)$ para o mesmo spin.

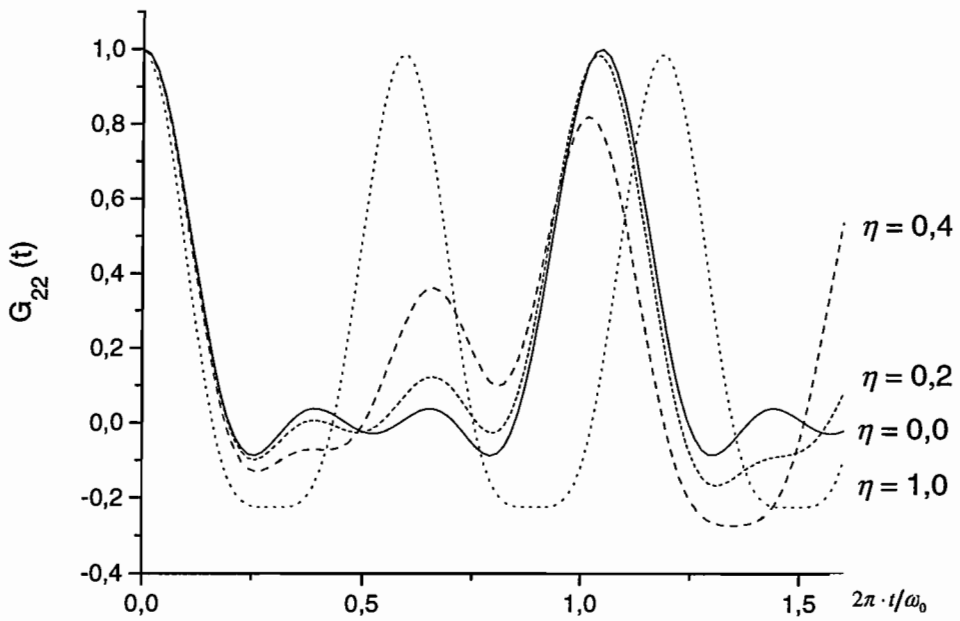


Figura 2.4: Coeficientes de atenuação $G_{22}(t)$ para alguns valores do parâmetro de assimetria em função do período de oscilação para spin I=5/2.

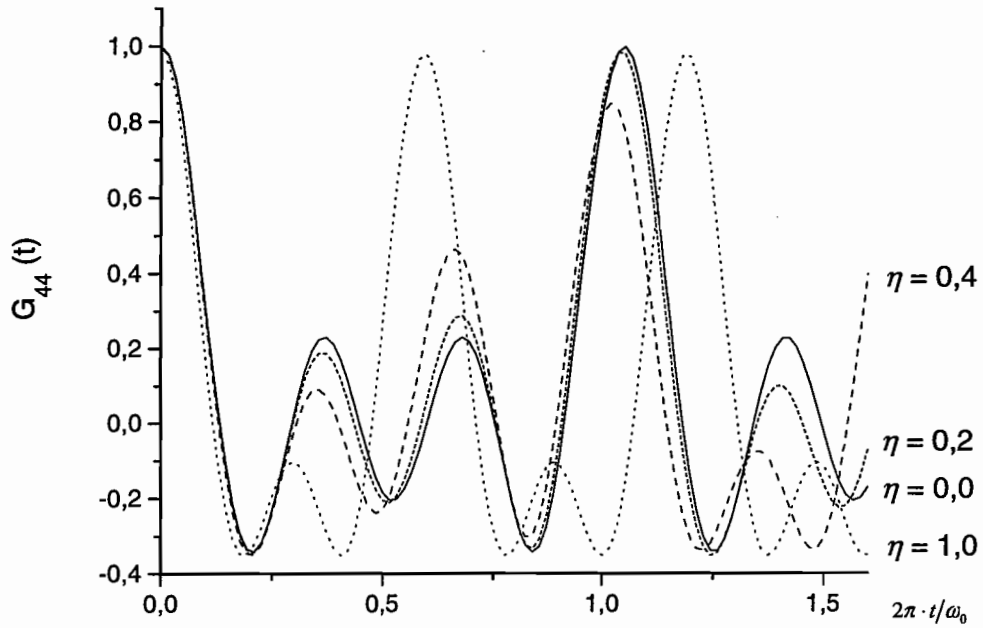


Figura 2.5: Coeficientes de atenuação $G_{44}(t)$ para alguns valores do parâmetro de assimetria em função do período de oscilação para spin I=5/2.

Capítulo 3

Método Experimental

3.1 – Espectrômetro

Para a obtenção dos dados de correlação angular, seja ela perturbada ou não, devemos dispor de dois detetores separados de um certo ângulo e colocados em coincidência por um sistema eletrônico. Um desses detetores irá observar a chegada da primeira radiação R_1 (fig 2.1) enquanto o outro determinará a chegada de R_2. A diferença de tempo entre a deteção de R_1 e R_2 é registrada em um computador que, após coletar vários desses dados, os coloca em histogramas chamados de espectros. Esses espectros fornecem a curva de decaimento do nível intermediário I que, sem a perturbação, seria uma exponencial pura. Mas, devido à interação hiperfina, a curva é modificada com uma perturbação periódica que, ao ser analisada, fornece os parâmetros relativos a essa interação.

O aumento do número de detetores é extremamente conveniente para aumento da estatística de contagens através do aumento do número de espectros e conseqüentemente leva a uma melhor precisão na determinação dos parâmetros relevantes. Considerando esse fato, as medidas de correlação angular perturbada são realizadas por um espectrômetro que consiste normalmente em um conjunto de quatro detetores de radiação gama dispostos no mesmo plano e separados por ângulos fixos de 90°. Se cada um detetar ambas as radiações R_1 e R_2, teremos 8 espectros de detetores a 90° e 4 a 180°. Existem sistemas com mais de quatro detetores colocados em geometria espacial, tipicamente separados por ângulos de 180° ou 90°.

Devido à necessidade de uma determinação precisa de tempo, os detetores utilizados são cintiladores pois estes possuem grande resolução temporal além de uma grande eficiência. No princípio eram usados cintiladores de NaI(Tl) e atualmente de BaF_2.

3.2 – Sondas de Prova

Devido à baixa resolução em energia que possuem os cintiladores, as radiações R_1 e R_2 da cascata estudada devem ser bem separadas em energia, afim de serem diferenciadas em um espectro de coincidências. Lembrando que a meia vida do nível intermediário da cascata deve ser da ordem de ns e que a meia vida do núcleo precisa ser suficientemente grande para que possa ser incorporada na amostra permitindo medições longas de forma a obter boa estatística de contagem, ficamos extremamente limitados quanto às sondas de prova a serem utilizadas. As mais utilizadas são as de ^{181}Ta obtido do decaimento beta de ^{181}Hf e o ^{111}In do decaimento de ^{111}Cd, pois além de obedecer a todas essas imposições, são de fácil produção. Coincidentemente o valor do spin do estado intermediário de cada uma dessas amostras é dado por $I^{\pi} = 5/2^{+}$, o que facilita também a análise.

O nuclídeo de ^{181}Ta é facilmente produzido através da captura de nêutrons térmicos pelo ^{181}Hf e possui meia vida de 42,4 dias [Br86]. O nível intermediário da cascata considerada para a medida tem meia vida de 10,8 ns, momento de quadrupolo elétrico dado por $Q(5/2^{+}) = +2{,}36(5)$ b e momento de dipolo magnético dado por $\mu(5/2^{+}) = +3{,}24(5)\ \mu_N$ [Le78]. Os valores de A_{22} e A_{44} dados pela equação (2.7) são –0,288 e –0,076 [Ri79], respectivamente, e os valores de energia para as radiações R_1 e R_2 são dadas aproximadamente por 133 keV e 482 keV respectivamente.

O ^{111}In, que decai para o ^{111}Cd (meia vida 40,22 horas) [Br86] por captura eletrônica, pode ser produzido por reações ^{110}Cd(d,n)^{111}In ou ^{109}Ag(α,2n)^{111}In. A meia vida do nível intermediário desse núcleo é 85 ns. O momento de quadrupolo elétrico é $Q(5/2^{+}) = +0{,}83(13)$ b e o momento de dipolo magnético é dado por $\mu(5/2^{+}) = -0{,}7656(25)\ \mu_N$ [Le78]. Os valores de A_{22} e A_{44} são –0,18 e –0,0015 [Ri79], respectivamente, enquanto as energias de R_1 e R_2 são aproximadamente dadas por 171 keV e 245 keV respectivamente.

Como os valores de momento de quadrupolo elétrico e dipolo magnético são não nulos, tanto os nuclídeos de ^{181}Ta quanto de ^{111}In podem ser usados em medidas de

interação magnética e elétrica. A figura 3.1 mostra a parte do esquema de decaimento que interessa neste trabalho.

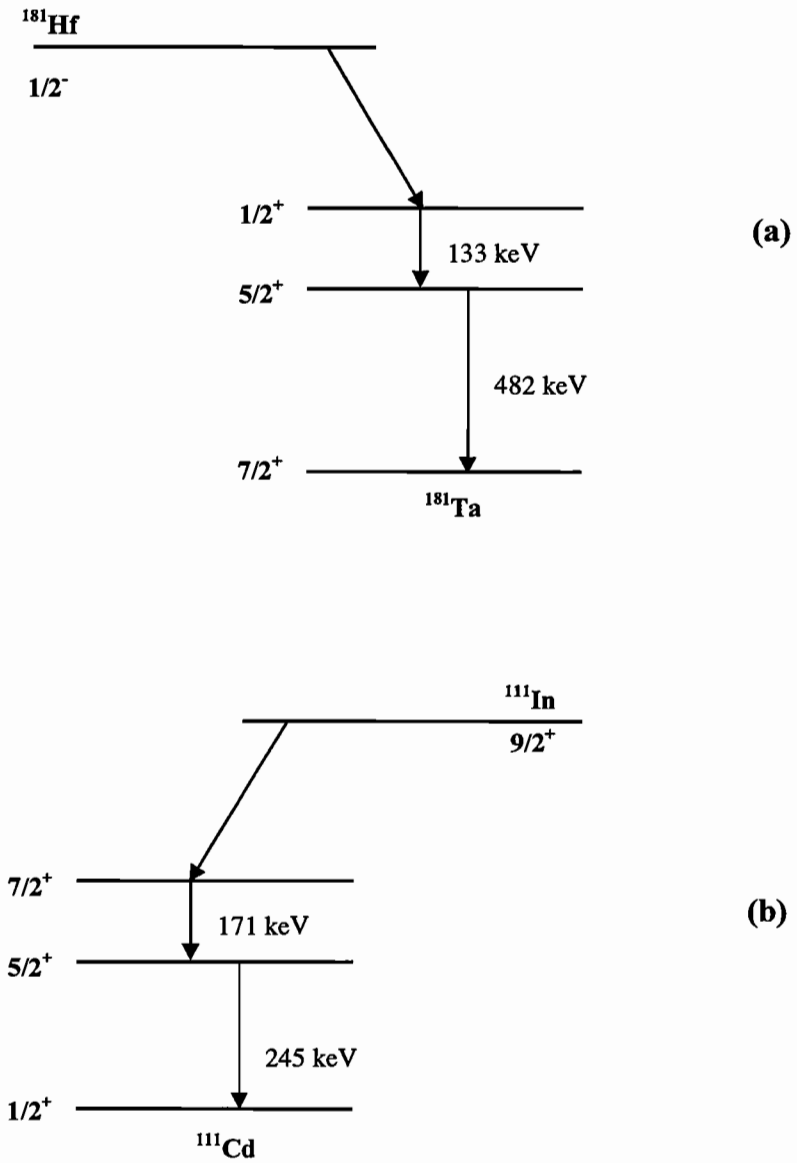


Figura 3.1: Esquema de decaimento dos nuclídeos ^{111}In (a) e ^{181}Hf (b). A figura não mostra o esquema de decaimento completo, mas a parte que interessa quando esses nuclídeos são utilizados em medidas de correlação angular perturbada.

3.3 – Eletrônica Associada

Quando um gama interage com o cristal do detetor ocorre uma cintilação que as fotomultiplicadoras convertem em um sinal elétrico com características próprias do gama detetado. Se esse sinal indica o recebimento por parte de um detetor da radiação R_1, será considerado evento válido para a medida de correlação angular se o segundo detetor produzir um sinal relativo ao da radiação R_2 dentro de um intervalo de tempo em relação ao primeiro, ou seja, em coincidência. Depois de selecionados esses sinais são digitalizados por um conversor analógico-digital, transformados em um formato conveniente e adquiridos já em forma binária num computador onde um programa os guarda e forma histogramas com esses dados, ditos espectros.

Os cintiladores são ligados a fotomultiplicadoras que convertem a luz emitida em pulsos de corrente, obtidos dos anodos e dinodos. O sinal vindo do anodo, denominado "rápido", está correlacionado com o instante de deteção do fóton, enquanto o sinal vindo de um dos dinodos é denominado "lento" e traz a informação sobre a energia do gama detetado. As saídas da fotomultiplicadora podem passar por pré-amplificadores, se for de conveniência, para evitar perdas ou deformações.

O sinal "rápido", que faz parte do circuito de coincidência temporal, é primeiro amplificado por amplificador rápido para aumentar sua amplitude. Normalmente, esse amplificador integra e/ou diferencia esse sinal com o objetivo de diminuir um possível ruído indesejável. Em seguida, o sinal é injetado em um discriminador, que produz sinais lógicos que indicam a chegada do pulso da fotomultiplicadora. Toda vez que o sinal ultrapassar um determinado limiar selecionado pelo operador, o discriminador gera esse sinal lógico que indica a presença de radiação no cintilador. Esse sinal poderá ser atrasado por opção se quiser toma-lo em coincidência com o sinal "lento".

O sinal "lento", que faz parte do sistema de análise de energia, pode ser pré-amplificado e posteriormente amplificado. Depois ele é injetado em analisadores monocanal com marca de tempo, que tem como função selecionar pulsos de amplitudes dentro de uma faixa escolhida pelo operador. O gama a ser considerado na coincidência é escolhido pela amplitude dos pulsos, que é proporcional à energia depositada no detetor. Para que o detetor registre tanto a radiação R_1 quanto R_2, o sinal "lento" entra em dois

analisadores multicanais, sendo que cada um opera numa faixa diferente de amplitude. Esses analisadores têm como saída os pulsos lógicos que indicam que o gama detetado é da energia escolhida.

Num conversor de diferença de tempo em altura de pulso (TPHC ou mais comumente TDC), o sinal rápido de um detetor poderá ser colocado em coincidência com o de outro. Esses sinais rápidos devem ser colocados em uma porta lógica AND com o sinal "lento" que indicará que a saída do TDC mede a diferença de tempo entre os gamas R_1 e R_2. A saída desse TDC fornece um sinal com altura proporcional à diferença de tempo entre os gamas, que por sua vez é enviado a um conversor analógico digital. A figura 3.2 mostra um diagrama de toda a eletrônica, desde a saída dos sinais dos detetores até a chegada ao módulo que registrará a coincidência dos gamas R_1 e R_2. Para espectrômetros com mais detetores, basta supor a mesma eletrônica associada a cada detetor conectada ao módulo de coincidência.

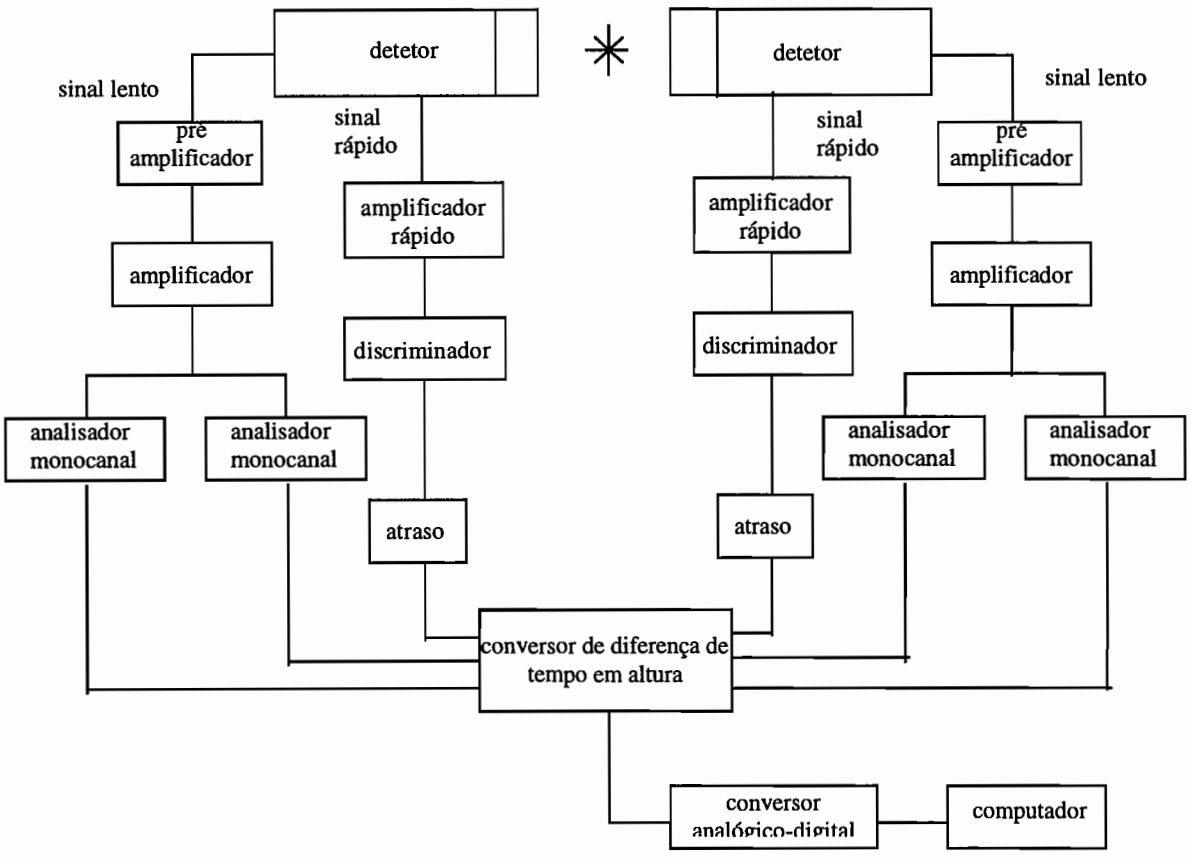


Figura 3.2: Diagrama de módulos eletrônicos associados a um par de detetores do espectrômetro para medidas de correlação angular perturbada.

3.4 – Espectros Obtidos

A diferença de tempo entre as radiações R_1 e R_2 deve fornecer a curva de decaimento do nível intermediário, que, sem os termos de perturbação, tem como forma principal uma exponencial com meia vida desse nível I. Desse modo o espectro de tempo é dado simplificadamente por:

$$P(t) = \lambda e^{-\lambda t} \tag{3.1}$$

onde λ é o inverso da vida média do nível I, chamada de constante de decaimento. Na prática, a medida começa a partir de um tempo inicial t_0 que é um parâmetro a ser determinado, de modo que rescreve-se a equação (3.1) trocando-se t por t-t_0. Na medida em um certo ângulo fixo θ, o espectro de tempo dependerá do valor da função de correlação angular para esse ângulo. Neste caso, este espectro estará relacionado às coincidências entre R_1 e R_2 no dado ângulo θ. Além dessas coincidências, que são ditas "verdadeiras", temos também as coincidências "acidentais" que correspondem à deteção das radiações R_1 e R_2 porém vindas de núcleos diferentes. Como essas coincidências acidentais não dependem do tempo para baixas taxas de contagens [Kn89], elas devem estar espalhadas de maneira aproximadamente uniforme por todo o espectro, gerando assim um fundo que, numa primeira aproximação pode ser considerado constante. Alguns autores [Ra67] tendem a modificar a forma desse fundo por uma função dependente do tempo. Nesse trabalho iremos considerar o fundo como constante em todo o espectro.

Com a perturbação, a função de correlação angular torna-se dependente do tempo como na equação (2.10), o que deve imprimir na função de decaimento descrita pela equação (3.1) o termo $G_{kk}(t)$. Dessa forma, a forma geral do espectro é dada por [Ar80]:

$$E(\theta,t) = \begin{cases} B & (t < t_0) \\ A.e^{-\lambda(t-t_0)}[1 + W(t-t_0,\theta)] + B & (t \geq t_0) \end{cases} \tag{3.2}$$

onde A está relacionada ao número total de contagens e B o valor do fundo constante. Esses dois parâmetros dependem diretamente das eficiências de deteção de R_1 e R_2 por parte do sistema. A eficiência, por sua vez, pode depender de vários fatores, tais como eficiência intrínseca dos detetores, distância fonte-detetor, intensidade da fonte radioativa utilizada, dentre outros. Como $G_{kk}(t)$ é periódico tanto para interações magnéticas quanto elétricas, o espectro terá como forma dominante uma exponencial com algumas oscilações. Um exemplo desse espectro pode ser visto na figura 3.3 para valores típicos de A, B, t_0, e $G_{kk}(t)$.

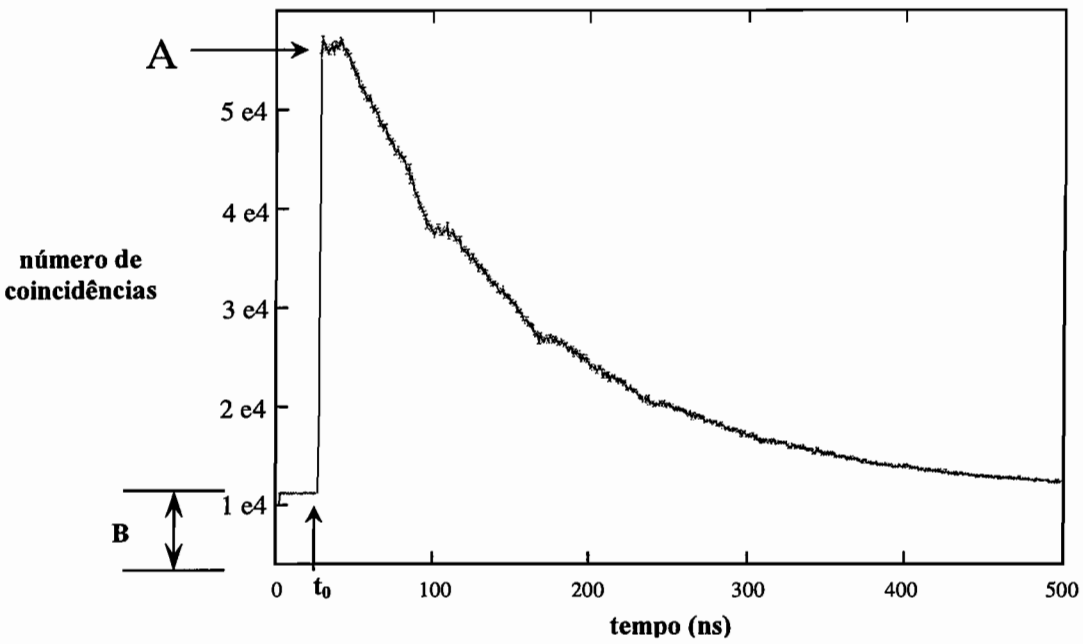


Figura 3.3: Espectro de correlação angular perturbada típico onde se pode notar o instante de tempo inicial t_0, o valor da constante de fundo B e a amplitude A do decaimento e também que a forma geral da curva é a de uma exponencial com oscilações

A incerteza do número de contagens em cada canal é dada aproximadamente pela raiz quadrada do número de coincidências nesse canal. Esse fato nos mostra que com o aumento da estatística, isto é, aumento do tempo de aquisição do espectro, diminui a incerteza relativa das contagens de cada canal. Da mesma forma isso se reflete num A e B maiores na equação (3.2).

Ao selecionar as energias através do analisador monocanal muitas vezes selecionamos também outros gamas fora da cascata relativa ao nível I. Isso se dá devido à má resolução em energia dos cintiladores. O efeito disso no espectro é aumentar o fundo constante, além de colocar um pico estreito, chamado de "prompt", no instante de tempo inicial para gamas em cascata por níveis intermediários com meia vida menores que 1 ns. Por exemplo: como já foi visto, em fontes de ^{181}Hf a cascata selecionada para as medidas de correlação angular perturbada é a de 133/482 keV. Porém, essa mesma fonte radioativa gera uma cascata 136/343 keV de meia vida de estado intermediário de 39 ps. Dada a proximidade em energia dos gamas das duas cascatas, os cintiladores não conseguem separá-las, deixando assim o sistema detetor registrando as coincidências de ambas as cascatas. Pode haver prompt por outros mecanismos tal como coincidência entre gamas da cascata selecionada e gamas vindos de espalhamento Compton com o detetor. A forma desse prompt depende do tipo de detetor e sua resolução temporal e será discutido posteriormente. Tal resolução temporal relevante modifica sensivelmente a forma do espectro não somente próximo ao instante inicial t_0, como ao longo de todo o espectro.

3.5 – Função Decaimento

A função de correlação dada em (2.10), obtida através das relações quânticas de momento angular, pode ser modificada devido a fatores experimentais. Basicamente isso ocorre devido ao fato do espectro refletir a interação hiperfina não somente em um mas em todos os átomos radiativos da amostra. Portanto, devemos considerar que a função de correlação observada representa uma função de correlação média. De uma maneira geral, esses fatores experimentais mantêm a forma básica dada por funções periódicas.

O valor da distribuição da interação de quadrupolo elétrico com o gradiente de campo elétrico pressupõe uma posição fixa da sonda de prova no retículo cristalino. Acontece que essa posição é ligeiramente diferente para cada núcleo na rede cristalina, resultando em freqüências de transição hiperfinas cuja distribuição podemos considerar gaussiana em primeira aproximação. Isso deve gerar o mesmo tipo de distribuição em V_{zz} e no parâmetro de assimetria, implicando num alargamento nas amplitudes de cada freqüência, que também deve ocorrer em princípio quando a interação for magnética. Isso

modifica a equação (2.29) que fica da forma

$$G_{kk}(t) = S_{k0} + \sum_i S_{ki}.\exp\left(\frac{-\delta_i \omega_i t}{2}\right)^2.\cos(\omega_i t) \tag{3.3}$$

onde δ_i é a largura da gaussiana do alargamento de cada freqüência. Usualmente é considerado um único delta para todas as freqüências, mas, a priori devemos ter um delta distinto a cada freqüência [Fo73], [Zm73].

No caso de interação de dipolo magnético, muitas vezes a função de correlação é modificada por um fator exponencial que atenua as oscilações. Essa atenuação se dá devido à presença de pequena interação quadrupolar. Assim sob interação magnética, ao omitir a parte relativa aos vários δ_i, temos:

$$G_{kk}(t) = \left[S_{k0} + \sum_i S_{ki}.\cos(\omega_i t)\right]\exp(-\gamma t) \tag{3.4}$$

Os espectros coletados referem-se à correlação angular para um ângulo definido, dado normalmente por 90° ou 180°. Porém, como os detetores são grandes em relação à distância à fonte, eles podem captar gamas em coincidência em ângulos diferentes do ângulo fixado entre os eixos dos detetores. Para levar em conta esse fenômeno, deveremos incluir a chamada correção de ângulo sólido, que consiste em multiplicar as amplitudes A_{kk} por um fator de correção, denotado por Q_{kk}. Em nosso caso, vamos chamar esse produto de a_{kk}, ou seja:

$$a_{kk} = A_{kk} Q_{kk} \tag{3.5}$$

Dessa forma, tomando a resolução temporal do sistema detetor como irrelevante podemos dizer que a função que melhor descreve o espectro é dada por:

$$E(\theta, \ ) = \begin{cases} 0 & (< {}_0) \\ A.e^{-\lambda(t-t_0)}[1+\sum_k {}_{kk}G_{kk}(- {}_0)P_k(\cos\theta)] & (\geq {}_0) \end{cases} + B \qquad (3.6)$$

onde $G_{kk}(t)$ é dada no (3.3) para caso de interação elétrica e (3.4) no caso de interação magnética. A essa função daremos o nome de função decaimento. Note que ela é descontínua em relação a t e t_0 e, assim deve-se tomar cuidado em relação à sua derivada quando utilizada no ajuste de espectros.

Quando essa resolução temporal for relevante, para a completa descrição do espectro devemos realizar uma convolução da função decaimento com a função dessa resolução, assim o espectro resultante será dado por:

$$E'(\theta,t) = \int_{-\infty}^{+\infty} E(\theta,t')R(t-t')dt' \qquad (3.7)$$

sendo a função $R(t - t')$ a resolução temporal a ser considerada, que deve ser normalizada e deve representar uma função densidade de probabilidade. A convolução, além de modelar ajustes com sistemas de baixa resolução temporal, permite também ajuste de "prompts" no início do espectro, vistos na seção anterior, que surgem devido à má resolução em energia.

3.6 – Convolução temporal com uma gaussiana

A forma da resposta temporal a ser convoluida normalmente tem a forma de um pico que, sob certas condições, pode ser aproximado por uma gaussiana simples de largura σ, ou seja:

$$R(t-t') = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{(t-t')^2}{2\sigma^2}\right] \qquad (3.8)$$

Para o caso de interação elétrica, ao tomar a função decaimento (3.6), onde G_{kk} é dado por (3.3) expandido até G_{22} em lugar de $E(\theta,t')$ e efetuando a integral (3.7) obtem-se o espectro convoluido dado por:

$$E(\theta,t)=\frac{A.a_{22}.P_2(\cos\theta)}{2}.\sum_n \frac{S'_{2n}}{\sqrt{\beta_n}}.\exp\left\{\frac{-\lambda(t-t_0)-0{,}5.\delta^2.\omega_n'^2.(t-t_0)^2+0{,}5.\sigma^2.(\lambda^2-\omega_n'^2)}{\beta_n}\right\}.$$
$$\left\{(1-a).\cos\left(\frac{\omega'_n.t_d}{\beta_n}\right)+b.\mathrm{sen}\left(\frac{\omega'_n.t_d}{\beta_n}\right)\right\}+B+\frac{C}{\sigma.\sqrt{2}}\exp\left[-\frac{(t-t_0)^2}{2\sigma^2}\right] \tag{3.9}$$

onde β_n é um fator sem dimensão dado por

$$\beta_n=1+\sigma^2\delta^2\omega_n'^2 \tag{3.10}$$

e t_d, ao qual chamamos de tempo deslocado e dado por:

$$t_d=t-t_0-\sigma^2\lambda \tag{3.11}$$

o que mostra claramente que a convolução desloca o espectro no tempo. Os vetores

$$S'_{2n}=\left(\frac{1}{a_{22}P_2(\cos\theta)}+S_{20},\quad S_{21},\quad S_{22},\quad \ldots\right) \text{ e } \omega'_n=(0,\quad \omega_1,\quad \omega_2,\quad \ldots) \tag{3.12}$$

foram criados como variações de S_{2n} e ω_n da equação (2.29) para facilitar a escrita da expressão, e a e b como sendo a parte real e imaginária da função erro complexa:

$$a+\mathrm{i}.b=erf\left(-\frac{t_d}{\sigma\sqrt{2\beta_n}}-\mathrm{i}\frac{\omega'_n.\sigma}{\sqrt{2\beta_n}}\right) \tag{3.13}$$

Para resoluções temporais pequenas podemos tomar $\beta_n=1$ e $t_d=t-t_0$, o que simplifica a expressão (3.9) para

$$E(\theta,t)=A\exp\left[-\lambda(t-t_0)+\frac{\sigma^2\lambda^2}{2}\right].(1-a).[1+a_{22}P_2(\cos\theta).G_{22}(t)]+B+\frac{C}{\sigma.\sqrt{2}}\exp\left[-\frac{(t-t_0)^2}{2\sigma^2}\right]$$

(3.14)

onde $G_{22}(t)$ agora é dado por:

$$G_{22}(t-t_0)=S_{k0}+\sum_{n=1}S_{kn}\exp\left(-\frac{\omega_n^2\sigma^2}{2}\right)\exp\left(-\frac{\omega_n^2\delta^2(t-t_0)^2}{2}\right)\cos[\omega_n(t-t_0)] \quad (3.15)$$

Já para o caso de interação magnética, o resultado da integral (3.7), ao tomar a função decaimento (3.6) onde G_{kk} é dado por (3.4) expandido até G_{22}, em lugar de $E(\theta,t')$ é dado pelo espectro convoluido:

$$E(\theta,t)=\frac{A.a_{22}.P_2(\cos\theta)}{2}.\sum_n S'_{2n}.\exp\{-(\lambda+\gamma)(t-t_0)+0{,}5.\sigma^2.[(\lambda+\gamma)^2-\omega_n'^2]\}$$
$$\{(1-a).\cos(\omega'_n.t_d)+b.\mathrm{sen}(\omega'_n.t_d)\}+B+\frac{C}{\sigma.\sqrt{2}}\exp\left[-\frac{(t-t_0)^2}{2\sigma^2}\right] \quad (3.16)$$

onde t_d, ou seja o tempo deslocado, agora é dado por

$$t_d=t-t_0-\sigma^2(\lambda+\gamma) \quad (3.17)$$

e os vetores S'_{2n} e ω'_n continuam os mesmo dados por (3.12) e a e b como sendo a parte real e imaginária da função complexa dada em (3.13).

No caso de resoluções temporais pequenas podemos tomar $t_d=t-t_0$, o que torna a expressão (3.16) simplificada na expressão (3.14), onde $G_{22}(t)$ agora é dado por:

$$G_{kk}(t)=\left\{S_{k0}+\sum_i S_{ki}.\cos(\omega_i t)\cdot\exp\left[\frac{\sigma^2}{2}\left[(\lambda+\gamma)^2-\omega_i^2\right]\right]\right\}\exp[-\gamma(t-t_0)] \quad (3.18)$$

Numa comparação das funções dadas em (3.9) e (3.16) nota-se que, além do "prompt" gaussiano incluso, elas também são contínuas, ao passo que a função dada em (3.6) é descontinua em t e t_0.

3.7 – Convolução Temporal Numérica

Se sabemos como é a função analítica que descreve a resposta temporal do sistema de detetores, para determinar a forma do espectro resultante realizamos a integral descrita por (3.7). Mas nem sempre isso é possível pois a resposta muitas vezes é complicada e diferente em cada detetor do espectrômetro. Uma solução seria adquirir um espectro da resposta temporal pelo mesmo espectrômetro em que adquirimos os espectros de correlação angular. Para isso basta tomar a coincidência de uma cascata gama de energias semelhantes à da cascata de interesse com meia vida de nível intermediário menor ou da ordem de ps, ou seja algumas ordens de grandeza menor que a do nível intermediário utilizado em medidas de PAC. Dessa forma, o "prompt" será a melhor representação da resposta temporal do sistema detetor.

De posse dessa resolução temporal, podemos tentar ajustá-la por uma função analítica para então realizar a integral descrita em (3.7). Uma outra maneira é que após adquirir o espectro da resposta temporal realizemos uma convolução com a função decaimento de maneira numérica. Com essa resposta temporal numérica, a integral (3.7) torna-se uma somatória da resposta temporal com o espectro $f(t)$ canal a canal como o proposto em [Ge69], ou seja:

$$F(t) = \sum R(t-t').f(t') \tag{3.19}$$

tomando o cuidado ao calcular a parcela da somatória que inclui t_0 devido à descontinuidade da função decaimento nesse valor.

Devemos lembrar que a função $R(t-t')$ é uma função de probabilidade e, como tal, deve ser normalizada, ou seja a soma de todos os seus canais deve ser igual a 1. Como o sistema detetor nos fornece um espectro que não obedece a essa propriedade, devemos transformá-lo para obter a resposta temporal. Primeiramente devemos estabelecer uma

região onde a resposta temporal é válida, pois o "prompt" possui vários valores nulos no início e no final do espectro. Logo após subtraímos o fundo e em seguida dividimos cada canal pela área total, para garantir sua nova área igual a 1, e então deslocamos o valor do pico desse "prompt" até a origem.

Capítulo 4

Análise de Dados

4.1 – Introdução

A análise de dados utilizada na grande maioria dos trabalhos publicados consiste em isolar a parte oscilatória, realizando transformações e composições com os espectros originais. Através do ajuste desse conjunto de dados transformado, dito espectro razão, se obtém os parâmetros de correlação angular perturbada. Para auxiliar nesse ajuste usa-se o espectro de freqüência do espectro razão, obtido através de sua transformada Fourier. Esse tipo de análise convencional é parte integrante de nossa análise e será apresentada adiante.

Em nossa análise de dados proposta ajustamos os espectros originais sem realizar nenhuma composição ou transformação. Para a determinação dos parâmetros ajustamos todos os espectros ao mesmo tempo realizando assim um ajuste simultâneo. Devemos incluir covariâncias entre os dados experimentais quando estes existirem ou forem relevantes e também os valores dos parâmetros ajustados com sua respectiva matriz de covariância. O método de ajuste utilizado será o dos mínimos quadrados com notação matricial, cuja teoria está resumida no apêndice A desse trabalho, pois esse é o melhor tratamento a ser feito a fim de se preservar a informação contida nos dados que, no caso, seriam os espectros experimentais.

Para a realização desses ajustes foi criado um programa de computação orientado a objetos pela necessidade de desenvolvimento de uma biblioteca, a qual possa ser utilizada nesse caso como em outros do mesmo tipo. Tal biblioteca foi implementada em C++, que é

a linguagem orientada a objetos mais utilizada atualmente em projetos de grande porte, existindo muitos compiladores de boa qualidade e baratos. A capacidade de alocação dinâmica de memória dessa linguagem viabiliza a utilização de um mesmo programa tanto para muitos dados quanto para poucos. Uma visão geral do programa utilizado na análise de dados desse trabalho está contida no apêndice B.

4.2 – Método Convencional

4.2.1 – Espectro Razão

Na obtenção do espectro razão utilizamos os espectros originais obtidos como descritos na seção 3.4 pela medida feita com o espectrômetro. Devemos transformar e compor todos os espectros disponíveis a fim de utilizar toda a estatística de contagem. O objetivo é a extração da parte oscilatória dos espectros, deixando-a separadamente em um espectro representado normalmente por R(t).

Para a construção desse espectro R(t), devemos primeiramente sincronizar os espectros individuais, ou seja fazer com que tenham o mesmo tempo inicial t_0. Como é irrelevante para a função decaimento o que ocorreu antes de instante inicial, é melhor que todos os espectros sejam sincronizados para $t_0 = 0$. Os métodos para sincronizar variam de acordo com a precisão desejada e vão desde um simples deslocamento até a relocação.

Em seguida devemos subtrair de cada espectro o valor de seu fundo considerado constante. A maneira de determinação do fundo deverá ser tanto mais exato quanto mais preciso se queira determinar o espectro R(t). De posse dos valores do fundo de cada espectro, vamos subtrai-lo canal a canal no dado espectro.

Com espetros individuais transformados, isto é, sincronizados e subtraídos do fundo, podemos determinar o espectro R(t) pela composição:

$$R(t) = \frac{2[E(180^o,t) - E(90^o,t)]}{E(180^o,t) + 2.E(90^o,t)} \tag{4.1}$$

onde os termos $E(180^o,t)$ e $E(90^o,t)$ são espectros de pares de detetores a 180° e 90° respectivamente. Tomando como modelo a função descrita na relação (3.6) e desprezando

os termos maiores ou iguais a a_{44}, temos que o espectro R(t) deve corresponder a $a_{22}G_{22}(t)$, ou seja ao fator de perturbação da função de correlação angular.

Essa análise só pode ser realizada quando supomos que os espectros de mesmo ângulo sejam idênticos sob o ponto de vista das eficiências. Para essa hipótese devemos ter, portanto, eficiências idênticas para cada par de detetores ou espectros corrigidos para compensar as diferenças de eficiência.

Para um melhor aproveitamento de toda a estatística de contagem, os espectros $E(\theta,t)$ usados em (4.1) devem ser médias ou somas dos espectros de mesmo ângulo. É extremamente conveniente utilizar a média geométrica de cada tipo de espectro, ou seja:

$$\overline{E}(\theta,t) = \sqrt[n]{E_1(\theta,t).E_2(\theta,t)\cdots E_n(\theta,t)} \tag{4.2}$$

onde n é o número de espectros de cada tipo, pois a utilização da média geométrica compensa a correção de eficiências.

A incerteza no número de contagens em cada canal do espectro R(t) é determinada pela propagação das incertezas de cada espectro individual $E(\theta,t)$ onde são desconsiderados os termos de covariância entre canais. Como cada valor do espectro razão provém de todos os dados de cada espectro individual, existe uma correlação não nula entre os vários valores de R(t). Essas correlações não são consideradas por serem difíceis de serem calculadas, deixando assim a análise deficiente.

A região válida para análise compreende o início de $R(t)$ ao canal correspondente a até 10 meias vidas do estado intermediário. A figura 4.1 mostra um exemplo desse espectro razão, obtida de uma amostra onde ocorre a interação quadrupolar elétrica de ^{111}Cd em cádmio. Esse espectro R(t) foi ajustado por funções dadas pela expressão (3.3), com parâmetro de assimetria nulo, ou seja as freqüências ajustadas devem ser como as dadas em (2.27). Note que a função ajustada não "casa" perfeitamente aos dados. No início dos pontos a barra de erro não cobre a diferença, mas ao final todos os valores estão cobertos por essa incerteza. Vale lembrar que esse ajuste passaria pelo teste do qui-quadrado.

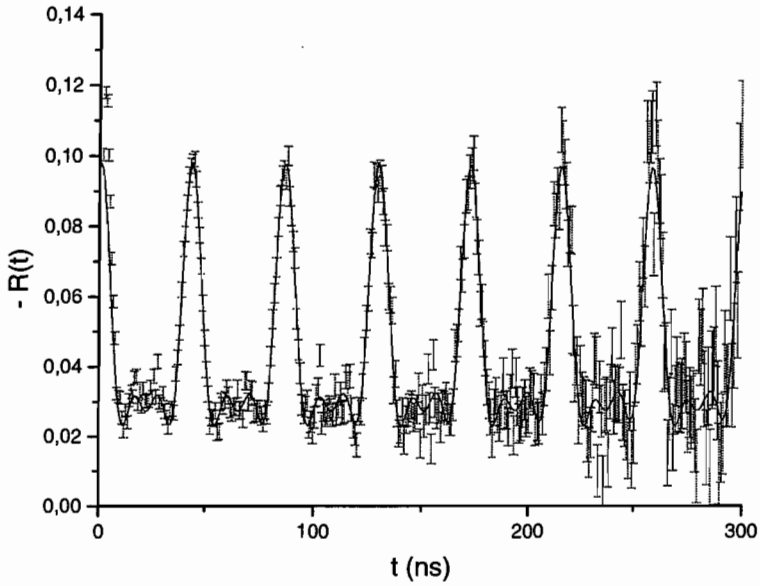


Figura 4.1: Espectro R(t) para uma amostra de cádmio com sonda de prova de ^{111}Cd (I=5/2) em gradiente de campo elétrico. Como $\eta = 0$, existe uma proporcionalidade das freqüências. Note que a relação entre a função ajustada e os pontos é boa somente no centro do espectro.

4.2.2 – Espectro de Fourier

Para auxiliar na obtenção das estimativas para o ajuste do espectro R(t), podemos construir o espectro de freqüências através de sua transformada de fourier. Foi utilizada a rotina de "Fast Fourier Transform", ou simplesmente FFT contida em [Pr92] que realiza a transformada de Fourier para valores discretos. Para N valores discretos a função FFT devolve 2N valores sendo que o primeiro valor se refere à parte real da transformada e o segundo à sua parte imaginária e assim por diante. Em nossa análise tomamos o módulo da transformada, portanto o espectro final terá novamente N dados. É muito importante que N seja uma potência inteira de 2. Se Δ é a largura do canal em tempo do espectro razão, $1/(N.\Delta)$ é a largura do espectro de Fourier.

Suponha que são dados os valores de R(t) num vetor $\vec{r}$ de N dados com sua respectiva matriz de covariância $\mathbf{V}_r$ de dimensão N x N. A transformada calcula um vetor

$\vec{f}$ que corresponde ao espectro de freqüências de r. Cada ponto f_i desse vetor corresponde à função do vetor $\vec{r}$, ou seja $f_i(r_1,\ldots,r_N)$, mostrando que existe uma fortíssima correlação entre os vários f_i. A matriz de covariância de $\vec{f}$ é dada por:

$$\mathbf{V}_f = \mathbf{X}\cdot\mathbf{V}_r\cdot\mathbf{X}^t \tag{4.2}$$

onde **X** é a matriz de transformação dada por:

$$X_{ij} = \frac{\partial f_i}{\partial r_j} \cong \frac{f_i(r_0,\ldots,r_j+\sigma_j,\ldots,r_n)-f_i(r_0,\ldots,r_j,\ldots,r_n)}{\sigma_j} \tag{4.3}$$

onde σ_j é a incerteza de r_j. A figura 4.2 mostra o espectro de freqüências do espectro razão dado na figura 4.1, tendo os valores sua respectiva incerteza calculada pela diagonal de $\mathbf{V}_f$.

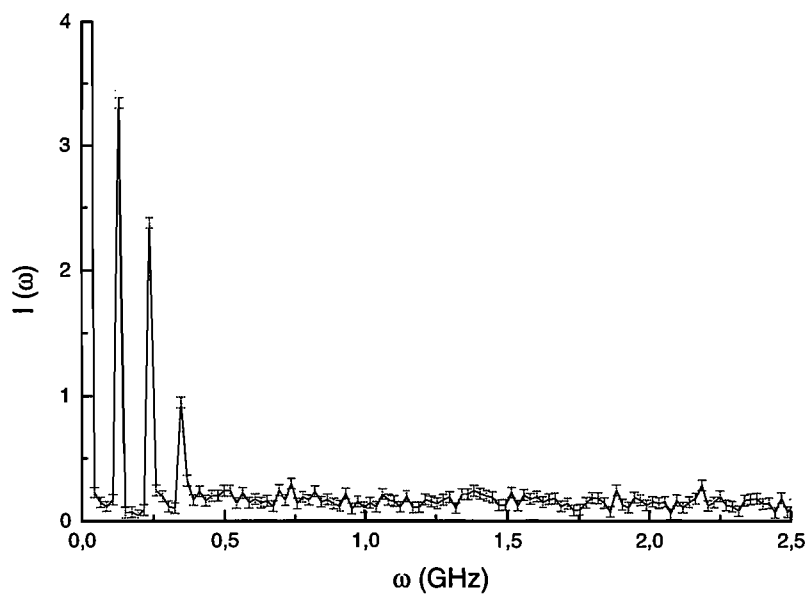


Figura 4.2 - Espectro de freqüência do espectro razão da figura 4.1, isto é de uma amostra de interação de quadrupolo de cádmio em ^{111}Cd. Os picos indicam os valores das freqüências do espectro razão

e nesse caso são proporcionais, o que indica uma assimetria nula.

4.3 – Análise Proposta

4.3.1 – Ajuste Simultâneo

A análise de dados proposta neste trabalho consiste no ajuste dos espectros sem nenhuma composição, ou seja, como no exemplo visto na figura 3.3. Dessa forma os parâmetros relevantes à análise de correlação angular perturbada serão obtidos em cada espectro individual. Para uma obtenção mais precisa desses parâmetros devemos utilizar toda a estatística conseguida, ou seja, devemos ajustar os vários espectros obtidos na medida. Porém, como o ajuste é de cada espectro individual, não importa a quantidade desses espectros em cada medida, podendo até mesmo ser de um único espectro. O melhor é o ajuste simultâneo, ou seja, ajustar todos os espectros ao mesmo tempo, pois além da redução de erros sistemáticos, podemos fazer com que alguns dos parâmetros contidos nos vários espectros, que deveriam ser comuns, possam convergir para o mesmo valor.

O ajuste não pode ser feito do espectro todo, porque além do espectro possuir regiões não válidas como, por exemplo, sem contagens ou com eventos originários de efeito secundário de deteção, a região a ser ajustada deve obedecer ao modelo utilizado. Se quisermos, por exemplo, ajustar uma região do espectro utilizando um modelo que não considere a resposta temporal, não podemos utilizar dados que considerem a subida em torno de t_0. A região de ajuste deve compreender assim alguns canais à frente ou antes do tempo inicial até próximo de 5 a 6 meias vidas do estado intermediário. Vamos representar por *mi* o número de canais da região escolhida do dado espectro *i*.

Decidida a região de ajuste de cada espectro, precisamos reunir os dados para o ajuste simultâneo. Para isso, colocamos os dados válidos originários dos vários espectros em vetores únicos representados por $\vec{x}$ no caso de canal e $\vec{y}$ para suas respectivas contagens. O vetor $\vec{x}$ estará escrito da forma:

$$\vec{x} = (x_1, \cdots, x_{m1}, x_{m1+1} \cdots, x_{m1+m2}, \cdots, x_N) \tag{4.4}$$

onde os valores compreendidos entre x_1 e x_{m1} representam a região de ajuste do espectro 1, entre x_{m1+1} e x_{m1+m2} a região do espectro 2 e assim por diante, terminando no valor x_N onde

N é o numero de dados x e que é igual a soma dos vários *mi*. O vetor $\vec{y}$ é escrito seguindo o mesmo padrão:

$$\vec{y} = (y_1, \cdots, y_{m1}, y_{m1+1} \cdots, y_{m1+m2}, \cdots, y_N) \tag{4.5}$$

Assim teremos um indicador para saber de qual espectro pertence o dado i que deve possuir como canal o valor x_i e como contagem o valor y_i.

A matriz de covariância **V** dos dados é diagonal sendo que cada termo V_{ii} é dado pela incerteza no número de contagens em cada canal, que por se tratar de um espectro multicanal ou seja regido pela função de probabilidade Poisson pode ser aproximada por :

$$V_{ii} \cong y(i) \tag{4.6}$$

Nessa aproximação, é suposto que não existam incertezas em cada canal x_i. Note que, dessa forma, todos os dados dos diversos espectros estarão contidos nos vetores $\vec{x}$ e $\vec{y}$ e na matriz **V**. Assim, ao utilizá-los em ajustes estaremos fazendo um ajuste simultâneo de todos os espectros.

4.3.2 – Escolha de Modelos

De posse desses vetores $\vec{x}$ e $\vec{y}$ e determinada a matriz de covariâncias **V**, o próximo passo compreende a composição da matriz de planejamento **X** e do vetor de parâmetros **A**, para ter em mãos o modelo da função e os seus parâmetros a serem ajustados. Podemos ajustar os espectros de várias maneiras, variando não só a função modelo a ser ajustada como o conjunto de parâmetros **A**. Esses conjuntos de parâmetros representam os modelos diferentes e escolhidos os parâmetros a serem ajustados, devemos colocá-los numa certa ordem para a construção do vetor **A** e então construir a matriz **X** através da relação (A.5).

Para isso separamos os parâmetros das funções ajustadas em dois tipos distintos: os individuais, ou seja que são característicos de cada espectro e assim existem somente no

dado espectro; e os comuns, que são parâmetros idênticos em todos os espectros e portanto tem um valor único. Por exemplo, o valor do tempo inicial t_0 é diferente em cada espectro pois depende do ajuste da eletrônica de aquisição, o que implica em ajustar um conjunto de $t_0(i)$ onde i é o índice de cada espectro considerado. Cada espectro tem um conjunto de parâmetros individuais dados pela amplitude do espectro, um valor constante das contagens de fundo, o valor do tempo inicial, e da amplitude do prompt, respectivamente A, B, t_0 e C representados na equação (3.6).

Já todo espectro reflete a mesma interação hiperfina, seja ela elétrica ou magnética, e portanto tem o mesmo conjunto de parâmetros de interação. Dessa forma esse conjunto de parâmetros será considerado comum em todos os espectros pois pertencem a $G_{kk}(t)$, ou seja, estão ligados à amostra em si. Eles são dados por ω_Q, η e δ no caso elétrico e ω_L, γ no caso magnético. Note que, por exemplo, o valor de ω_Q deve ser o mesmo utilizado em cada espectro, pois todos os espectros oscilam com a mesma freqüência, o que na prática implica no ajuste de um único valor.

Existem ainda alguns parâmetros que podem ser considerados como sendo comuns mas que sob outro critério são parâmetros não comuns, como, por exemplo, a eficiência de deteção de cada espectro que deve ser única na suposição de detetores idênticos mas que pode ter valores distintos devido à diferença de energia medida em cada detetor individual. No nosso trabalho não ajustaremos a eficiência, mas podemos deduzi-la através dos outros parâmetros. No conjunto de parâmetros múltiplos ou não, ou seja, que podem ser considerados individuais ou comuns, colocamos os valores de a_{22}, de a_{44}, de σ e de λ.

No exemplo a seguir vamos supor o ajuste de N espectros de interação magnética. Para simplificar, esse espectro não possui prompt e sua resolução temporal é irrelevante. Além disso, vamos tomar um único a_{22} e supor a_{44} desprezível. Com esses dados, escrevemos nosso vetor de parâmetros:

$$\vec{A} = (A_1, B_1, (t_0)_1, \cdots, A_N, B_N, (t_0)_N, a_{22}, \lambda, \omega_L, \gamma) \tag{4.7}$$

da função dada em (3.6). Com esse vetor A e a forma da função é que construímos a matriz de planejamento **X** através da relação (A.5).

4.3.3 - Modelos Propostos

Vamos agora detalhar alguns dos modelos propostos nesse trabalho. Muitos desses modelos são muitas vezes difíceis, ou mesmo impossíveis, de serem realizados na análise convencional. Esse será o principal ganho do ajuste de espectros simultâneos em relação ao ajuste do espectro razão.

Como foi dito na seção 2.4.1, o valor de a_{22} é dado pelo produto do fator de correlação A_{22} pela correção de ângulo sólido Q_{22} (equação 3.5). Como o valor de A_{22} é tabelado, para que os valores de a_{22} sejam os mesmos em cada espectro individual é necessário que Q_{22} seja o mesmo em cada espectro individual, o que deve implicar em uma série de cuidados experimentais. Primeiramente devemos ter detetores iguais colocados à mesma distância a fim de garantir a mesma eficiência. Além disso a fonte deve estar centrada e alinhada aos detetores que devem estar separados de ângulos perfeitos de 90°. Um pequeno desvio das condições acima citadas causa uma grande diferença entre os valores de a_{22}. Ao colocarmos os valores de a_{22} como sendo formados por parâmetros não comuns, cada um desses valores absorve cada uma dessas diferenças.

Mesmo sabendo que os valores de a_{22} são diferentes entre si, ainda tem-se ganho ao se ajustar um único a_{22} para todos os espectros. Isso se dá devido a esse valor único convergir para o valor médio dos a_{22}. Ele pode ser a primeira estimativa para o vetor dos vários valores ou, ainda, ser tomado como o valor de a_{22} de cada espectro. O critério vai depender da precisão que se queira atingir.

$$\vec{A} = (A_1, B_1, (t_0)_1, C_1 \cdots, A_N, B_N, (t_0)_N, C_N, (a_{22})_1, \cdots, (a_{22})_N, \lambda, \omega_L, \gamma) \qquad (4.8)$$

Note que a matriz de planejamento **X** para esse vetor A terá *N-1* linhas a mais que a dada considerando o vetor A dado por (4.7) devido ao aumento desse número de valores a_{22}.

Para a construção do espectro razão e posterior ajuste realizados na análise convencional, pressupõe-se que $a_{44} << a_{22}$. Na maioria dos núcleos utilizados como sonda de prova é verdadeiro dizer que $A_{44} < A_{22}$, porem não é todo arranjo experimental de PAC

que podemos supor que $Q_{44} << Q_{22}$. Dessa forma, é apenas uma aproximação desconsiderar o valor a_{44} na determinação dos parâmetros de PAC. A nossa análise pode determinar um valor de a_{44} para cada espectro ou ainda o valor médio desses a_{44}'s. Geralmente, devido ao seu pequeno valor, é mais vantajoso determinar o valor médio de a_{44}, sendo que quando este for desprezível então ele será retirado do vetor de parâmetros. Uma coisa importante a se ressaltar é que a obtenção desse parâmetro não é possível através do espectro razão dado pela equação (4.1). Num ajuste de N espectros com um único a_{22} temos o vetor de parâmetros:

$$\vec{} = ({}_1, B_1, (t_0)_1, C_1 \cdots, {}_N, B_N, (t_0)_N, C_N, a_{22}, a_{44}, \lambda, \omega_L, \gamma) \tag{4.9}$$

Como pode ser visto em [Fo73], [Zm73], apesar de se supor valores distintos de deltas em cada freqüência, normalmente por simplificação a análise convencional supõe o valores de δ_n idênticos para qualquer n. Isso se dá devido à falta de precisão estatística ao se determinar o R(t). Na nossa análise, podemos ajustar um valor distinto de δ para cada freqüência. Dessa forma, para um ajuste de N espectros com interação elétrica em que supomos distintos deltas a cada freqüência, temos o vetor de parâmetros dado por:

$$\vec{A} = (A_1, B_1, (t_0)_1, C_1, \cdots, A_N, B_N, (t_0)_N, C_N, a_{22}, \lambda, \omega_Q, \eta, \delta_1, \cdots, \delta_M) \tag{4.10}$$

onde M é o número de freqüências da função $G_{kk}(t)$ relacionado diretamente ao spin do nível intermediário da cascata gama considerada na medida.

Quando o ajuste a ser realizado é o da função (3.14) em que se supõe que a forma da resolução temporal é a de uma gaussiana, um dos parâmetros a ser ajustado é a largura σ dessa gaussiana. Sob a hipótese de detetores iguais é evidente que a resolução em tempo da medida do decaimento de um nível nuclear quando consideramos a mesma cascata, deve ser idêntica para qualquer par de detetores dentro do espectrômetro. Quando essa hipótese é satisfeita temos o ajuste de um único σ. Pode-se também ajustar várias larguras quando os detetores não são iguais quanto à resposta temporal. Mas quando a resposta temporal possui

uma pequena largura, devemos considerar o valor médio de σ como melhor definição para esse parâmetro pois não teremos precisão estatística para determinar os vários valores.

A constante de decaimento λ do nível intermediário, dada na relação (3.6), também é um parâmetro a ser ajustado. Podemos utilizá-la como parâmetro comum ou mesmo ter um λ para cada espectro. É evidente que cada espectro deveria ter a mesma constante de decaimento pois esta está ligada à sonda de prova que é a mesma em todos os espectros. Porém, efeitos indiretos de medição podem fazer com que esta constante seja diferente, como por exemplo, uso de calibrações diferentes em conversores de tempo em altura de pulso. Da mesma forma, quando usamos a função convoluida com resposta temporal, como pode ser visto na equação (3.6), a constante de decaimento é ligeiramente modificada. Nesse caso, em princípio, quando ajustamos diversos sigmas devemos também ajustar diversos λ's. Porém como a dispersão dos vários λ's é pequena, não compensa muito tomar esses λ's distintos.

Notemos que podemos ter vários modelos num único ajuste, bastando para isso definir o vetor de parâmetros. Como por exemplo, se tomarmos um modelo que supõe N espectros com interação elétrica, delta único, tendo múltiplos a_{22} e um único a_{44}, ele terá vetor de parâmetros dado por:

$$\vec{A} = \left(A_1, B_1, (\ _0)_1, C_1, \cdots, A_N, B_N, (\ _0)_N, C_N, (a_{22})_1, \cdots, (a_{22})_N, a_{44}, \lambda, \omega_Q, \eta, \delta\right) \quad (4.11)$$

Pode-se então montar o modelo que se queira, ou mesmo que a precisão das medidas permita, e posteriormente comparar os valores dos parâmetros nos vários modelos. O a_{22} obtido no modelo do vetor A dado em (4.10) pode ser comparado com o valor individual dos a_{22} ou mesmo sua média obtido em (4.11). Nesses mesmos ajustes, a mesma comparação pode ser feita para os valores de delta.

4.3.3 - Múltiplos Sítios

Toda a perturbação causada à sonda de prova colocada numa amostra vem da forma do campo magnético ou elétrico gerado pela estrutura cristalina ao qual está inserido essa sonda. Em muitos casos, a amostra possui mais de uma estrutura cristalina, ou ainda a sonda de prova ocupa posições distintas na mesma estrutura cristalina. Cada possível posição da sonda de prova dentro da amostra é chamada comumente de sítio. Dessa forma teremos quantas perturbações à nossa sonda de prova forem o número de sítios, e assim encontraremos varias frações dos núcleos sob diferentes interações, ou seja com um determinado fator de perturbação $g_{kk}(t)$. Quando medimos um espectro temos como fator de perturbação uma superposição de todos os N sítios cada qual com seu respectivo $g_{kk}^{\,i}$ que pode ser escrita da forma:

$$G_{kk}(t) = \sum_{i}^{N} f_i \cdot g_{kk}^{\,i}(t) \tag{4.12}$$

onde f_i é a fração de ocupação do sitio i, para o qual o fato de perturbação é $g_{kk}^{\,i}$, com $\sum_{i}^{N} f_i = 1$, e também são parâmetros a serem determinados.

Na análise de espectros com interação em mais de um sítio, montamos o vetor de parâmetros com os vários parâmetros de interação e a fração desse sítio no $G_{kk}(t)$ total. Devido ao vínculo entre as frações relativas de cada sítio, ao ajustar espectros de N sítios, só ajustaremos N-1 frações pois uma delas estará ligada à normalização. Por exemplo, o vetor de parâmetros para ajuste de um único espectro e sob interação de campos vindos de dois sítios elétricos será dado por:

$$\vec{A} = \left(A, B, t_0, C, a_{22}, \lambda, \omega_Q^{\,1}, \eta^1, \delta^1, f_1, \omega_Q^{\,2}, \eta^2, \delta^2, 1 - f_1\right) \tag{4.13}$$

onde $(\omega_Q^{\,1}, \eta^1, \delta^1)$ são parâmetros de interação do sítio 1 de função de perturbação $g_{kk}^{\,1}$ com amplitude f_1 e $(\omega_Q^{\,2}, \eta^2, \delta^2)$ são parâmetros do sítio 2 de função de perturbação $g_{kk}^{\,2}$

com amplitude $1-f_i$.

Em muitas amostras cristalinas, a sonda de prova ocupa um sítio em que não ocorre interação, por exemplo porque o gradiente de campo elétrico é nulo por simetria. Nesse caso a correlação angular não será perturbada, o que faz com que os termos de perturbação $G_{kk}(t)$ sejam constantes no tempo. O mesmo efeito pode ser percebido quando uma amostra possui várias moléculas com geometria não tão bem definida. Dessa forma ocorre uma perturbação diferente em cada uma dessas moléculas e, como a medida reflete uma média, ao final teremos uma perturbação constante.

Como pode ser visto nas equações (3.3) e (3.4) quando temos freqüências de oscilação nulas, o termo de perturbação $G_{kk}(t)$ torna-se constante. Portanto, a maneira de ajustar espectros com tal efeito é fazer todos parâmetros de interação nulos e ajustar somente a fração f de interação nesses sítios. Dessa forma, por exemplo, o vetor de parâmetros para ajuste de um único espectro e sob interação de campos vindos de dois sítios elétricos em que um deles será constante, é dado por:

$$\vec{A}=\left(A,B,t_0,C,a_{22},\lambda,\omega_Q,\eta,\delta,f,0,0,0,1-f\right) \tag{4.14}$$

A figura 4.1 mostra um espectro onde ocorreu esse efeito. Note que a função ajustada não passa pelo zero, quando sabemos pela figura 2.4 que todo $G_{22}(t)$ passa pelo zero.

Capítulo 5

Resultados Obtidos

5.1 – Espectros Analisados

Para a verificação do método de ajuste simultâneo, analisamos alguns espectros obtidos com arranjos experimentais de grupos de pesquisa que trabalham com correlação angular perturbada. Os resultados obtidos estão apresentados neste capítulo. Primeiramente, comparamos os parâmetros obtidos por nosso método com os obtidos em trabalhos já publicados na literatura e posteriormente estão apresentados os demais parâmetros que obtemos pelo método do ajuste simultâneo e não são determinados pelos outros métodos.

Foram analisados os espectros do Laboratório de Interações Hiperfinas (LIH) do Centro do Reator de Pesquisas (CRPq) do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN) e da Universidade de Bonn cujo grupo de pesquisa tem como principal pesquisador o Prof. Manfred Forker. Ambos possuem espectrômetros com quatro detetores de BaF_2 separados em ângulos de 90° sendo portanto cada medida composta de 12 espectros.

Os espectros analisados foram os provenientes de :

a) Interação quadrupolar de ^{181}Ta em Háfnio metálico medido no CRPq.

b) Interação quadrupolar de ^{181}Ta em oxido de háfnio (HfO_2) medido no CRPq.

c) Interação quadrupolar de ^{111}Cd em cádmio medido no CRPq.

d) Interação magnética do ^{111}Cd em níquel medido no CRPq.

e) Interação magnética do ^{181}Ta em níquel medido no CRPq.

f) Interação quadrupolar do ^{111}Cd em $Hf_2V_2H_1$ medido na Universidade de Bonn

5.2- Interação Quadrupolar no Óxido de Háfnio

A seguir vamos analisar um conjunto de espectros medidos no CRPq, de uma amostra de óxido de háfnio (HfO_2) onde átomos de ^{181}Ta são usados como sondas de prova. Essa medida foi feita para testar a interface eletrônica do "roteador" desenvolvida por Domienikan [Do00], onde são descritos os detalhes de criação dessa amostra, bem como os resultados obtidos pelo método de ajuste convencional usado no CRPq.

Em temperatura ambiente a estrutura cristalina do HfO_2 é cúbica e assim, deveria ter valor de η nulo. Porém, devido à presença do zircônio na amostra, os valores obtidos normalmente para η são diferentes de zero. Dessa forma, pela determinação do parâmetro de assimetria podemos ter informação sobre a concentração de zircônio na amostra.

A figura 5.1 mostra exemplos dos espectros de correlação angular perturbada a 90° e 180° de uma amostra que foi medida por 20 horas de contagem. Não há um prompt eminente de modo que estaremos desconsiderando-o. Assim, a região de ajuste para todos os modelos usados consiste em aproximadamente 6 meias vidas do estado intermediário do ^{181}Hf começando 5 canais à frente do canal que contém o tempo inicial.

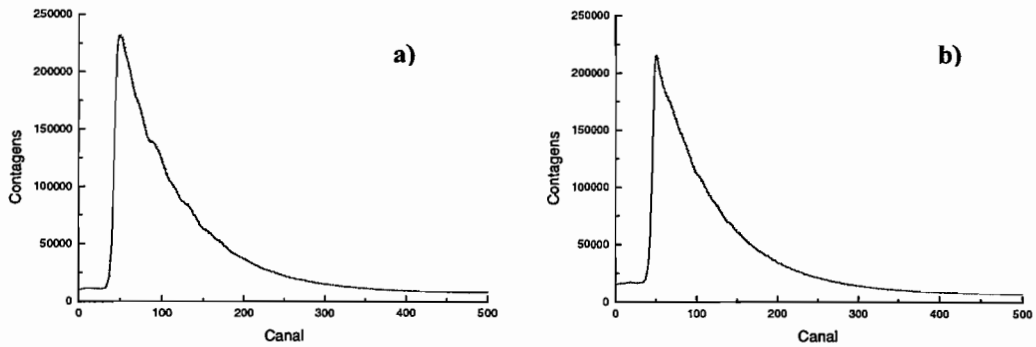


Figura 5.1- Espectros de correlação angular perturbada, a 180° e 90° respectivamente em a) e b), da interação quadrupolar de ^{181}Ta em HfO_2 em temperatura ambiente. A região mostrada em cada espectro é maior do que a região utilizada no ajuste.

Um ajuste preliminar para a obtenção dos valores de amplitude, tempo inicial e fundo foi realizado com o intuito da construção dos espectros razão e de freqüência. De

posse desses parâmetros em cada espectro, tais espectros foram construídos como descritos nas seções 4.2.1 e 4.2.2. A figura 5.2 mostra o espectro razão dessa medida enquanto a figura 5.3 mostra o respectivo espectro de freqüências. Nesse ajuste preliminar além dos parâmetros já citados, pudemos também obter os parâmetros de interação, que são aqueles que compõem o fator de perturbação $G_{22}(t)$ com os quais desenhamos a curva da figura 5.2.

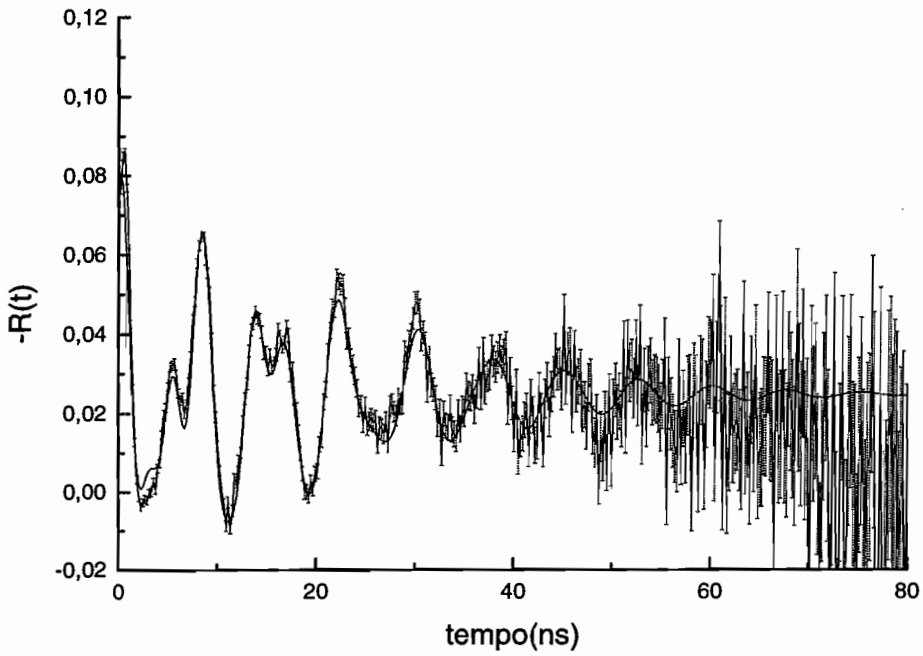


Figura 5.2: Espectro Razão da interação quadrupolar de ^{181}Ta em HfO_2 em temperatura ambiente. A curva desenhada corresponde à função ajustada cujos parâmetros estão listados na tabela 5.1.

Neste ajuste tivemos que inserir um sítio sem interação hiperfina, ou seja em que o fator de perturbação é uma constante. Pode-se notar que a ocorrência de freqüências não proporcionais a 1:2:3 no espectro de freqüência sugere uma assimetria. A tabela 5.1 mostra todos os parâmetros de interação desse ajuste preliminar, sendo que o valor do χ^2 desse primeiro ajuste foi de 6224 com 4003 graus de liberdade, o que representa um χ^2 reduzido de 1,55.

A_{22}	ν_Q (MHz)	η	δ	f_0 (%)	f_1(%)
- 0,0811(8)	786,0(7)	0,3537(15)	0,0431(7)	88,09	11,9 (7)

Tabela 5.1: Parâmetros de interação elétrica em ^{181}Ta em HfO_2 obtidos em ajuste preliminar. O valor de f_0 se refere ao sitio ao qual estão apresentados os valores de ν_Q, η e δ, e o valor de f_1 se refere à fração do fator de perturbação constante. Ambos valores de fração estão apresentados percentualmente.

Os valores obtidos no ajuste preliminar e listados na tabela 5.1 para ν_Q, η concordam com os de Yeshurun e Arad [Ye74] que são: ν_Q = 783(9) MHz e η = 0,35(2) e são idênticos aos obtidos por Domienikan [Do00], que também analisou esta medida, que são: ν_Q = 785,6(1)MHz e η = 0,37(2), o que comprova que o ajuste simultâneo é compatível com a análise convencional.

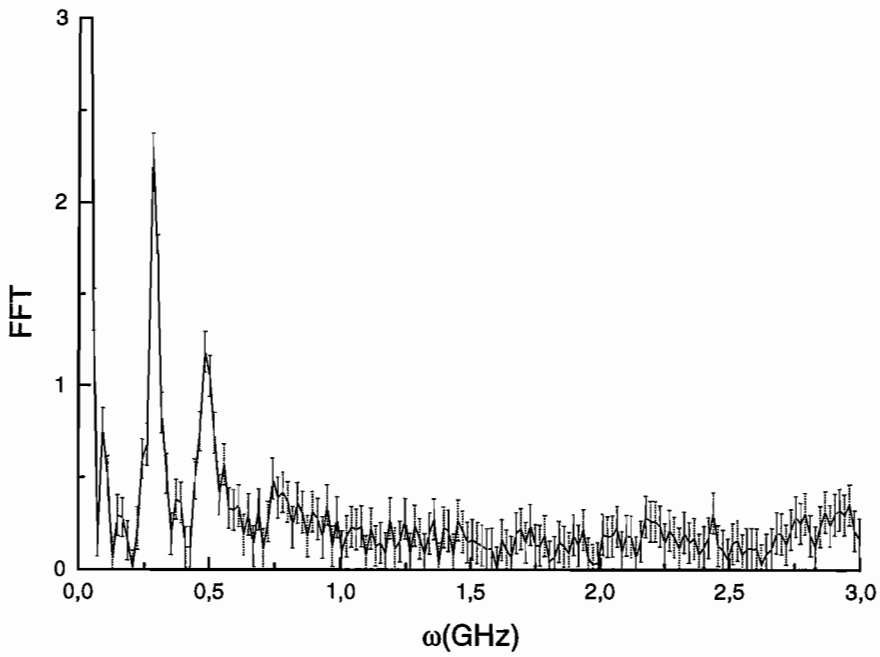


Figura 5.3 - Espectro de freqüência do espectro razão da figura 5.1.

Os valores dos parâmetros de amplitude A, de fundo B e tempo inicial t_0, obtidos nesse ajuste preliminar são mostrados na tabela 5.2. A diferença entre os diversos valores de A e B mostram que temos eficiências distintas a cada par de detetores, o que implica que as eficiências individuais dos detetores não são idênticas.

A	B	t_0
248160(380)	7535(10)	342,505(52)
144940(260)	4197(8)	349,196(60)
233790(260)	6010(10)	352,442(53)
193380(320)	5723(9)	349,303(56)
219000(420)	6054(10)	347,396(49)
205830(470)	5884(9)	347,336(52)
131810(360)	3275(7)	348,337(65)
175030(430)	5378(9)	344,506(56)
276420(560)	7823(11)	336,803(45)
260510(540)	7698(11)	352,584(49)
163380(410)	4419(8)	349,489(58)
221320(490)	7151(10)	344,039(50)

Tabela 5.2- Valores de amplitude A, fundo B e tempo inicial t_0 dos espectros da amostra de HfO_2 para o ajuste preliminar.Os 4 primeiros dados se referem aos espectros de 180° enquanto que os demais se referem aos espectros de 90°.

Depois do ajuste preliminar foi realizado um ajuste com um modelo com quase todos os parâmetros do ajuste preliminar, porém com múltiplos a_{22}, isto é, um para cada espectro. Os demais parâmetros determinados anteriormente mudaram muito pouco em relação ao ajuste preliminar e continuam compatíveis com os da literatura. O valor do χ^2 desse ajuste foi de 6102 com 3992 graus de liberdade, que significa ter um χ^2 reduzido de 1,53, representando assim uma pequena melhora. A tabela 5.3 mostra os valores desses múltiplos a_{22} bem como sua média para comparação.

a_{22}	a_{22}	a_{22}
-0.0870(13)	-0.0801(28)	-0.0696(26)
-0.0751(17)	-0.0752(30)	-0.0712(27)
-0.0877(13)	-0.0720(37)	-0.0758(33)
-0.0806(15)	-0.0742(33)	-0.0738(29)
	média	-0.0768(16)

Tabela 5.3: Valores de a_{22} no ajuste dos espectros da amostra de HfO_2, sendo que a primeira coluna se refere aos espectros a 180° e as duas colunas restantes aos espectros de 90°. A média é feita com os todos os valores de a_{22} apresentados.

Note que a média dos valores de a_{22} é diferente do valor apresentado na tabela 5.1, isto é, quando um único a_{22} é ajustado, porém são bem próximos. Isso implica que quando se ajusta um único valor para a_{22} apenas temos uma boa aproximação. A diferença entre os vários valores de a_{22} tem suas possíveis causas associadas principalmente às diferenças entre as eficiências intrínsecas de cada detetor. A causa dessa diferença também pode estar em ângulos ligeiramente diferentes de 90° e 180°, ou ainda a fonte desalinhada ou não estar centrada, ou ainda uma combinação desses itens. Como na função decaimento o parâmetro a_{22} está multiplicando o fator fixo $P_2(\cos\theta)$ uma mudança nesse fator pode ser compensada em mudanças no valor de a_{22}.

Considerando que os detetores usados possuem uma resolução temporal menor que 1 ns, vamos utilizar o modelo com resposta temporal gaussiana. Dessa forma o fator de perturbação será dado por (3.15). Pode-se ser ajustado um único valor do parâmetro de largura σ, porem optamos por múltiplos σ por já estarmos ajustando múltiplos a_{22}. O valor do χ^2 desse ajuste foi de 6038 com 3981 graus de liberdade, que significa ter um χ^2 reduzido de 1,51, novamente representando uma pequena melhora. Da mesma forma, os parâmetros de interação mudam ligeiramente mas ainda concordam com a literatura. Os valores dos vários σ estão mostrados na tabela 5.4, onde cada canal corresponde a 0,21 ns. Esses valores distintos de σ mostram que os detetores têm resoluções temporais diferentes. Como o valor médio desses σ é da ordem de 1,5 canal, ou seja 0,3 ns, é certo que os detetores são bem rápidos e que a inclusão desse parâmetro pode ser irrelevante ou ainda

pode-se usar um valor médio para todos os espectros, quando se quer obter somente os valores dos parâmetros de interação.

σ (canais)	σ (canais)	σ (canais)
1,31(24)	1,00(67)	2,44(37)
1,66(30)	1,07(71)	2,36(38)
1,50(22)	1,14(88)	1,53(11)
1,32(29)	1,04(80)	2,25(40)

Tabela 5.4: Valores do parâmetro da resolução temporal no ajuste dos espectros da amostra de HfO_2, sendo que a primeira coluna se refere aos espectros a 180° e as duas colunas restantes aos espectros a 90°. Nessa medida cada canal corresponde a 0,21 ns.

Vamos considerar agora o modelo onde iremos manter os parâmetros de interação dados por ν_Q e η e teremos vários deltas, um a cada freqüência de oscilação. Além desses parâmetros de interação ajustamos também um a_{22} e um σ a cada espectro. A tabela 5.5 apresenta os parâmetros de interação para esse ajuste que teve como χ^2 o valor de 6032 com 3979 graus de liberdade, que significa ter um χ^2 reduzido de 1,51, que não representa uma melhora em relação ao ajuste anterior. Os parâmetros A, B e t_0 determinados nesse ajuste em comparação ao preliminar são os mesmos dentro da incerteza de cada um deles. Além disso os valores de σ e a_{22} continuam os mesmos em relação ao ajuste em que tínhamos um único delta a todas freqüências.

ν_Q (MHz)	η	δ			f_0(%)	f_1(%)
786,0 (9)	0,3548(15)	0,0430(11)	0,0398(10)	0,0412(23)	90,52	9,5(8)

Tabela 5.5: Parâmetros de interação elétrica em ^{181}Ta em HfO_2 obtidos em ajuste de múltiplos deltas. O valor de f_0 se refere ao sitio de correlação perturbada e o valor de f_1 se refere ao sitio de correlação constante.

Como se pode notar pela comparação entre as tabelas 5.5 e 5.1, os valores da freqüência de quadrupolo ν_Q e do parâmetro de assimetria η não se alteram. Nessa mesma comparação podemos notar que as frações de cada sítio se modificaram porém dentro das incertezas. O valor médio dos vários δ's é de 0,0413(9) compatível com o valor do ajuste preliminar.

Em um ajuste para obtenção do valor de a_{44}, o valor deste ficou em -0.0050(10), isto é, bem menor que qualquer valor de a_{22} obtido. Dessa forma podemos ter certeza sobre o espectro R(t) construído na figura 5.2 por este desprezar termos de ordem maior que a_{22} na função de correlação. Nesses ajustes alguns parâmetros foram obtidos com grande precisão. No entanto como o valor do χ^2 não foi aceitável, então não devemos considerar a incerteza dos parâmetros como sendo totalmente correta.

O valor grande de χ^2 deve estar relacionado a um terceiro sítio. Se ele realmente existir, terá baixa amplitude, pois não aparece visualmente no espectro razão, figura (5.2). Pode-se notar porém, que no espectro de freqüências, figura (5.3), antes dos picos mais pronunciados, existem alguns picos menos pronunciados indicando que pode haver outro sítio cuja interação com a sonda de prova gere uma freqüência menor que a encontrada no sítio com maior probabilidade. Ao ajustarmos os três sítios utilizamos o modelo em que consideramos múltiplos deltas no sítio mais provável e um único no novo sítio, para manter o número de parâmetros reduzidos. Esse modelo também considera um a_{22} e um σ a cada espectro. Os resultados obtidos nesse ajuste estão listados na tabela 5.6.

	ν_Q(MHz)	η	δ			f(%)
Sítio 1	785,90(68)	0,3548(15)	0,0395(18)	0,0394(10)	0,0437(25)	87,58
Sítio 2	530(8)	0,717(38)	0,001(1)			2,4(9)
Sítio 3	0	0	0			10,0(9)

Tabela 5.6: Parâmetros de interação elétrica em ^{181}Ta em HfO_2 obtidos em ajuste de 3 sítios. Os valores de ν_Q, η e δ nulos se referem ao sítio com fator de perturbação constante e não foram ajustados. O valor de δ para o sitio 2 se refere ao seu limite inferior. Os valores das frações estão apresentados percentualmente.

Como se pode notar pela tabela 5.6 não podemos afirmar que realmente existe o sitio 2 devido à grande incerteza na sua fração. O valor de δ desse sítio deve ser muito pequeno, ou igual a zero porem não foi possível ser obtido com exatidão. O valor de χ^2 obtido pelo ajuste de 3 sítios foi de 6029 com 3975 graus de liberdade, ou seja com χ^2 reduzido de 1,51, não representando melhora em comparação ao ajuste de dois sítios. Ainda assim pudemos determinar os possíveis parâmetros de interação do sítio 2 pela pequena fração já dita anteriormente. Note, em especial que apesar da fração f ter precisão próxima a 38%, esse valor ainda é razoável quando comparado aos obtidos na literatura, como pode ser visto em [Fo00].

5.3 - Interação quadrupolar de ^{111}Cd em $HfV_2H_{1,78}$

Os espectros de interação quadrupolar do composto de $HfV_2H_{1,78}$ à temperatura de 290K foram medidos na Universidade de Bonn. Os detalhes da produção da amostra bem como as condições de medida estão em [Fo95]. A figura 5.4 mostra espectros a 90° e 180°, dessa amostra. A região de ajuste usada em todos os modelos foi de aproximadamente 5,5 meias vidas do estado intermediário, começando 5 canais à frente do canal que contém o tempo inicial.

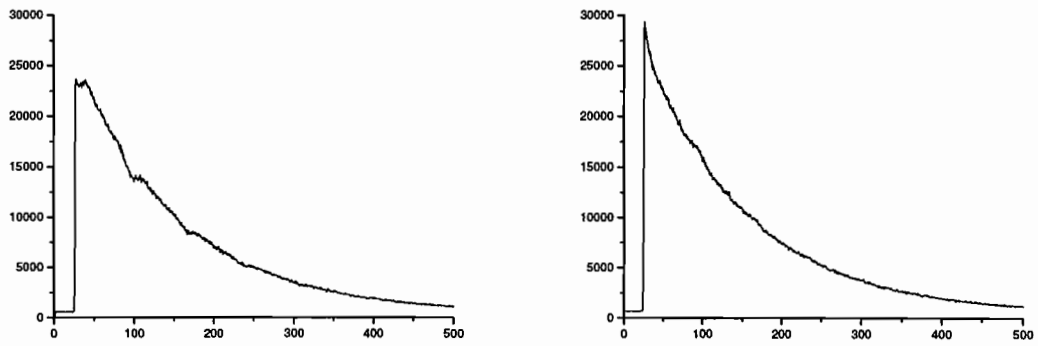


Figura 5.4: Espectros de correlação angular perturbada de 180° e 90° respectivamente do núcleo de prova ^{111}Cd em composto de $HfV_2H_{1,78}$. A região mostrada em cada espectro é maior que a utilizada nos ajustes.

O procedimento inicial é determinar os parâmetros individuais de cada espectro, ou seja os valores da amplitude A, do fundo B e do tempo inicial t_0, visto que esses espectros não apresentavam prompt. Como na seção anterior, através de um ajuste preliminar pudemos obter esses parâmetros e assim construir o espectro razão que está representado na figura 5.5. Esse espectro razão, aliado ao seu respectivo espectro de freqüências, representado na figura 5.6 nos fornece as melhores estimativas para o ajuste dos parâmetros de interação.

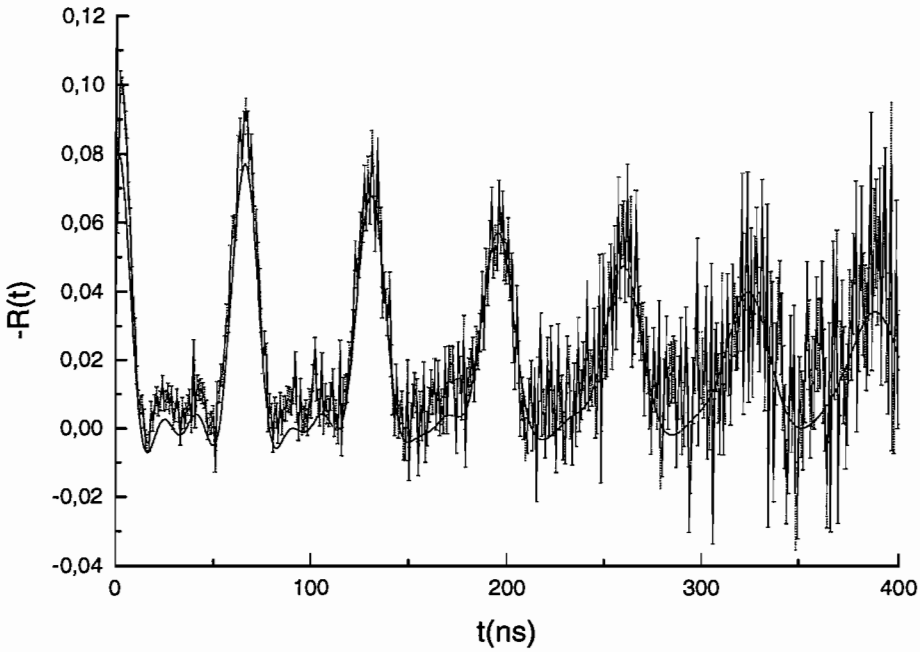


Figura 5.5: Espectro Razão da interação quadrupolar de ^{111}Cd em $HfV_2H_{1,78}$ na temperatura de 500K. A curva desenhada corresponde à função ajustada cujos parâmetros estão listados na tabela 5.1.

Nesses espectros não foi necessário incluir um sítio com fator de perturbação constante. Além disso, o espectro de freqüência sugere, através das freqüências quase proporcionais, que o parâmetro de assimetria deve ser bem pequeno ou igual a zero. A tabela 5.7 mostra os valores dos parâmetros de interação para o ajuste preliminar junto com

o χ^2 desse ajuste. O valor de ν_Q concorda com o de [Fo95] e, como sugerido pela análise do espectro de freqüências, o valor de η é pequeno sendo determinado com boa precisão.

a_{22}	ν_Q(Hz)	η	δ	χ^2 (G. L.)
-0,0808(10)	102,77(15)	0,084(7)	0,0293(10)	5790 (5558)

Tabela 5.7: Parâmetros de interação elétrica em ^{111}Cd em amostra $HfV_2H_{1,78}$ na temperatura de 290K

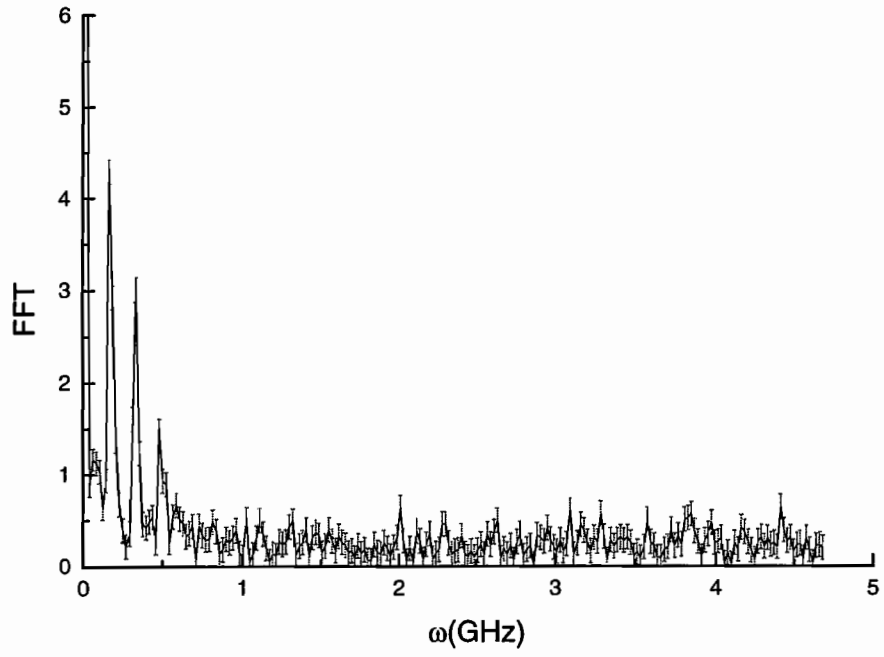


Figura 5.6 - Espectro de freqüência do espectro razão da figura 5.5.

A tabela 5.8 mostra os valores dos parâmetros individuais obtidos no ajuste preliminar, além da seqüência dos detetores que dão a partida e parada e que estão dispostos como na figura 5.7. Assim, os quatro primeiros espectros são de 180° e os demais de 90°. Como pode-se notar, os valores de *A* e *B* são diferentes mesmo considerando espectros de mesmo ângulo, o que implica em eficiências distintas em cada par de detetores.

Espectro	*A*	*B*	t_0 (canal)
13	25212(45)	464(3)	26,66(21)
31	27707(21)	541(4)	26,99(22)
24	25533(47)	469(3)	24,42(21)
42	25896(46)	480(3)	25,31(20)
23	27191(84)	475(3)	26,13(37)
32	28222(85)	489(4)	26,56(36)
14	24112(77)	420(4)	24,85(41)
41	25747(79)	482(3)	26,30(37)
12	26673(83)	468(3)	24,88(40)
21	27244(83)	472(4)	24,58(34)
34	26286(82)	494(3)	27,54(36)
43	25149(80)	439(3)	26,18(37)

tabela 5.8- Valores dos parâmetros *A*, *B* e t_0 para cada espectro, representado pelo par de detetores indicado, obtidos pelo ajuste preliminar de espectros de ^{111}Cd em $HfV_2H_{1,78}$

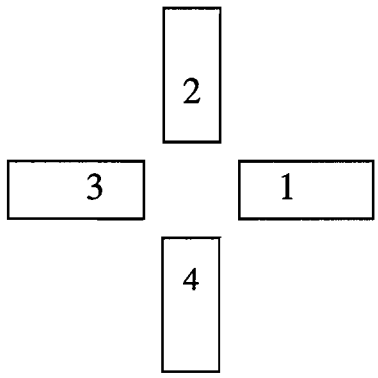


figura 5.7 – Disposição dos detetores para o arranjo de medida dos espectros de $HfV_2H_{1,78}$.

Em seguida realizou-se um ajuste, usando um modelo com múltiplos a_{22}. Os parâmetros de interação obtidos por esse ajuste não se alteram em relação aos obtidos no ajuste preliminar. A tabela 5.9 mostra os vários valores do parâmetro a_{22} e a média desses valores. O valor obtido quando se ajusta um único a_{22} para todos os espectros é 0,0808(10), valor esse dentro da incerteza da média dos a_{22}, o que mostra um bom alinhamento da fonte.

Espectro	Valores de a_{22}
13	-0,0770(26)
31	-0,0719(26)
24	-0,0816(26)
42	-0,0792(26)
23	-0,0842(45)
32	-0,0830(44)
14	-0,0792(47)
41	-0,0846(46)
12	-0,0788(45)
21	-0,0913(45)
34	-0,0859(46)
43	-0,0891(47)
média	-0,0821(15)

tabela 5.9: comparação de parâmetros a_{22} (e sua média) para ajuste simultâneo de uma amostra de $HfV_2H_{1,78}$

Foram realizados dois ajustes simultâneos nessa amostra, um deles considerando um δ único para todas as freqüências e outro considerando um δ para cada freqüência. Nesses mesmos ajustes foi determinado o valor de a_{44}. Diferente do ajuste realizado para a interação quadrupolar do ^{181}Ta em HfO_2 (seção 5.2) a mudança desse parâmetro δ faz diminuir bastante o χ^2, como pode ser visto na tabela 5.10.

	delta único	3 deltas	
a_{22} (media e desvio)	-0,0821(15)	-0,0842(13)	
a_{44}	-0,0037(19)	-0,0011(18)	0,0418(17)
δ	0,0296(10)	0,0309(55)*	0,0273(12)
ν_Q	102,79(14) MHz	102,76(13) MHz	0,0235(17)
η	0,083(7)	0,082(7)	
χ^2 (G. L.)	5762(5546)	5692(5544)	
χ^2 reduzido	1,04	1,03	
% de ser excedido	2,1	7,8	

tabela 5.10: Comparação entre ajustes simultâneos de uma amostra de $HfV_2H_{1,78}$ de um único delta e 3 deltas, incluindo a_{44} e múltiplos a_{22}, o valor em * listado é a média de todos os seus valores apresentados ao lado.

Note que os valores de ν_Q e η são os mesmos que os listados na tabela 5.7. O valor de a_{44} pode ser considerado desprezível por seu valor ser bem menor que o de a_{22} além de sua incerteza ser maior que o próprio parâmetro no ajuste com 3 deltas. O valor médio dos deltas é idêntico ao valor único ajustado o que mostra que é possível ajustar com bastante precisão o valor de cada um desses deltas.

5.4 - Interação Magnética do Níquel em ^{181}Ta

Nessa seção vamos analisar a interação magnética do níquel, que é um composto ferromagnético, em sonda de prova de ^{181}Ta, com o intuito de testar as funções deduzidas para essa interação. Como se pode notar, pela figura 5.10 que mostra espectros a 90° e 180° respectivamente, há um pequeno prompt, que será ajustado pelos nossos modelos. Dessa forma, a região de ajuste compreenderá desde alguns canais antes do tempo inicial até alguns canais antes do final do espectro (aproximadamente 6 meias vidas do estado intermediário), o que vai servir de teste também para o fator de perturbação dado em (3.19).

Realizando um ajuste preliminar em uma região correspondendo a tempos posteriores a alguns canais à frente do prompt, obtivemos valores de tempo inicial e fundo com o qual construímos o espectro razão mostrado na figura 5.8. A figura 5.9 mostra o espectro de freqüências desse espectro razão. No ajuste preliminar obtivemos também os valores dos parâmetros de interação com os quais desenhamos a curva da figura 5.9. Nesse ajuste foi necessária a inclusão do sítio com correlação constante. Nota-se pelo espectro de freqüências as duas freqüências de oscilação características da interação magnética. A tabela 5.11 mostra os valores desses parâmetros de interação nesse ajuste preliminar, onde o valor de χ^2 reduzido ficou em torno de 1,53.

a_{22}	f_0(%)	ω_L(Mrad/s)	γ(s^{-1})	f_1(%)	χ^2 (G.L)
-0,1700(11)	79,31	541,30(23)	4,4(4)x 10^{-4}	20,69(30)	5719 (3730)

Tabela 5.11: Valores dos parâmetros de interação magnética para ^{181}Ta em níquel para o ajuste preliminar. A região de ajuste compreendia alguns canais a frente do tempo inicial. O valor de f_1 se refere à fração do sítio com correlação constante.

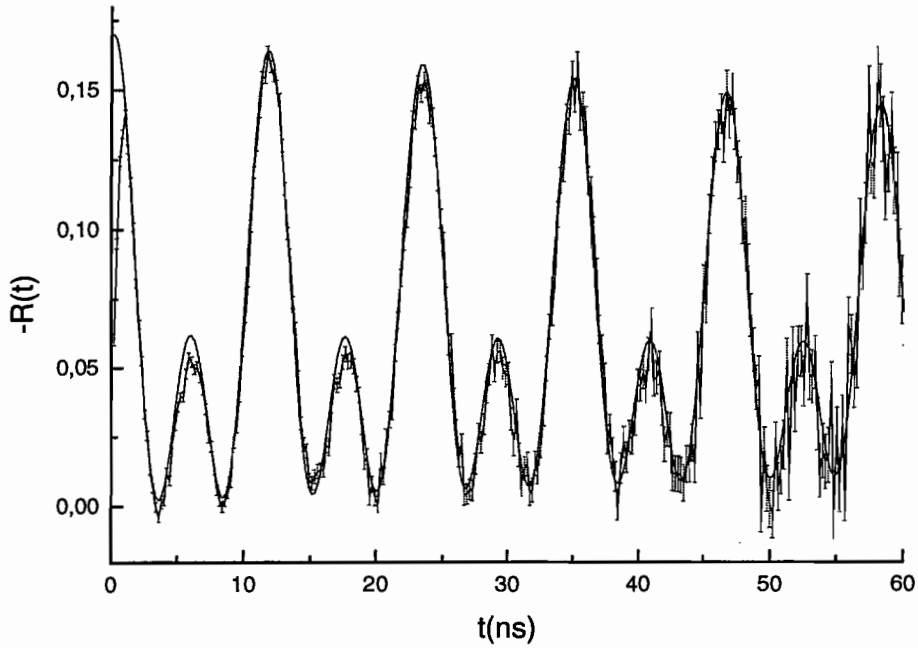


Figura 5.8: Espectro razão de interação magnética de ^{181}Ta em níquel.

A curva desenhada tem parâmetros descritos na tabela 5.9

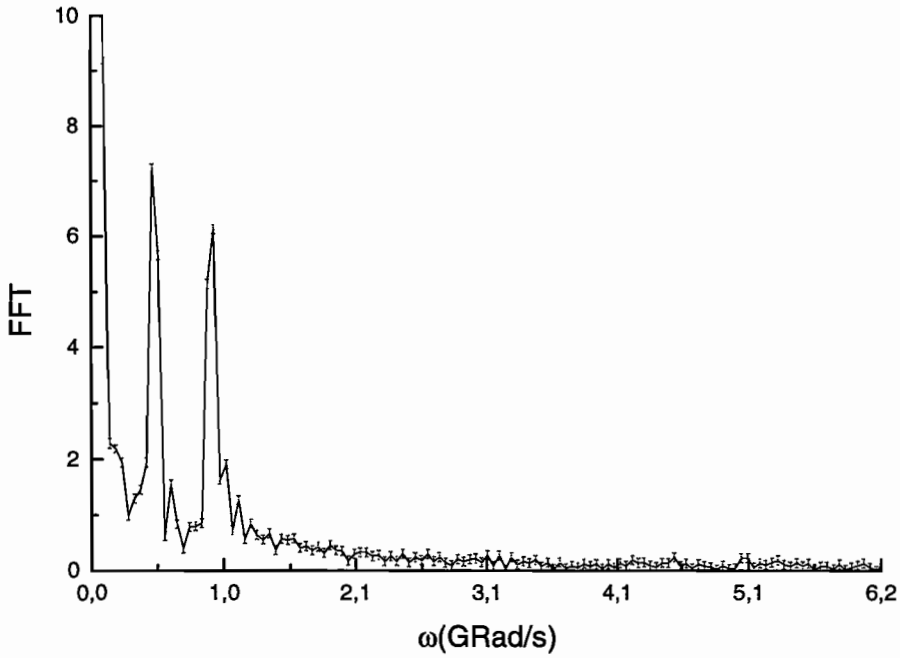


Figura 5.9: Espectro de freqüências do espectro razão da figura 5.8

O valor da freqüência obtida é coerente com o valor publicado em [Ca70] que é de 542,8(9) Mrad/s e idêntico ao valor obtido em [Do00] que é de 541,3(2) Mrad/s. Utilizando a relação (2.15) pudemos calcular o valor do campo magnético hiperfino que foi de 87,20(1,3) kG.

Utilizando a mesma região do ajuste preliminar, isto é, região à frente do canal que contem o tempo inicial, fizemos um ajuste com resolução temporal relevante, equações (3.16) e (3.18). Dessa forma a função utilizada para $G_{22}(t)$ será a dada em (3.18). A tabela 5.12 apresenta os valores dos parâmetros de interação para esse ajuste além do seu respectivo χ^2. Os parâmetros de interação são compatíveis com os descritos no ajuste anterior, isto é, os valores anotados na tabela 5.9. Note primeiramente que como o valor da largura da resposta temporal σ é grande mostrando que o modelo utilizado é melhor que o do ajuste preliminar em que tal largura era desconsiderada. O valor do χ^2 diminuiu, sendo o χ^2 reduzido de 1,48, o que nos faz concluir também que a função descrita em (3.18) está correta.

ω_L(Mrad/s)	γ(s^{-1})	a_{22}	σ(canal^{-1})	χ^2 (G.L)
541,52(24)	3,1(3) x 10^{-4}	-0,1777(12)	2,16 (8)	5541(3729)

Tabela 5.12: Valores dos parâmetros de interação magnética para ^{181}Ta em níquel para o ajuste com resposta temporal relevante. A região de ajuste compreendia é idêntica à da tabela 5.11.

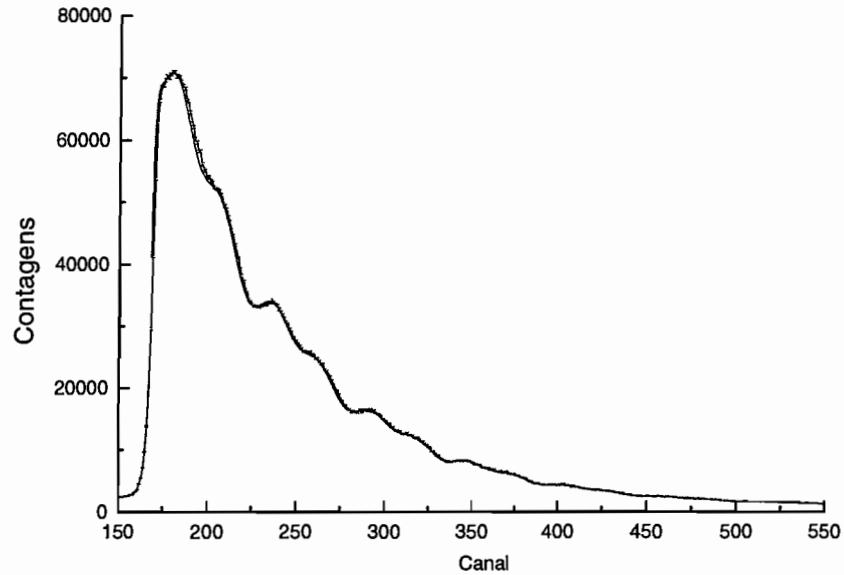
Como já foi demonstrado anteriormente, como os valores de eficiência e resolução temporal são diferentes para cada detetor, então devemos ter um parâmetro a_{22} e um parâmetro σ para cada espectro. Para uma comparação direta, vamos ajustar a função na mesma região do espectro que os ajustes anteriores. Nesse novo ajuste, o valor de χ^2 obtido foi de 5200 com 3710 graus de liberdade, dando um χ^2 reduzido de 1,40,

representando uma grande melhora. A tabela 5.13 mostra os vários valores de σ e a_{22} para esse ajuste e sua média. Os parâmetros de interação são coerentes com os da tabela 5.11.

a_{22}	σ
-0,1913(22)	2,5(1)
-0,1747(26)	1,3(4)
-0,1918(22)	3,3(1)
-0,1705(25)	0,8(6)
-0,1588(52)	0,3(3)
-0,1749(55)	1,2(7)
-0,1673(38)	1,46(2)
-0,1650(57)	1,7(5)
-0,1565(49)	1,4(6)
-0,1806(57)	3,5(3)
-0,1450(37)	1,42(2)
-0,1426(56)	0,8(1)
-0,1682(45)	1,64(28)

Tabela 5.13 – Valores dos múltiplos a_{22} e σ para amostra de interação magnética para ^{181}Ta em níquel para o ajuste com resposta temporal relevante.

Ajustaram-se também os espectros considerando a região válida iniciando no canal que contém o tempo inicial. Dessa forma a função ajustada foi a descrita em (3.16) onde $G_{22}(t)$ é dada por (3.18). Nesse modelo a suposição feita sobre a resposta temporal do detetor é uma gaussiana. O ajuste gerou parâmetros de interação coerentes com os listados anteriormente sendo o valor de χ^2 obtido de 6253 com 3895 graus de liberdade, dando um χ^2 reduzido de 1,60. Esse aumento do valor de χ^2 em relação aos ajustes anteriores se dá devido à aproximação da forma da resposta temporal por uma gaussiana, como pode ser visto na figura 5.10. Pode-se notar que apesar do valor de χ^2 o ajuste ficou muito bom.



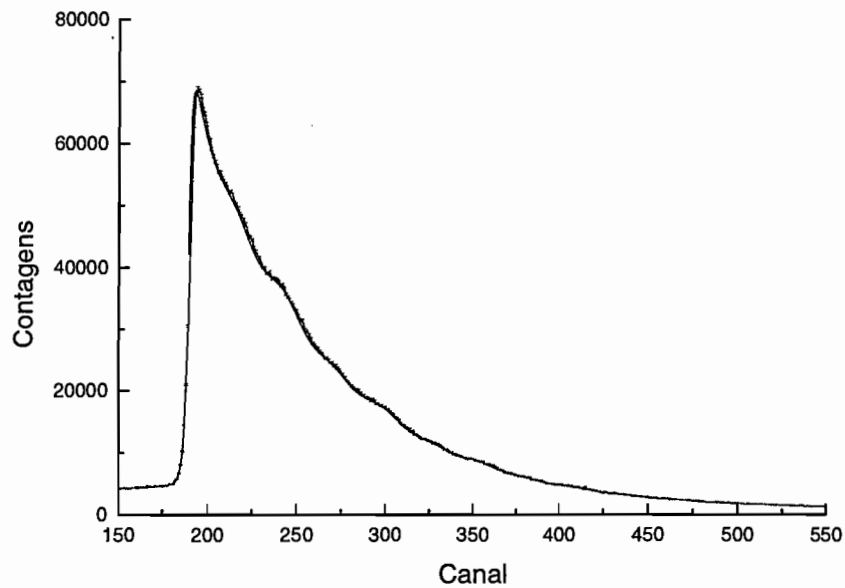


Figura 5.10: Espectros de correlação angular perturbada de 180° e 90° respectivamente do núcleo de prova ^{181}Hf em composto de níquel. A curva ajustada corresponde ao ajuste com resposta temporal relevante.

5.5 - Outras Medidas Analisadas

Vamos apresentar a seguir os resultados obtidos para outras medidas analisadas. Os resultados foram resumidos a fim de se mostrar ou a parte mais interessante ou a que possa ser comparada com a literatura.

5.5.1- Interação Quadrupolar no Háfnio Metálico

Na temperatura ambiente esta estrutura cristalina é hexagonal e, assim, do mesmo modo que a amostra de óxido de háfnio, deveria ter valor de η nulo bem como uma mudança nesse valor por uma pequena concentração de zircônio. Os valores obtidos para a freqüência de quadrupolo e do parâmetro de assimetria são 324,22(8) MHz e 0,186(6) respectivamente, comparados com os de Rasera et al [Ra78] que são de 311,5(5) MHz e 0,26(1) e os de Domienikan [Do00] que são de 312,2(8) MHz e 0,22(1). O ajuste não passou pelo teste do χ^2 em nenhum modelo utilizado e assim pode ainda haver, como no caso do óxido de háfnio mais de um sítio. Esse fato justificaria o valor obtido em comparação aos da literatura. A figura mostra o espectro razão dessa medida.

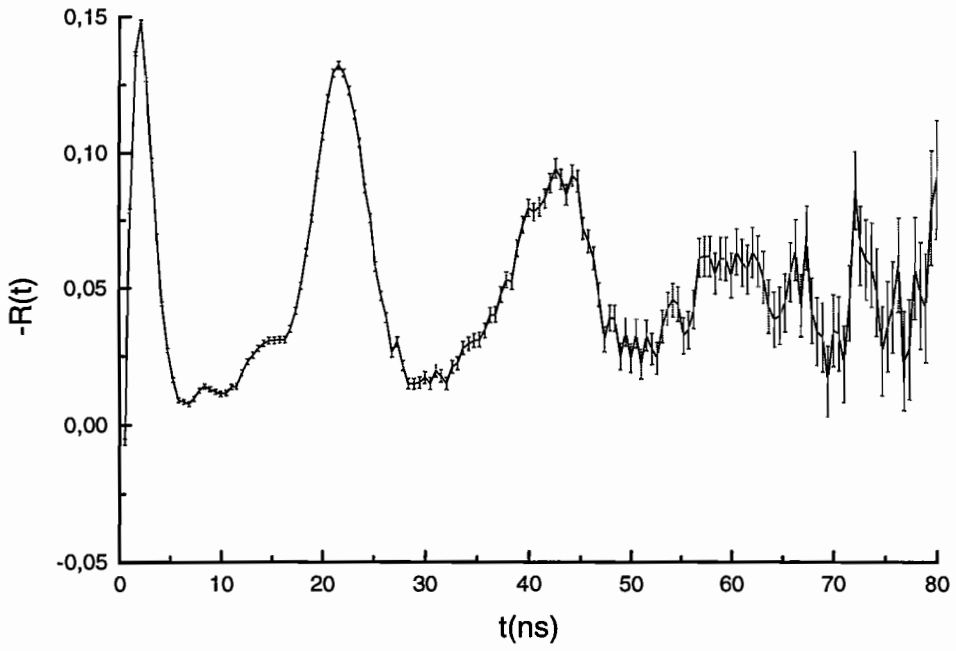


Figura 5.11 – Espectro razão de interação quadrupolar em háfnio metálico sem nenhuma função ajustada.

5.5.2- Interação Quadrupolar em Cádmio

Possui estrutura cristalina hexagonal apresentando um gradiente axialmente simétrico ou seja $\eta = 0$, sendo que uma impureza na amostra também poderá modificar esse valor. Os espectros razão e o espectro de Fourier estão representados respectivamente nas figuras 4.1 e 4.2. O valor obtido da freqüência de quadrupolo e o parâmetro de assimetria são respectivamente 124,44(6) MHz e 0,032(9), em comparação com o valor de freqüência publicado em [Sc92] que é de 124,7(5) MHz e o calculado por Domienikan [Do00] que é de 125,0(3) MHz. Note o pequeno valor do parâmetro de assimetria, comprovando o alto teor de pureza da amostra de cádmio utilizada na medida.

5.5.3- Interação Magnética do ^{111}Cd em Níquel

Analisaremos agora a interação magnética entre a estrutura de níquel e a sonda de prova de ^{111}Cd, para uma comparação com a medida da seção 5.4, em que a sonda de prova é de ^{181}Ta. A figura 5.12 mostra o espectro razão da amostra enquanto que a figura 5.13 mostra sua respectiva transformada de Fourier. O valor obtido para a freqüência de Larmor foi de 98,58(21) Mrad/s comparado ao valor de 97,9(2) Mrad/s obtido por Domienikan [Do00], e o valor de 98,05(10) Mrad/s obtido por Lindgren et al [Li76].

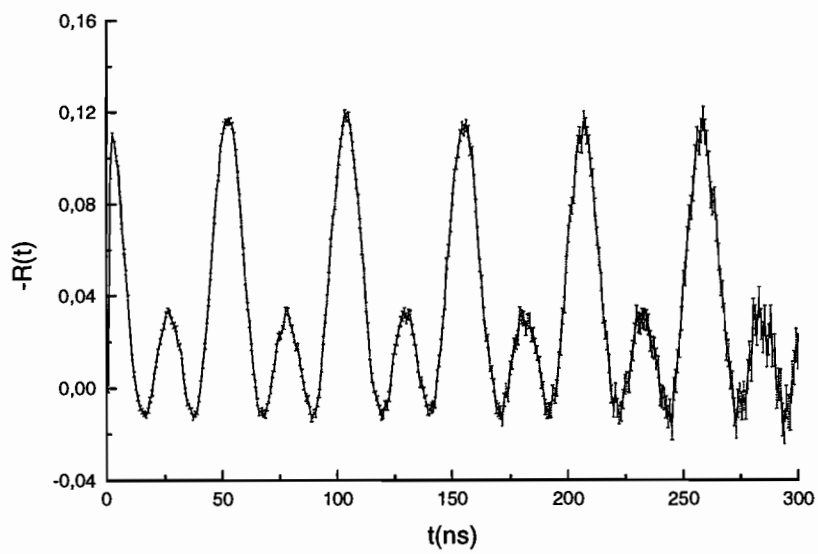


Figura 5.12: Espectro Razão para a amostra de ^{111}Cd em níquel em temperatura ambiente.

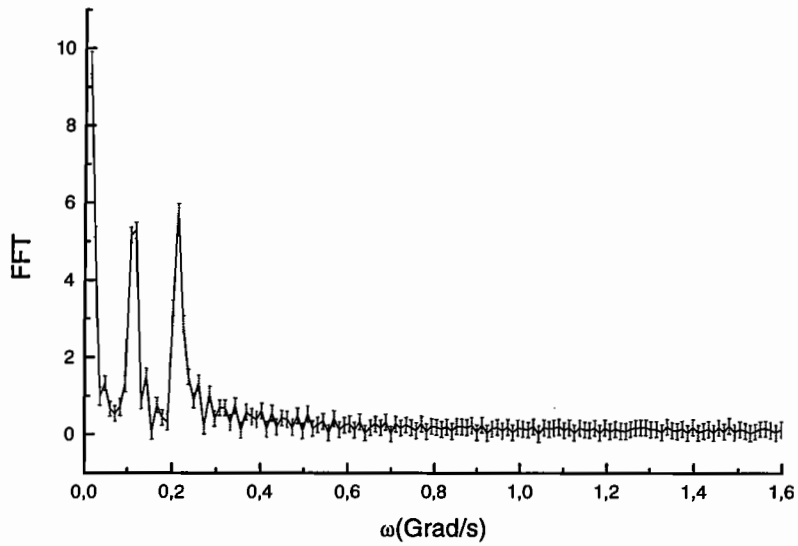


Figura 5.13: Transformada de Fourier de espectro razão da figura 5.12, à temperatura ambiente.

Devido ao bom χ^2 obtido no ajuste 6340 com 5365 graus de liberdade com os resultados idênticos aos da literatura, concluímos que a amostra formou um único sitio, fato esse comprovado pelas freqüências observadas no espectro de freqüências.

Capítulo 6

Medidas com HPGe

6.1 – Introdução

Foram realizadas, no Laboratório do Acelerador Linear, medidas de correlação angular perturbada utilizando um espectrômetro composto de detetores de germânio de alta pureza, denotado simplesmente por HPGe. Esse detetor, por possuir baixa resolução temporal, é pouco indicado nas medidas de PAC.

A primeira motivação para o uso desse detetor foi o fato do conjunto de nuclídeos que podem ser utilizados como sondas de prova ser extremamente pequeno devido a, dentre outros fatores, precisarem de uma cascata com energias gamas separadas por uma grande diferença em energia, pois caso contrário, os cintiladores não conseguirão separar no espectro esses dois gamas. Como os detetores de HPGe possuem boa resolução em energia (cerca de 2 keV), sua utilização possibilitaria a medida de amostra contendo como sonda de prova nuclídeos que possuem o esquema de decaimento complicado, pois serão separados pelos detetores. Dentre os nuclídeos que possuem níveis intermediários com meias vidas da ordem de ns, estão por exemplo, os de ^{44}Sc, ^{99}Rh e ^{100}Rh provenientes respectivamente dos decaimentos do ^{44}Ti, ^{99}Rh e ^{100}Pd.

Dessa forma, realizar medidas de PAC com HPGe e obter resultados mesmo que com baixa precisão pode vir a possibilitar o uso dessas e outras fontes, que poderão ser incorporadas em outros tipos de materiais, visto que nem toda amostra incorpora facilmente os núcleos de ^{111}Cd e ^{181}Ta por exemplo. Há pouco tempo o equipamento de correlação

angular no Laboratório do Acelerador Linear foi substituído por um novo sistema de deteção, desta vez multiparamétrico. O grande ganho deste sistema é que ele possui uma resolução temporal de aproximadamente 5 ns, o que viabiliza certas medidas em tempo antes difíceis de realizar com detetores de HPGe, como os de correlação angular perturbada.

Como exemplo realizamos uma medida teste de interação de quadrupolo em ^{181}Hf em háfnio metálico. O sucesso na obtenção de valores poderá viabilizar o estudo de amostras com os nuclídeos de esquema complicado citados anteriormente. A medida não será limitada devido à sua baixa resolução temporal, mas também à baixa estatística visto que os detetores de HPGe possuem pequena eficiência. Dessa forma devemos ter um método de análise compatível com essas características descritas nessa medida. O método de análise proposto na seção 4.2, em que analisamos os espectros individuais parece ser o mais indicado nessa medida devido à grande diferença entre esses espectros.

6.2 – Sistema Detetor

O espectrômetro utilizado no Laboratório do Acelerador Linear consiste de um sistema multidetetor que permite a utilização de até 8 detetores simultaneamente. Atualmente estão dispostos quatro detetores colocado em uma mesa sendo que 3 deles estão separados em ângulos de 90° e o outro pode ser colocado a ângulo de 45° em relação a um deles. Um desses detetores é um detetor de raios–x, e pode medir gamas de baixa energia com precisão melhor que os demais detetores de HPGe.

Para a medida de correlação angular perturbada utilizamos somente os três detetores separados a ângulos de 90° sendo um deles o detetor de raios x. Todos os detetores são de montagem horizontal, e estão dispostos como na figura 5.1, identificados por detetor 1, detetor 2 e detetor 3, cujos volumes são respectivamente 45 cm^3, 89 cm^3 e 5 cm^3, sendo o detetor 3 o de raio x. Nenhum colimador ou blindagem foi utilizado na medida.

Os detetores de HPGe possuem uma melhor resolução temporal para energias mais altas e desse modo a marcação de tempo será melhor para o gama de 482 keV do que para o gama de 137 keV da cascata do ^{181}Hf. Portanto o gama de menor energia será medido pelo detetor de raio-x enquanto o gama de maior energia será medido pelos detetores de HPGe. Se o detetor de HPGe medir o gama de 137 keV, o espectro resultante dessa medida estará

deteriorado em seu início, por este não marcar corretamente a partida. O detetor de raios x não pode medir o gama de 482 keV, pois este foge de sua região ativa. Devido a esses fatos a medida somente poderá contar com 2 espectros, um a 90° e outro a 180°. A tabela 6.1 mostra a relação entre os detetores usados e os gamas medidos com os espectros obtidos, lembrando que a partida se dá com o gama de 137 keV e a parada se dá com o gama de 482 keV.

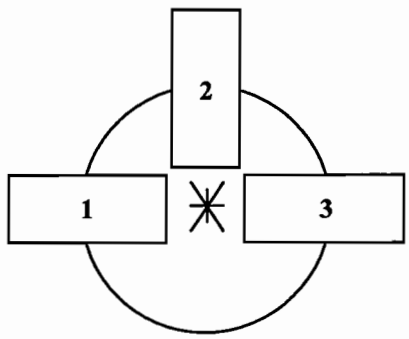


Figura 6.1 Representação dos detetores na medida de correlação angular perturbada com espectrômetro de HPGe. O detetor identificado com o número 3 é o de raio x, sendo os demais detetores de gamas.

ângulo	detetores utilizados
90°	3/2
180°	3/1

Tabela 6.1: Relação entre os ângulos dos espectros obtidos e os índices dos detetores utilizados. O primeiro índice do detetor indica quem deu a partida na medida e o segundo índice quem deu a parada.

6.3 – Eletrônica de Aquisição

O sistema de aquisição compreende uma eletrônica associada formando uma linha rápida e uma lenta, ambas ligadas a um módulo multidetetor. O módulo multidetetor [Gu98] é um módulo eletrônico padrão CAMAC, que foi desenvolvido no Laboratório do Acelerador Linear, destinado à realização de medidas em coincidência com até oito detectores. Uma das principais características do módulo multidetetor, que viabiliza as

medidas de correlação angular perturbada, é que ele dispara o processo sempre que quaisquer dois detectores apresentem sinais separados por menos de 200ns.

A linha lenta consistiu em um amplificador ORTEC 572 (ou equivalente), do qual foram utilizadas as saídas lineares unipolar (UNI) e as saídas lógicas de rejeição de empilhamento (INH) e de "busy" (BUSY) que se conectavam respectivamente ao ADC e ao multidetetor. Já a linha rápida era composta de um amplificador rápido ORTEC 454 conectado a um discriminador de fração constante (Constant Fraction Discriminator - CFD) ORTEC 473A, que forneciam a marcação em tempo, por meio de sinais NIM rápidos. Uma saída do CFD era conectada ao multidetetor. À outra saída do CFD foi adicionado um atraso para posicionar adequadamente o sinal de parada do conversor de tempo (Time to Digital Converter - TDC) ORTEC, que fornece a diferença em tempo entre o sinal de START gerado pelo multidetetor e o sinal tempo. A eletrônica descrita acima é individual a cada detetor, sendo que deve ser repetida *n* vezes se utilizarmos *n* detetores. Note que a eletrônica do multidetetor é similar à eletrônica utilizada nas medidas de correlação angular perturbada como foi descrita na seção 3.3.

Inicialmente o multidetetor verifica a existência da coincidência entre dois detetores através dos sinais rápidos. Já nesta primeira etapa é gerado um sinal de START para o TDC, criando uma referência de tempo para as coincidências. Em seguida é verificado se existem sinais adequados de energia, nos detetores correspondentes a um determinado tempo, através dos sinais lógicos de busy e de empilhamento provenientes dos amplificadores de espectroscopia. Caso os sinais sejam válidos são "abertas" as portas dos ADC's e dos TDC's para a conversão. Na próxima etapa, é verificado se os sinais foram convertidos, dentro do tempo máximo de conversão dos digitalizadores. Caso existam pelo menos dois sinais de energia e pelo menos dois sinais de tempo é realizada a aquisição dos dados. Se alguma das condições não é satisfeita, o sistema é completamente zerado e fica esperando por uma nova coincidência. A figura 6.2 mostra um esquema da eletrônica de aquisição para as medidas no sistema multiparamétrico.

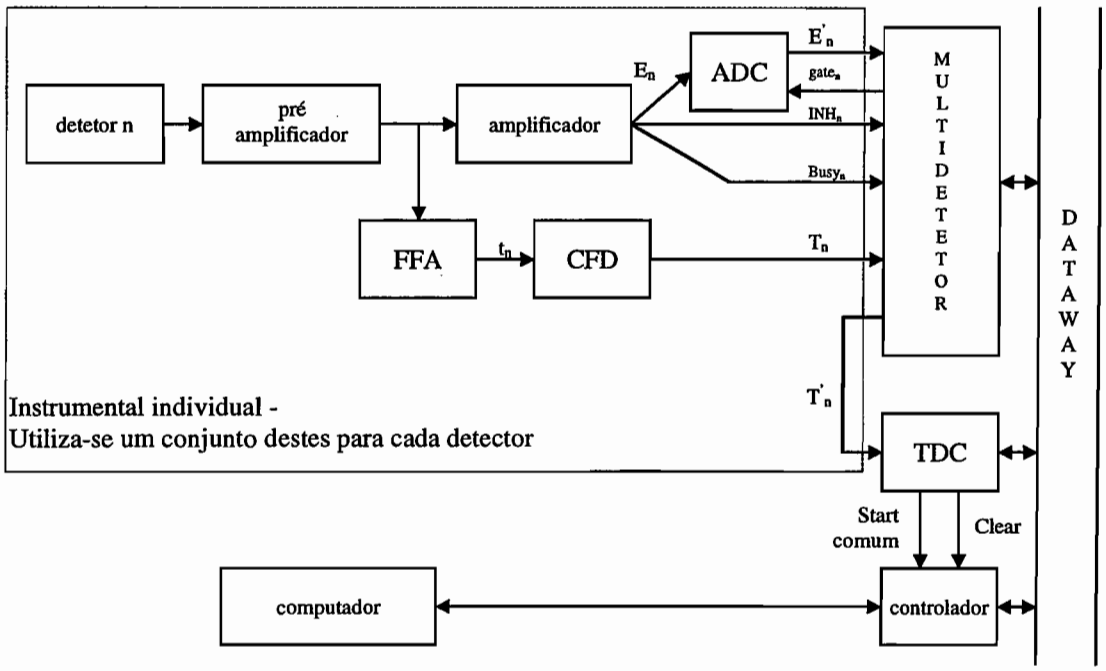


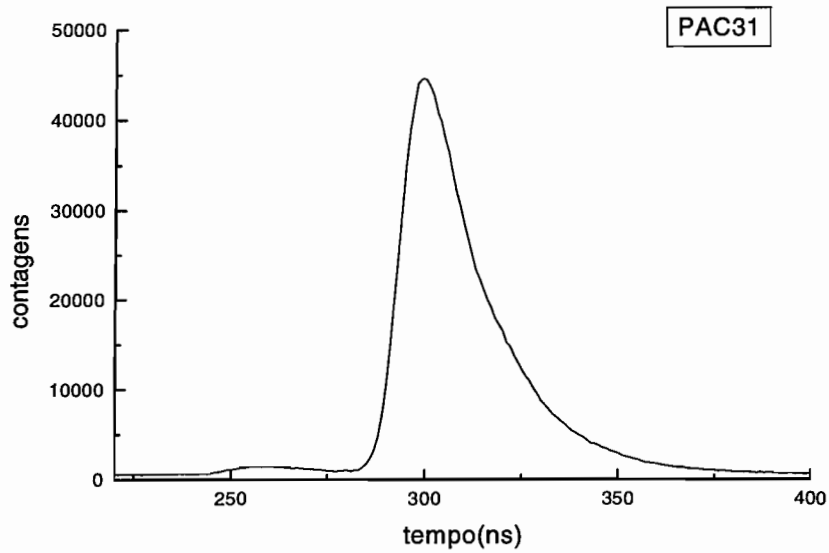
Figura 6.2 – Eletrônica de aquisição para medidas de coincidência em sistema multiparamétrico, mostrando, além das linhas lenta e rápida, o módulo multidetetor.

Para o controle da aquisição no sistema multidetetor e registro em arquivos de dados utilizamos o programa de computador MULTI [Ba00]. O sistema verifica as coincidências entre os sinais dentro do seu próprio critério e se este critério for obedecido então ele armazena o evento em forma de espectros do tipo fila. O Programa MULTI armazena para cada evento: uma "máscara" que informa os detetores que participaram da coincidência, as energias dos gamas detetados e o tempo em que essa deteção ocorreu. Para cada aproximadamente 300 mil eventos, é salvo em modo fila, um arquivo de dados.

6.4 – Espectros Obtidos

As várias filas de eventos gravadas em disco deverão ser filtradas a fim de se obterem os espectros de coincidência a 90° e 180°. Foi feito um pequeno programa que lê cada evento de um arquivo fila e se este corresponde a um evento válido para construção do nosso espectro, ele armazena-o. Seria considerado válido o evento que respeitasse a tabela

6.1. Posteriormente é feito um histograma desses eventos em relação à diferença de tempo dos gamas detetados, que então serão os espectros a serem analisados. A figura 5.3 mostra esses espectros.



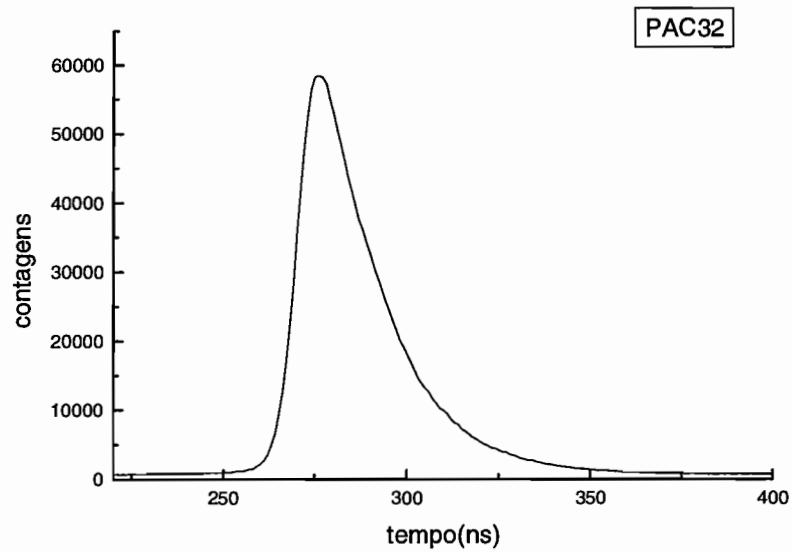


Figura 6.3 – Espectros de correlação angular perturbada de 180° e 90° respectivamente, em medidas de interação quadupolar de ^{181}Hf em háfnio metálico, medidos no sistema multiparamétrico

6.5 – Respostas Temporais

Como é muita baixa a resolução em tempo dos detetores de HPGe, devemos considerar um modelo que leve em conta a resposta temporal obtida por esses detetores nas medidas de coincidência. O isótopo de ^{181}Hf possui uma cascata 136/346 keV cujo nível intermediário possui meia vida de 39,5 ps. Essa cascata é separada o suficiente da cascata 133/482 keV do ^{181}Ta devido à resolução em energia dos detetores de HPGe. Utilizando o mesmo programa que selecionou os eventos dos espetros da figura 6.3 selecionamos os "prompts" de cada par de detetores. Como as energias das cascatas gamas consideradas para medida de PAC e "prompt" são muito próximas, podemos considerar que esses "prompts" correspondem à resposta temporal dos detetores nas medidas de correlação angular feitas. A figura 6.4 mostra as respostas temporais descritas acima.

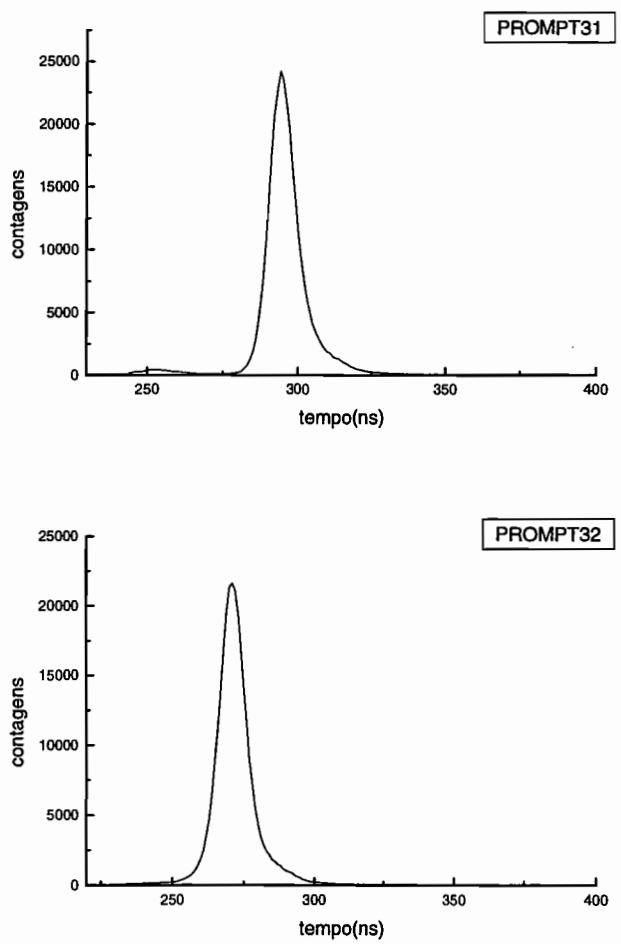


Figura 6.4 – Respostas temporais dos detetores à 180° e 90° respectivamente, nas medidas de HPGe.

6.6 – Análise Utilizada

Nessas medidas realizadas o valor de a_{44} não é desprezível. Dessa forma o espectro razão não irá carregar nenhuma informação relevante e nem mesmo sua forma poderá ser comparada com a da figura 5.11. Quando se olham os espectros da figura 6.3 aparentemente não há oscilações e pode-se chegar à falsa conclusão que o sistema detetor não possui resolução temporal suficiente para a deteção da correlação angular perturbada. Foi ajustada então, a função decaimento descrita em (3.16) convoluida com as respostas temporais descritas na seção 6.5, porém com a_{22} e a_{44} nulos, isto é, sem oscilações. Quando subtraímos o valor dos espectros dessa função sem oscilações e essa diferença é dividida pela função temos o gráfico da figura 6.5. Esse gráfico representa o resíduo do ajuste da função sem oscilações. Se o espectro não tivesse oscilações, os dados estariam dentro de uma flutuação estatística ao redor de 0, ou seja da linha horizontal colocada nesse gráfico da figura 6.5. Pode-se notar claramente o desvio de cada um dos espectros dessa linha horizontal.

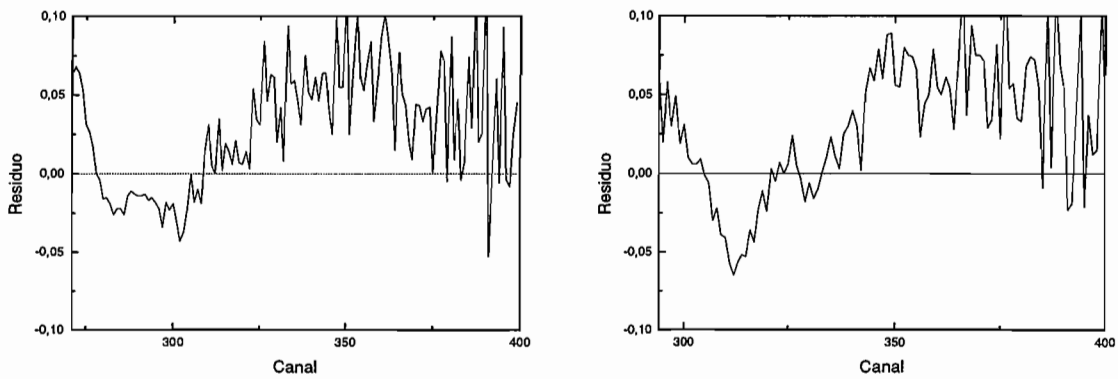


Figura 6.5 – Resíduo normalizado de ajuste de função decaimento sem oscilações de interação quadrupolar de ^{181}Hf em háfnio metálico medida em HPGe. O gráfico da esquerda se refere ao ajuste do espectro à 180° enquanto que o gráfico à direita se refere ao ajuste do espectro de 90°.

O ajuste simultâneo dos espectros por função com oscilações foi feito fixando os valores de ν_Q e η como descritos na seção 5.5.1. As figuras 6.6 e 6.7 mostram o ajuste dessa função para os espectros de 180° e 90° respectivamente.

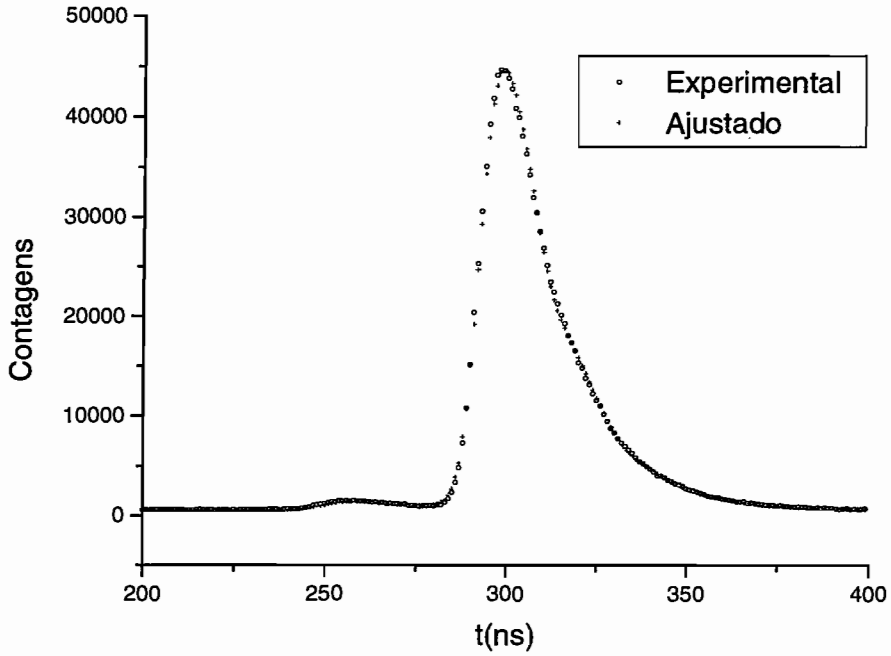


Figura 6.6 – Ajuste de espectro de 180° por função decaimento convoluida numericamente.

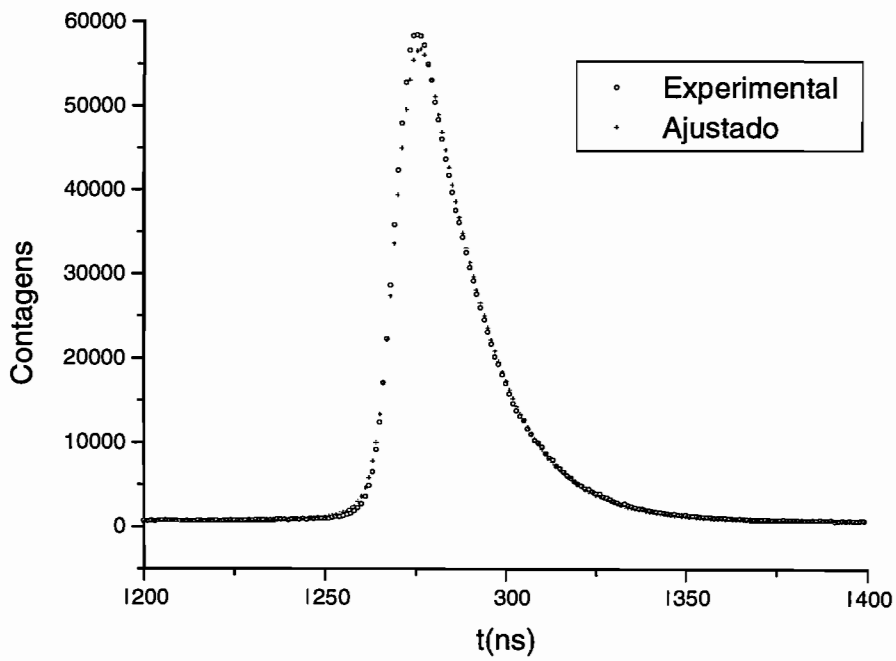


Figura 6.7 – Ajuste de espectro de 90° por função decaimento convoluida numericamente.

A tabela 6.1 mostra os valores dos parâmetros individuais no ajuste dos espectros de HPGe. Note que nesse caso foi necessário o ajuste de uma constante de decaimento a cada espectro.

	Espectro a 180°	Espectro à 90°
A	91490(260)	104620(320)
B	576(3)	697(3)
t_0 (canal)	293,702(24)	270,961(21)
a_{22}	-0,363(12)	-0,116(30)
a_{44}	-0,210(7)	-0,085(22)
λ (canal^{-1})	0,06861(12)	0,06723(10)

Tabela 6.1 - Valores dos parâmetros individuais ajustados nos espectros de 180° e 90° para função decaimento representada nas figuras 6.6 e 6.7.

O valor do qui-quadrado desse ajuste foi de 6587 com 412 graus de liberdade. Quando deixamos que os parâmetros de interação sejam determinados pelo método dos mínimos quadrados os valores obtidos para eles são totalmente incoerentes, sem fazer com que o valor de qui-quadrado diminua sensivelmente. Isso mostra que apesar da obtenção de espectros de correlação angular perturbada com detetores de HPGe, a baixa resolução temporal desses detetores ainda não permite que possamos obter resultados satisfatórios com esse arranjo experimental.

Capítulo 7

Discussão

7.1 – Espectro Razão Rigoroso

O espectro razão citado na seção 4.2.1 é construído basicamente após a obtenção dos valores de tempo inicial e fundo de cada espectro individual. No ajuste simultâneo esses parâmetros podem ser obtidos com considerável precisão, como pode ser notado nas tabelas 5.2 e 5.8. Dessa forma podemos obter o espectro razão depois do ajuste simultâneo onde podemos também determinar os parâmetros de interação, sendo que na análise convencional só seria possível com o espectro razão.

O ajuste simultâneo pode portanto auxiliar no ajuste do espectro razão utilizado no método convencional. Determinam-se os valores de tempo inicial e fundo de maneira simples, e cria-se o espectro razão e seu respectivo espectro de freqüências a fim de se estimar os parâmetros de interação. Com tal estimativa podemos realizar um ajuste simultâneo para a completa determinação dos valores de tempo inicial e fundo, com o qual podemos construir um espectro razão mais preciso que o anterior.

Como o ajuste simultâneo obtém parâmetros relativos à eficiência como os valores de a_{22} e A, podemos também através deles compensar outras diferenças nos espectros individuais. Para a construção desse espectro razão posterior, sincronizamos os espectros individuais e subtraímos o fundo da mesma forma que se faz na seção 4.2.1. Então divide-se cada espectro por seu respectivo A e multiplica-se pela média de todos os A's, para que os espectros tenham a mesma amplitude. A seguir ordenamos os espectros a 90° e 180°

quanto aos seus a_{22}'s para compensá-los. Então criamos vários espectros razão com dois espectros de 90° e um de 180° cujos valores de a_{22} são próximos. Cada espectro razão é normalizado ao a_{22} médio. Posteriormente somamos cada espectro razão parcial gerando assim o nosso espectro razão rigoroso.

Como exemplo foi criado um espectro razão rigoroso depois do ajuste simultâneo para a interação quadrupolar em cádmio, seção 5.5.2. Tal espectro razão não se distinguiu visualmente do espectro da figura 4.1, da mesma forma que seu respectivo espectro de fourier para o da figura 4.2. A diferença entre os dois espectros razão foi dividida pelo valor médio do espectro, ou seja:

$$D(t) = \frac{{}^{rigoroso}(t) - {}^{convencional}(t)}{0{,}04} \tag{7.1}$$

e está mostrada no gráfico da figura 7.1 onde pode-se notar claramente uma freqüência de oscilação de aproximadamente 250 Mhz. Essa freqüência corresponde à freqüência de quadrupolo dessa amostra mostrando que os espetros razão são diferentes apenas em amplitude.

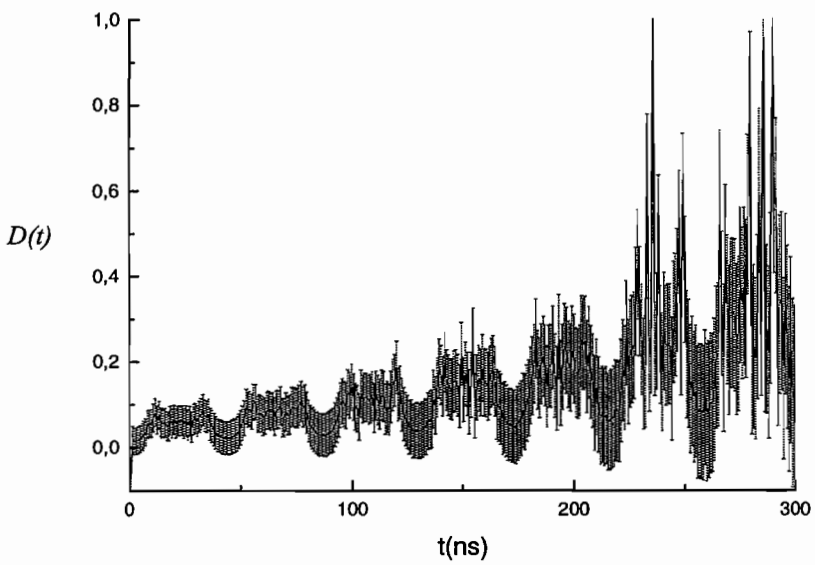


Figura 7.1: Diferença entre espectro razão convencional e rigoroso dividido pelo valor médio desses espectros na interação quadrupolar em cádmio.

7.2 – Correlação entre parâmetros

O resultado do ajuste simultâneo qualquer que seja o modelo utilizado fornece como resultado, além dos valores dos parâmetros ajustados e suas incertezas, uma matriz de covariância e correlação desses parâmetros. Como exemplo escolhemos o ajuste simultâneo da interação em óxido de háfnio descrita na seção 5.2 cujo modelo possui parâmetros listados na tabela 5.1. Para esse ajuste tomamos alguns pedaços da matriz de covariância que vamos descrever a seguir.

A tabela 7.1 mostra a covariância e a correlação entre os parâmetros individuais da primeira linha da tabela 5.2. Essa matriz tem como diagonal principal a variância do parâmetro, acima dessa diagonal os valores de correlação e abaixo dessa diagonal os valores de covariância. O que chama mais a atenção é a forte correlação entre os valores de A e t_0 que decorre de ajustar apenas canais correspondentes a tempos bem maiores que t_0.

	A	B	t_0
A	$1{,}11.10^{+5}$	-0,107	-0,957
B	-363	105	0,0268
t_0	-29,6	0,0256	0,00865

tabela 7.1 – Matriz de correlação e covariância entre os parâmetros listados na primeira linha da tabela 5.2. O triângulo acima da diagonal representa a correlação enquanto que o triângulo abaixo representa a covariância.

A tabela 7.2 apresenta a covariância e a correlação, da mesma forma que apresentadas na tabela 7.1, para os parâmetros de interação listados na tabela 5.1, exceto para f_0. Devido ao vínculo imposto às frações de cada sítio, a correlação entre f_0 e f_1 da tabela 5.1 é de –1. Esse valor de correlação implica que as covariâncias entre f_0 e os outros parâmetros sejam calculados pela covariância entre f_1 e esses parâmetros dadas por:

$$\mathrm{cov}(f_0, p) = -\mathrm{cov}(f_1, p) \tag{7.2}$$

onde p é cada um dos parâmetros. Pela tabela 7.2 pode-se notar também que ω_Q e η tem correlação relevante devido às freqüências de oscilação serem calculadas a partir desses parâmetros.

	a_{22}	ω_Q	η	δ	f_1
a_{22}	$5{,}00.10^{-7}$	0,0614	-0,117	-0,664	-0,371
ω_Q	$1{,}57.10^{-9}$	$1{,}31.10^{-9}$	-0,566	-0,0565	0,435
η	$-1{,}32.10^{-7}$	$-3{,}26.10^{-8}$	$2{,}53.10^{-6}$	0,0708	-0,159
δ	$-3{,}46.10^{-7}$	$-1{,}51.10^{-9}$	$8{,}30.10^{-8}$	$5{,}42.10^{-7}$	-0,270
f_1	0,0773	$6{,}02.10^{-8}$	$-1{,}66.10^{-6}$	$-1{,}38.10^{-6}$	$4{,}81.10^{-5}$

tabela 7.2 – Matriz de correlação e covariância entre os parâmetros listados na tabela 5.1. O triângulo acima da diagonal representa a covariância enquanto que o triângulo abaixo representa a covariância.

Já na tabela 7.3 apresentamos a matriz de correlação entre os parâmetros de interação e os parâmetros individuais. Note que t_0 é correlacionado aos valores de ω_Q e η, pois na função de perturbação as freqüências estão num produto direto com o valor do tempo inicial. Por esse mesmo motivo é que temos a forte correlação entre os valores de A e a_{22} e os vários f's.

	a_{22}	ω_Q	η	δ	f_1
A	-0,992	-0,0756	0,0301	0,00248	0,989
B	0,00656	0,0199	-0,0136	-0,00368	-0,00646
t_0	0,00203	0,688	-0,257	-0,0205	0,000712

tabela 7.3 – Matriz de correlação entre os parâmetros dados nas tabelas 7.2 e 7.4.

7.3 – Múltiplos Deltas

Como foi notado pela tabela 5.10, o ajuste simultâneo em que consideramos múltiplos deltas melhorou sensivelmente o valor do qui-quadrado quando comparado com o ajuste de um único delta. Apesar disso, o ajuste de múltiplos deltas não é utilizado pelo método convencional apesar de referências como [Fo73] considerarem que não existe um valor único para esse parâmetro. Utilizando os ajustes de um único delta e múltiplos deltas criamos o gráfico da figura 7.2 onde a função $-a_{22}G_{22}(t)$ pode ser comparada nos dois casos sobre o espectro razão.

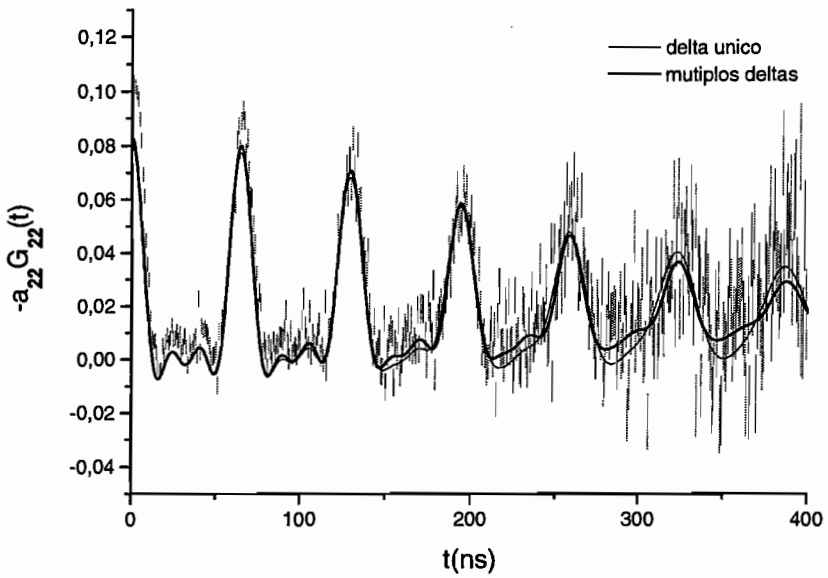


figura 7.2 – Espectro Razão de interação quadrupolar em ^{111}Cd em $HfV_2H_{1,78}$. As curvas desenhadas se referem aos parâmetros listados na tabela 5.10

Como pode-se notar a diferença entre as funções torna-se relevante para tempos grandes quando a correlação entre os dados é grande. Assim no ajuste de espectros razão seria necessário determinar essas covariâncias e levá-las em conta para determinar esses parâmetros o que pode ser ainda mais trabalhoso que o método apresentado aqui.

Uma interpretação física dos múltiplos deltas é dada por Zmora et al. [Zm73] em que imperfeições no cristal podem gerar uma distribuição no parâmetro de assimetria refletida em diferentes deltas.

7.4 – Resolução Temporal Grande

Foram feitas simulações com o intuito de testar a convolução numérica através de uma resposta temporal gaussiana e posterior comparação com a função dada na seção 3.6. Por essas simulações também conseguimos determinar o limite de resolução ao qual um sistema detetor pode realizar boas medidas de correlação angular e o quanto esta resolução degrada o espectro de tempo.

Como primeiro exemplo simulamos um espectro de interação quadrupolar em ^{111}Cd em $HfV_2H_{1,78}$ que está descrito na seção 5.3. As simulações testam o efeito da degradação do espectro a 180° da figura 5.4, ao convoluir a função decaimento com respostas temporais gaussianas de várias larguras. A figura 7.3 mostra essas simulações para as diversas larguras onde utilizamos como parâmetros individuais os listados na tabela 5.8 e como parâmetros de interação os listados na tabela 5.7.

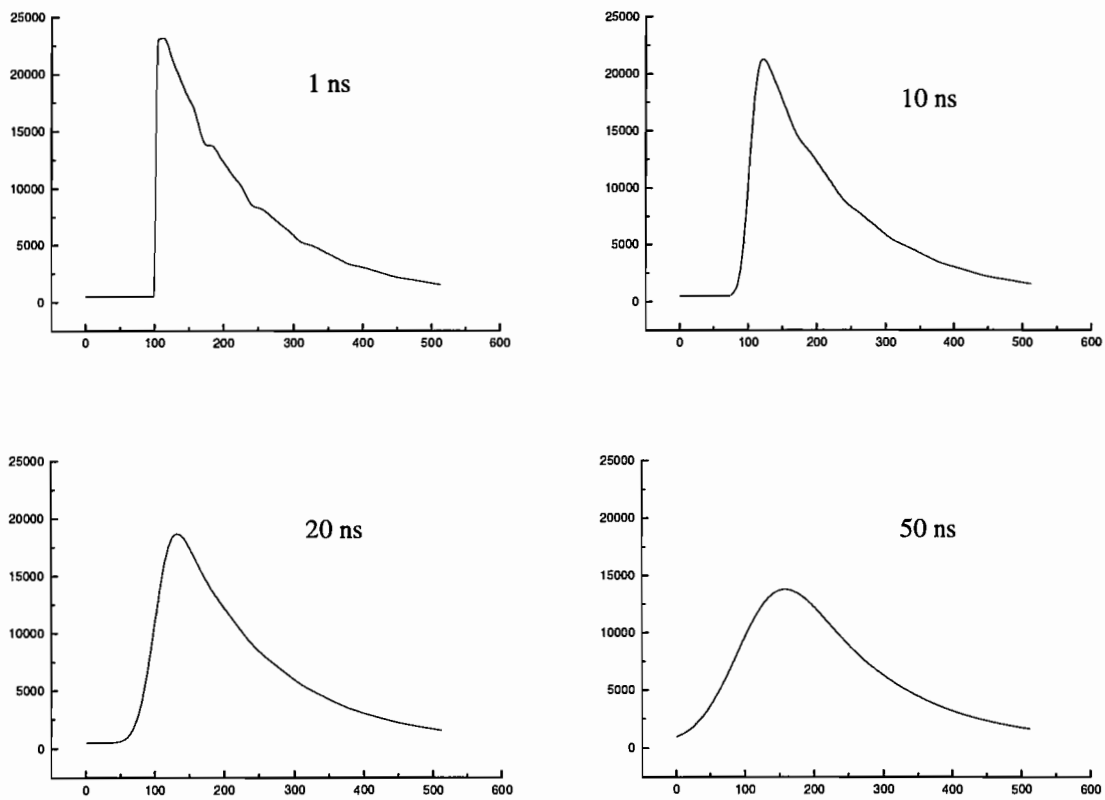


Figura 7.3: Simulações de espectros de interação quadrupolar em interação quadrupolar em ^{111}Cd em $HfV_2H_{1,78}$ com detetores de resolução temporal gaussiana de largura em ns indicada.

A seguir simulamos um espectro a 180° de interação quadrupolar de ^{181}Hf em háfnio metálico pois realizamos tal medida com detetores de HPGe que possuem grande resolução temporal. A figura 7.4 mostra essas simulações onde utilizamos os parâmetros de interação dados na seção 5.5.1 e os parâmetros individuais dados na tabela 6.1 para as diversas larguras.

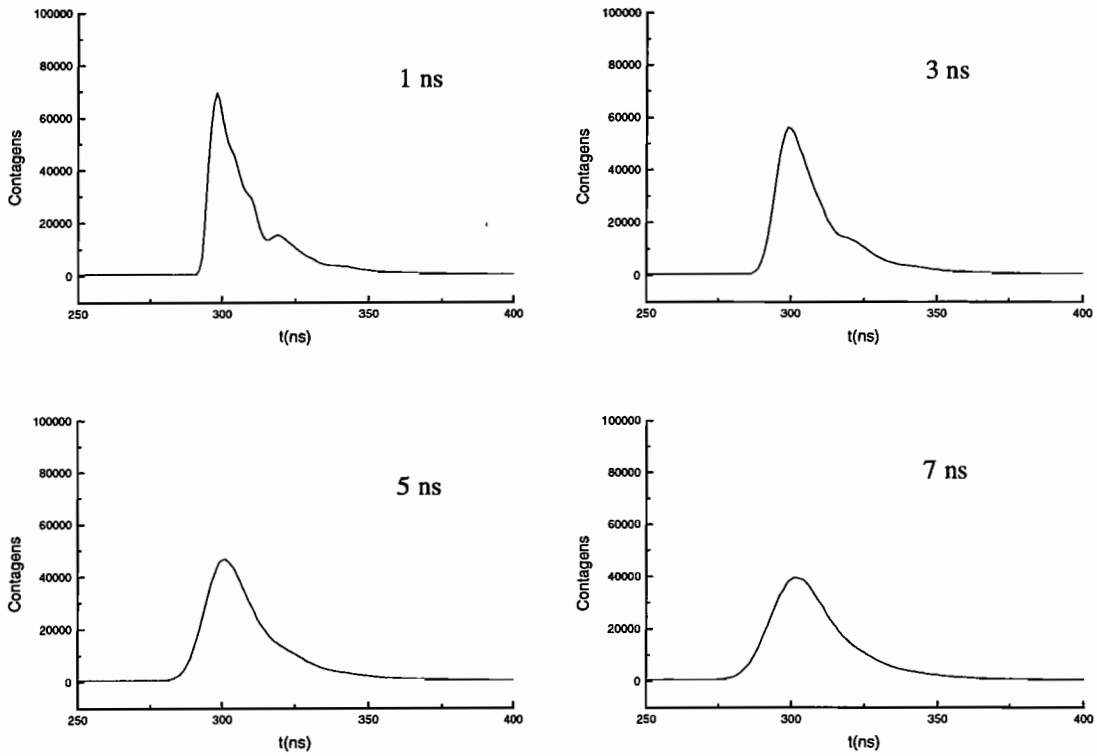


Figura 7.4: Simulações de espectros de interação quadrupolar em interação quadrupolar em ^{181}Hf em háfnio metálico com detetores de resolução temporal gaussiana de largura em ns indicada.

Note que à medida que a resolução temporal aumenta temos um alargamento do espectro de tempo, porém uma diminuição de sua amplitude, visto que sua área se conserva. Para a interação em ^{111}Cd, cuja meia vida do estado intermediário é 85 ns, uma resolução temporal de 10 ns não é capaz de degradar o espectro enquanto que tal resolução seria totalmente inviável na medida de interação em ^{181}Hf pois a meia vida de seu estado intermediário é de aproximadamente 11 ns. Por esse motivo as medidas com detetores de HPGe não foram satisfatórias pois pode-se notar pela figura 6.3, que a largura da resposta

temporal gerada por esses detetores foi de aproximadamente 7 ns. Medidas de correlação angular perturbada com interação em ^{111}Cd possivelmente dariam resultados mais satisfatórios.

7.5 – Eficiência dos Detetores

Através de análise simultânea de espectros é possível determinar a eficiência dos detetores para cada gama detetado. Para isso basta escrever que cada parâmetro A da equação 3.2 esteja relacionado com o espectro (ij), onde i é o detetor que deu a partida e j o detetor que deu a parada por:

$$A_{ij} = \alpha(\theta) \cdot \varepsilon_i(\gamma_1) \cdot \varepsilon_j(\gamma_2)$$

onde os ε's são as eficiências para os gamas γ_1 e γ_2 respectivamente os gamas da cascata com γ_1 precedendo γ_2. O fator $\alpha(\theta)$ está relacionado com a correlação angular para esse ângulo, a correção de ângulo sólido e a atividade radiativa da amostra analisada.

No arranjo convencional utilizamos quatro detetores separados por ângulos de 90° cada um dando tanto a partida quanto a parada, o que gera 12 espectros. Dessa forma teremos oito eficiências a serem determinadas, bem como dois fatores $\alpha(\theta)$ um para 180° e outro para 90°, gerando um conjunto de 10 parâmetros a serem determinados. Como não conhecemos o número de decaimentos da fonte radiativa, somente podemos calcular as eficiências relativas, ou seja, uma delas será fixa em 1, e as outras serão calculadas em relação a esse valor. Assim podemos também reduzir o número de parâmetros ao calcular a razão dos α's.

Como os vários valores de A's vieram de um ajuste, eles vêm acompanhados de uma matriz de covariância. Dessa forma, é muita mais viável realizar um ajuste que considere tal covariância para a completa determinação dos valores de eficiência e sua incerteza. A tabela 7.3 mostra os valores de eficiência para cada detetor quando medido em cada energia do ^{111}Cd em $HfV_2H_{1,78}$ cujos valores dos parâmetros A estão descritos na tabela 5.8.

$\varepsilon_1(171keV)$	1
$\varepsilon_1(245keV)$	1,0360(27)
$\varepsilon_2(171keV)$	1,0605(24)
$\varepsilon_2(245keV)$	1,0555(24)
$\varepsilon_3(171keV)$	1,0785(26)
$\varepsilon_3(245keV)$	1,0185(18)
$\varepsilon_4(171keV)$	0,9902(22)
$\varepsilon_4(245keV)$	0,9706(23)

Tabela 7.3 – Valores de eficiência relativa para gamas do ^{111}Cd medidos em amostra de $HfV_2H_{1,78}$

Capítulo 8

Conclusão

Os parâmetros determinados nesta análise que considera corretamente as incertezas dos dados, de maneira que as incertezas dos parâmetros obtidos são estimadas corretamente, abre a possibilidade de realizar medidas curtas ou determinar o limite superior da fração de sondas de provas localizadas em sítios diferentes dos observados.

O método de análise desse trabalho é independente da sincronia e da determinação inicial dos valores de fundo de cada espectro diferentemente do método convencional, e a torna mais precisa pois a determinação desses parâmetros possui grande incerteza em certos casos.

Além disso, com esse tipo de análise pudemos obter parâmetros que não podem ser obtidos pelo método convencional, particularmente o valor de a_{44} e atenuações diferentes em cada freqüência. Essas atenuações diferentes podem estar relacionadas a características estruturais do material, embora a relação não seja bem estabelecida pois esta é a primeira vez que se relatam valores diferentes para δ. As atenuações diferentes para freqüências diferentes modificam apenas a parte do espectro corresponde a tempos da ordem de algumas meias vidas do estado intermediário, região em que as correlações estatísticas são elevadas e ignorá-las impede a observação dessas diferenças. Assim, a determinação destes parâmetros está fora do alcance de análise convencional.

Medidas de PAC utilizando detetores de HPGe foram realizadas e analisadas mostrando ser possível a obtenção de resultados porém não com boa precisão por razões instrumentais, particularmente ligadas à reduzida eficiência dos detetores de HPGe e sua baixa resolução temporal.

O espectro de freqüência proveniente de transformada de fourier do espectro razão, quando calculadas com barras de erros auxilia tanto na observação de sítios com correlação constante como é fundamental na estimativa de parâmetros para sítios com baixa ocupação.

A criação de programa orientado a objeto é fundamental quando se ajustam muitos tipos de funções que representam diferentes modelos abstratos a uma quantidade grande de dados. Tipos de dados computacionais que são construídos e testados separadamente garantem não só a reutilização de grande parte do código como também a eficiência e confiabilidade do mesmo.

Apêndice A

Método dos Mínimos Quadrados

A.1-Funções Lineares

Suponha que uma grandeza física possa ser representada pela função $f(\vec{x}, \vec{A})$, onde $\vec{x}$ representa um vetor com a dimensão que se queira e f é uma função de m parâmetros representados pelo vetor $\vec{A}$. Ao fazer N medidas dessa grandeza y gostaríamos que:

$$y_i \cong f(\vec{x}_i, \vec{A}_0), \quad i=1, 2, \ldots N, \tag{A.1}$$

onde $\vec{A}_0 = (a_1, a_2, \ldots, a_n)$ é o valor verdadeiro do vetor de parâmetros. Os valores experimentais não coincidem exatamente com os da função considerada pois estes apresentam erros experimentais desconhecidos a princípio.

Se a função for linear nos parâmetros poderemos representar a equação (A.1) por:

$$y_i \cong \sum_{k=1}^{m} {}_{k0} h_k(x_i) \ . \tag{A.2}$$

Para simplificar a notação e facilitar o cálculo computacional, podemos reescrever a relação A.2 matricialmente como:

$$\begin{pmatrix} y_1 \\ y_2 \\ \vdots \\ \vdots \\ y_N \end{pmatrix} \cong \begin{pmatrix} h_1(x_1) & h_2(x_1) & \cdots & h_m(x_1) \\ h_1(x_2) & h_2(x_2) & & h_m(x_2) \\ \vdots & & & \\ \vdots & & & \\ h_1(x_N) & h_2(x_N) & & h_m(x_N) \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} a_{10} \\ a_{20} \\ \vdots \\ a_{m0} \end{pmatrix} \tag{A.3}$$

ou ainda

$$\vec{y} \cong \mathbf{X}\vec{A}_0 \ , \tag{A.4}$$

onde $\vec{y}$ é um vetor de dimensão ($N \times 1$), $\vec{A}_0$ tem dimensão ($m \times 1$) e $\mathbf{X}$ é a chamada matriz de planejamento ($N \times m$). Esta matriz, cujos elementos são definidos por

$$X_{ij} = \left. \frac{\partial f(x_i, \vec{A})}{\partial a_j} \right|_{\vec{A}_0} = h_j(x_i) \, , \tag{A.5}$$

não depende dos valores dos parâmetros verdadeiros, $\vec{A}_0$, nem dos dados experimentais, e contém toda a dependência em $\vec{x}$ do modelo, ou seja, da função a ser ajustada. Depois de definida a matriz $\mathbf{X}$ o cálculo da função f pode ser feito por:

$$f(\vec{x}, \vec{A}) = \mathbf{X}.\vec{A} \tag{A.6}$$

A diferença entre o dado experimental e o valor verdadeiro é o erro experimental ε_i de cada medida realizada. O conjunto das variâncias e covariâncias permite constituir a matriz de variâncias, V, que está intimamente ligada aos vários ε_i's, e é dada por:

$$\mathbf{V} = \begin{bmatrix} \sigma_1^{\,2} & \mathrm{cov}(y_1, y_2) & \cdots & \mathrm{cov}(y_1, y_N) \\ \mathrm{cov}(y_1, y_2) & \sigma_2^{\,2} & & \\ \vdots & & \ddots & \\ \mathrm{cov}(y_1, y_N) & \mathrm{cov}(y_2, y_N) & & \sigma_N^{\,2} \end{bmatrix} \tag{A.7}$$

A melhor estimativa para o vetor de parâmetros $\vec{A}_0$ é dada por:

$$\hat{\vec{A}} = \left(\mathbf{X}^t\mathbf{V}^{-1}\mathbf{X}\right)^{-1}\mathbf{X}^t\mathbf{V}^{-1}\vec{y} \tag{A.8}$$

com sua respectiva matriz de covariância dada por:

$$\mathbf{V}_{\hat{\vec{A}}} = \left(\mathbf{X}^t\mathbf{V}^{-1}\mathbf{X}\right)^{-1} \tag{A.9}$$

Esse método é chamado de método dos mínimos quadrados pela estimativa $\hat{\vec{A}}$ minimizar a função quadrática dado por:

$$\chi^2 = (\vec{y} - \vec{f})^t V^{-1} (\vec{y} - \vec{f}) \tag{A.10}$$

cujo valor calculado com as estimativas pode ser utilizado para testar a qualidade do ajuste e tem uma função densidade de probabilidade de qui-quadrado com $N - m$ graus de liberdade se a função densidade de probabilidade conjunta dos $\vec{y}$ for uma gaussiana N-dimensional. O valor do qui-quadrado reduzido pode ser obtido dividindo-se o valor do qui-quadrado pelo número de graus de liberdade: quanto mais próximo for esse valor de 1, mais preciso terá sido o ajuste.

A.2 - Funções Não Lineares

Em algumas aplicações práticas os dados experimentais só podem ser ajustados por uma função não linear nos parâmetros. Nesse caso é necessária uma estimativa inicial $\vec{A}'$

do vetor de parâmetros $\vec{A}$ em torno da qual expandimos a função dos parâmetros que compõem esse vetor. Ao expandir a função dada em A.1, em primeira ordem em torno da estimativa $\vec{A}'$, temos:

$$y_i \cong f(x_i, \vec{A}') + \frac{\partial f_i}{\partial a_1}\Delta a_1 + \frac{\partial f_i}{\partial a_2}\Delta a_2 + \ldots + \frac{\partial f_i}{\partial a_m}\Delta a_m \tag{A.11}$$

onde as derivadas parciais são calculadas nos valores iniciais $\vec{A}'$. Quando a função f é complicada em relação aos parâmetros é mais lucrativo o uso de derivadas numéricas que aproximam o valor exato desta derivada por:

$$\frac{\partial f_i}{\partial a_v} = \frac{f(x_i, \vec{A} + \Delta\vec{A}) - f(x_i, \vec{A})}{\Delta a_v} \tag{A.12}$$

Ao definir:

$$y_i' = y_i - f(x_i, A') \cong \frac{\partial f_i}{\partial a_1}\Delta a_1 + \frac{\partial f_i}{\partial a_2}\Delta a_2 + \ldots + \frac{\partial f_i}{\partial a_m}\Delta a_m \tag{A.13}$$

podemos escrever matricialmente o vetor $\vec{y}'$ na forma:

$$\begin{pmatrix} y_1' \\ y_2' \\ \vdots \\ \vdots \\ y_N' \end{pmatrix} \cong \begin{pmatrix} h_1(x_1) & h_2(x_1) & \cdots & h_m(x_1) \\ h_1(x_2) & h_2(x_2) & & h_m(x_2) \\ \vdots & & & \\ \vdots & & & \\ h_1(x_N) & h_2(x_N) & & h_m(x_N) \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \Delta a_1 \\ \Delta a_2 \\ \vdots \\ \Delta a_m \end{pmatrix} \tag{A.14}$$

ou ainda

$$\vec{y}' \cong \mathbf{X} \cdot \Delta\vec{A} \tag{A.15}$$

sendo que cada elemento da matriz de planejamento **X** continua a ser dado pela relação (A.5), sendo que as derivadas são calculadas nos valores iniciais $\vec{A}'$. Dessa forma recaímos no problema do ajuste linear, onde utilizamos a equação (A.8) apenas trocando $\vec{y}$ por $\vec{y}'$ e $\hat{\vec{A}}$ por $\Delta\vec{A}$. Essa solução é interativa, ou seja, a cada iteração obtém-se um valor mais próximo de $\vec{A}$ que será dado por $A_+ = A' + \Delta A$ que é colocado como novo valor de $\vec{A}'$. O final desse processo deve se dar quando a diferença entre o valor de χ^2 calculado em uma iteração e na posterior seja menor que um limite imposto.

O método descrito acima comporta-se mal, tanto por ser pouco tolerante com as estimativas quanto por exigir muitas iterações para convergir. D.W. Marquardt [Ma63] sugere outro algoritmo, que se comporta muito melhor, ao qual denominamos de método de Gauss-Marquardt. Nesse método, basicamente o que se faz é atenuar as variações dos parâmetros, aumentando-se alguns coeficientes do sistema linear através da variável λ ao qual chamamos coeficiente de amortecimento. Para isso construímos uma matriz auxiliar **M**(λ) dada por:

$$M(\lambda)_{ij} = (1 + \lambda \cdot \delta_{ij}) \cdot (\mathbf{X}^t \cdot \mathbf{V}^{-1} \cdot \mathbf{X})_{ij} \tag{A.16}$$

Começa-se com um valor de λ pequeno e define-se uma escala de valores para λ, por exemplo, 0; 0,01; 0,1; 0,3; 1; 3; 10. Assim o vetor $\Delta\vec{A}$ será calculado por:

$$\Delta\vec{A} = M(\lambda)^{-1} \cdot \mathbf{X}^t \cdot \mathbf{V}^{-1} \cdot \vec{y}' \tag{A.17}$$

Ao obter $\vec{A}_+ = \vec{A}' + \Delta\vec{A}$ e o novo vetor $y'_+ = f_i(x_i, \vec{A}_+)$, comparam-se os valor do qui-quadrado para a estimativa inicial $\vec{A}'$ e para o resultado $\vec{A}_+$, dados respectivamente por Q' e Q_+ e calculados por

$$Q' = \vec{y}'\mathbf{V}^{-1}\vec{y}' \text{ e } Q_+ = \vec{y}'_+\mathbf{V}^{-1}\vec{y}'_+ \tag{A.18}$$

Daí em diante deve-se tomar decisões antes do próximo passo. Se $Q_+ > Q'$ o novo valor de $\vec{A}_+$ não é aceito e aumenta-se λ na sua escala para então reconstruir a matriz **M** e calcular o novo $\Delta\vec{A}$. Mas se $Q_+ < Q'$ então o valor de $\vec{A}_+$ é aceito como melhor estimativa de $\vec{A}$ e é verificado se a diferença entre Q' e Q_+ é menor que o limite imposto. Se for, o processo convergiu, caso contrário, diminui-se λ na sua escala e reinicia-se o processo montando a matriz M e recalculando $\Delta\vec{A}$. Caso não seja possível diminuir o valor de Q_+ para valores razoáveis de λ, (100, no máximo), é inútil prosseguir aumentando indefinidamente o valor de λ, correspondendo a uma divergência do processo. Nesses casos, tudo o que é possível fazer é tentar de novo com outras estimativas iniciais ou tentar reduzir o número de parâmetros livres do ajuste.

Apêndice B

Documentação Computacional

A tarefa de ajustar funções a dados experimentais é extremamente comum. Tanto é, que qualquer planilha eletrônica realiza ajustes simples utilizando as funções mais conhecidas como polinômio, exponencial, etc. Porém, quando a função é complicada e a quantidade de dados torna-se grande, quase sempre é necessária a construção de um programa de computação que faça a análise desses dados. Se ainda esses dados forem correlacionados, é muito importante que esse programa seja muito bem planejado afim de que o tempo de computação não seja grande demais. Dessa forma a orientação do programa a objetos decorre da necessidade de desenvolvimento gradual do programa sendo que cada classe a ser construída requer um exaustivo teste. O programa de ajuste simultâneo dos espectros de correlação angular perturbada teve 7 grandes módulos descritos a seguir.

B.1 - Módulo Gráfico

Nesse módulo estão as classes para visualização dos espectros e controle de menus e caixas de diálogo. Como base dessas classes foi usada a OWL (Object Windows Library) como biblioteca visual, pois o sistema operacional escolhido foi o Windows. A figura B.1 mostra um diagrama de classes utilizado nesse módulo, sendo que a classe base dessa biblioteca é TWindow.

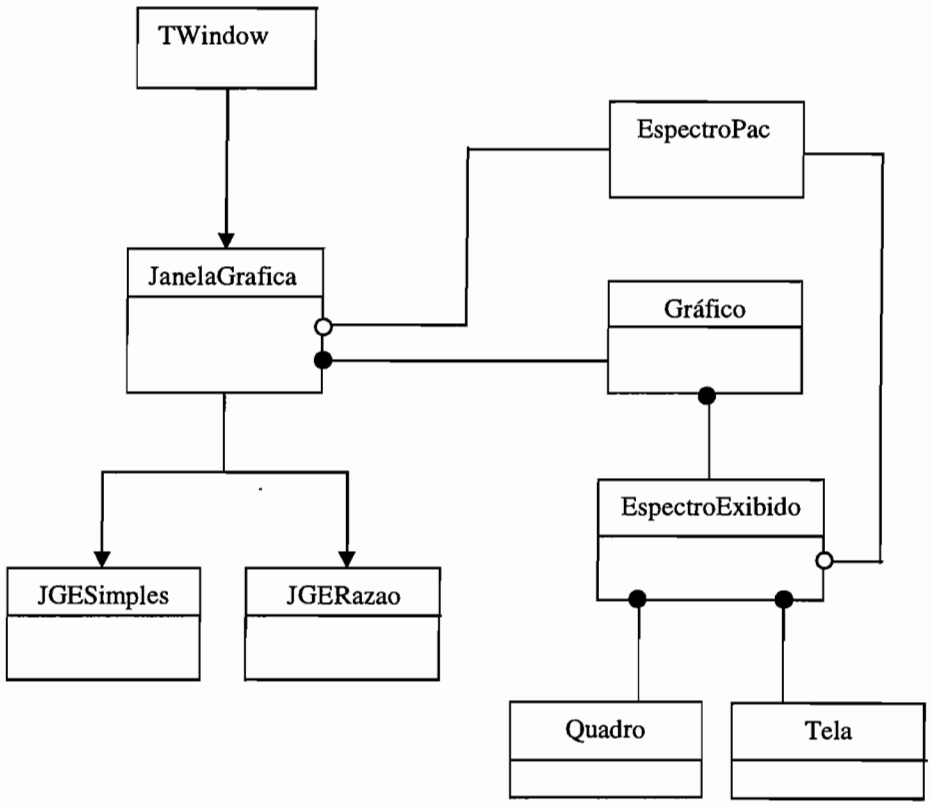


Figura B.1 – Diagrama de Blocos contendo as principais classes utilizadas no modulo gráfico, sendo que a classe TWindow pertence a biblioteca OWL. O diagrama não contem operações de cada classe.

JanelaGrafica é uma classe que desenha espectros utilizando como objeto um Gráfico que possui objetos que auxiliam no desenho como EspectroExibido, Quadro e Tela. Teremos uma JanelaGrafica a cada espectro, sendo que as particularidades do espectro simples e do espectro razão estarão contidas em classes filhas chamadas de JGESimples e JGERazao.

B.2 – Módulo Álgebra

Os diagramas da figura B.2 representam as diferentes classes de matrizes utilizadas no método dos mínimos quadrados e cálculos em geral. Os objetos de mais alto nível pertencem às classes MatrizSDP e MatrizPlanejamento, que representam, respectivamente, a matriz de planejamento utilizada no método dos mínimos quadrados e uma matriz

simétrica definida positiva tal como a matriz de covariância entre dados experimentais. Na base, está uma meta-classe, VetorAutomatico, que é simplesmente um *array* que ocupa memória alocada pelo construtor e liberada pelo destrutor, facilitando o gerenciamento de memória.

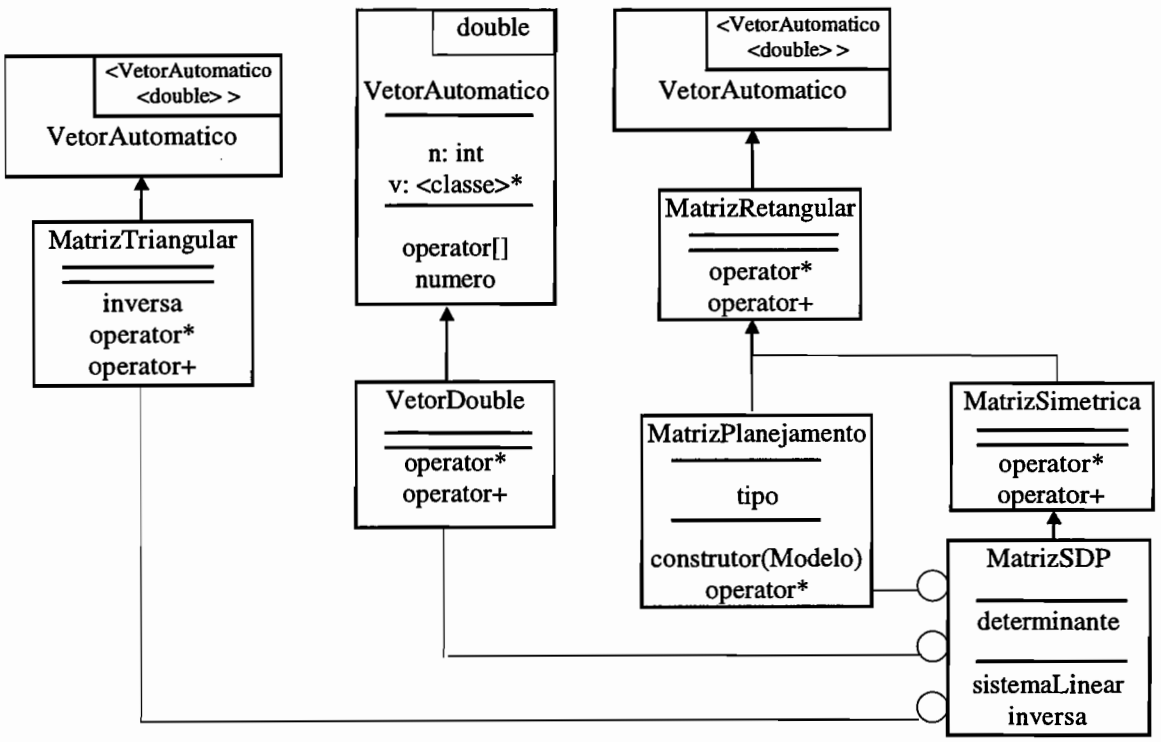


Figura B.2 - Representação esquemática das classes utilizadas para representar os vetores e matrizes e efetuar sua álgebra. Muitas operações não estão mencionadas para simplificar o diagrama.

B.3 – Módulo Dado

Um dado experimental é representado por um par de valores: estimativa de ponto e desvio padrão. Já um vetor de dados precisa conter a matriz de covariância. Os objetos que representam os vetores de dados utilizam a mesma meta-classe de base dos vetores e matrizes em geral. Para a utilização em ajustes, é preciso incluir a variável aleatória χ^2 que também é representada por um objeto independente. A figura B.3 apresenta a estrutura dessas classes.

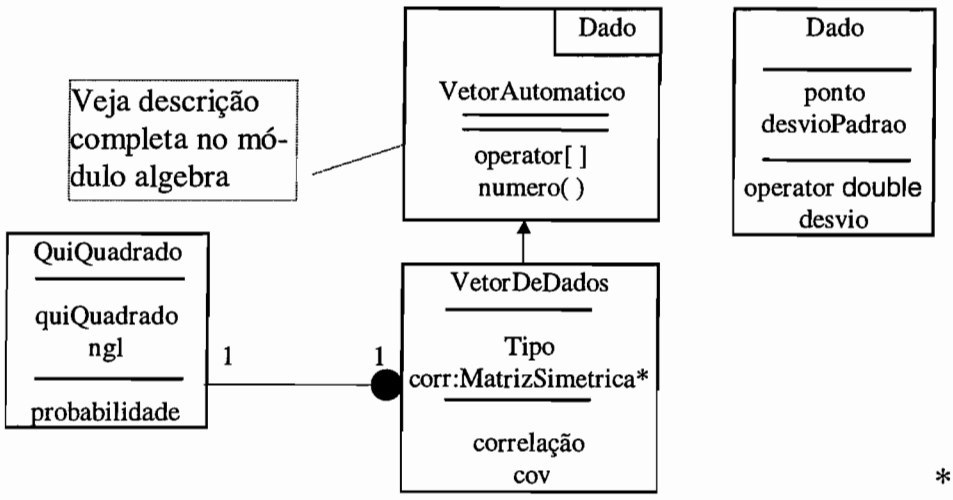


Figura B.3 - Representação das classes envolvidas na definição dos objetos que representam vetores de dados experimentais.

B.4 – Módulo Modelo

Como mostrado no capítulo 4, podemos ajustar vários tipos de modelos aos espectros de PAC, sempre utilizando a mesma função decaimento e trocando apenas os parâmetros a serem ajustados. Para isso foi criada uma classe chamada ModeloUnico que basicamente contém um objeto chamado de AmostraObservada, que contem o conjunto de parâmetros a serem usados na função contida em modelo único. A AmostraObservada é um compósito do qual os vários tipos de parâmetros são folhas, todas derivadas de uma classe base chamada de Parâmetro. Um diagrama desse módulo explicitando o compósito está descrito na figura B.4.

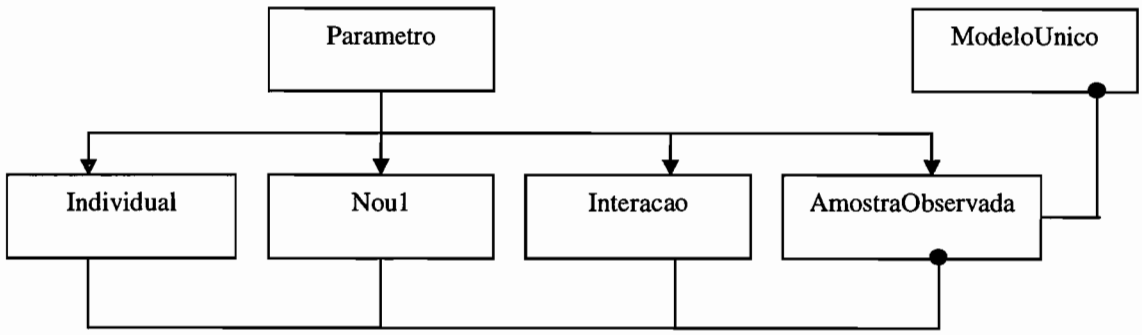


Figura B.4 – Diagrama de Blocos contendo as classes utilizadas no modulo modelo. Em especial podemos notar a propriedade do compósito AmostraObservada ser derivada de Parametro e conter outros derivados.

Parâmetros individuais de cada espetro estão contidos na classe Individual, sendo que os parâmetros de interação estão contidos na classe interação. Parâmetros que podem ser únicos ou múltiplos, como por exemplo o valor de a_{22} estão contidos na classe Nou1.

B.5 – Módulo Função

O modelo de ajuste é determinado pela função matemática que o descreve, que é representada por um objeto do tipo FunçãoModelo. Para o ajuste é necessário calcular derivadas e, com freqüência, deseja-se interpolar valores, o que é realizado pelas funções que tomam VetoresDeDados como parâmetros. A prática do ajuste exige também que se obtenham estimativas dos parâmetros e acompanhe-se sua evolução durante o ajuste, tarefa essa que fica por conta das funções agregadas pela classe Modelo. Finalmente, a implementação específica é derivada de Modelo, das quais alguns exemplos estão apresentados na figura B.5.

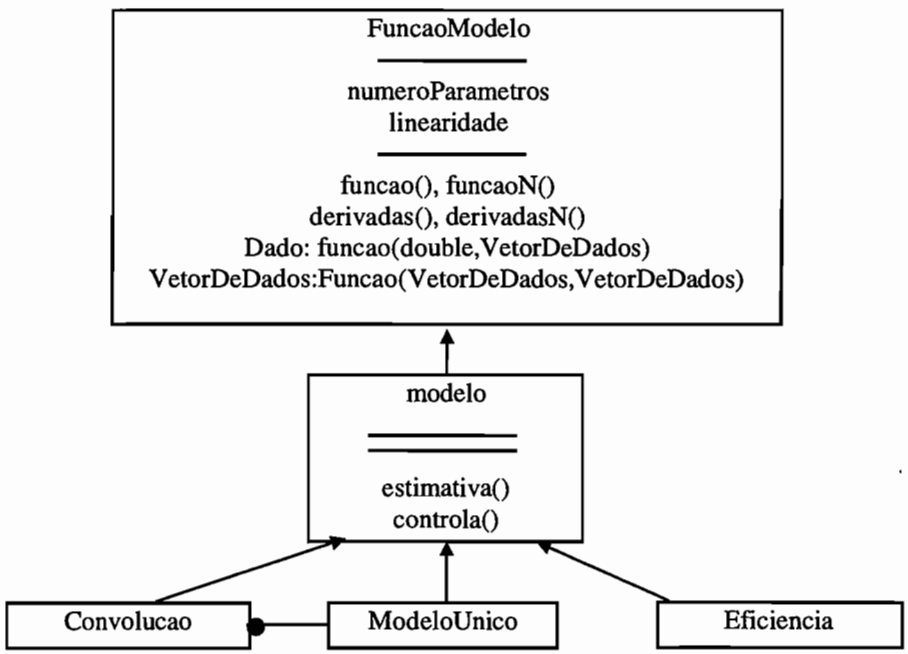


Figura B.5 - Estrutura de classes representando alguns dos modelos de ajuste. ModeloUnico corresponde ao cálculo da função de correlação para cada valor de tempo, enquanto Convolucao efetua o cálculo considerando a resposta temporal. Eficiência permite a determinação das eficiências a partir das amplitudes dos diferentes espectros.

B.6 – Módulo Ajuste

Baseado numa representação matricial do cálculo do método dos mínimos quadrados e nos objetos VetorDeDados::parâmetro que representam o parâmetro sendo ajustado e no Modelo::modelo, que representa o modelo de ajuste, foram criadas quatro classes distintas para ajuste. A classe base exige o conhecimento da matriz de planejamento, enquanto AjusteModelo é construído a partir de um modelo definido. Ajustes lineares e não lineares exigiram especializações distintas de ajuste modelo. Essa estrutura está representada na figura B.6.

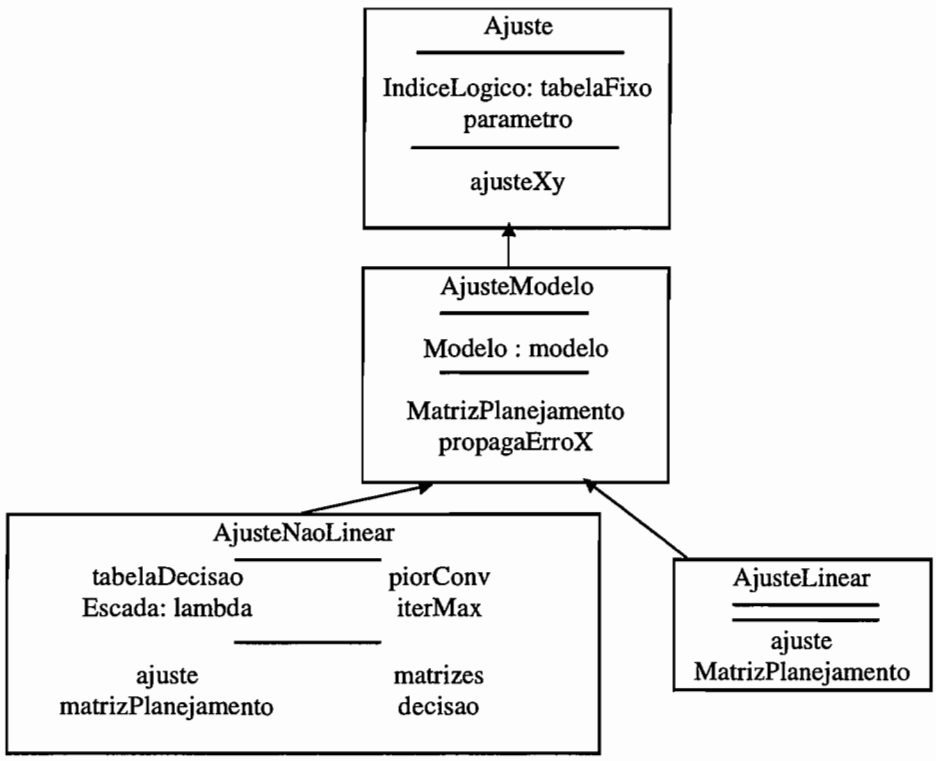


Figura B.6. Representação esquemática das diferentes classes de ajuste de funções pelo método dos mínimos quadrados.

B.7 – Módulo Exceção

Em C++, a execução do programa pode ser interrompida por meio do lançamento de exceções, através das quais é possível informar a causa. A figura B.7 apresenta a estrutura

INSTITUTO DE FÍSICA
Serviço de Biblioteca e Informação
Tombo: 3818
ex. 1

utilizada. A estrutura foi pensada para auxiliar na determinação de problemas como índices de vetores fora da faixa e problemas numéricos associados ao método dos mínimos quadrados e ao cálculo de funções complicadas como as de correlação angular perturbada.

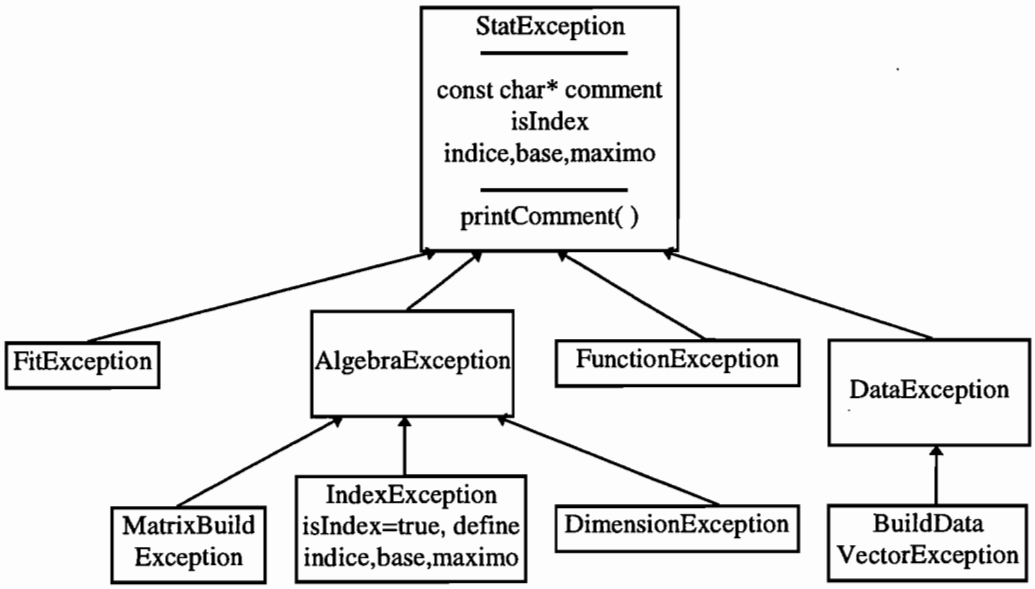


Figura B.7 - Classes de exceção utilizadas nos programa de ajuste.

Referências

[Ar80] A. R. Anrends, C. Hohenemser, F. Pleiter, H. de Waard, L. Chow e R. M. Suter, Hyperfine Interactions 8, pp 191, (1980)

[Ba00] D. Barg F° e V. R. Vanin, programa MULTI, comunicação privada, (2000)

[Bo70] L. Bostrom, E. Karlsson, S. Zetterlund, Physica Scripta, 2, p65, (1970)

[Br86] E. Brown e R. B. Firestone, Table of Radioactive Isotopes, Virginia S. Shirley (editora), Wiley, (1996).

[Bu77] T. Butz, Hyperfine Interactions 52, pp 189-228, (1989).

[Bu89] T. Butz, Hyperfine Interactions 52, pp 189, (1989)

[Ca70] J. A. Cameron, P. R. Gardner, W. V. Prestwich, Z. Zamori, D. C. Santry, Canadian Journal of Physics, v.48, 2725, (1970).

[Ca94] G. L. Catchen, Hyperfine Interactions, 88, pp 1, (1994)

[Do00] C. Domienikan; Uma interface eletrônica para aquisição de 12 espectros de coincidências gama-gama atrasadas, Tese de Doutorado, IPEN (2000)

[Fi96] R. B. Firestone, Table of Isotopes, v. I, 8a edition, New York, (1996).

[Fo00] M. Forker, J. Schimidberger, D.V. Szabo, D. Vallath; Physical Review B., Vol 61-2, pp1014, (2000)

[Fo89] M. Forker, W. Herz, D. Simon, Zeitschrift Fur Physikalische Chemie Neue Folge, vol 163, pp 91, (1989)

[Fo73] M. Forker, Nuclear Instruments and Methods, 106; pp 121; (1973)

[Fo73a] M. Forker e A. Hammerfahr, Z. Physik, 263, pp 33, (1973)

[Fo92] M. Forker, W. Herz, D. Simon, Journal of Physics-Condensed Matter, vol 4-1 pp 213; (1992)

[Fo95] M. Forker, W. Herz, D. Simon, S.C. Bedi, Physical Review B., Vol 51-22, pp15994, (1995)

[Fr65] H. Fraunfelder, R. M. Steffen, Angular Distribution of Nuclear Radiation: a) Angular Correlation. Em Siegbahn, K. ed. Alpha, Beta and Gamma Ray Spectroscopy. Amsterdan, North Holland. V2, p 997-1198 (1965).

[Ga70] P. R. Gardner e W. V. Prestwich, Canadian Journal od Physics, 48, pp1430, (1970)

[Ge69] E. Gerdau, J. Wolf, H. Winkler e J. Braunsfurth, Proc. Roy. Soc. 311, pp197, (1969)

[Gu98] Z. O. Guimarães F°, Medidas precisas de energia de transições gama em coincidência: espectroscopia das séries do ^{232}U e ^{233}U, Dissertação de Mestrado, IFUSP, (1998).

[Ha40] D. R. Hamilton, Phys. Rev. 58, pp 122, (1940)

[He91] O. M. Helene e V. R. Vanin, Tratamento Estatístico de Dados em Física Experimental, 2. ed. Edgard Blucher, (1981)

[Ja89] H. C. Jain, L. Freise, M. Forker, Journal of Physics-Condensed Matter, vol 1-12 pp 2157, (1989)

[Kn89] G. F. Knoll, Radiation Detection and Measurements (2a ed.), John Wiley and Sons, Singapore (1989).

[Ku94] J. Kuriplach, I. Noovtny, I. Procházka, hyperfine Interactions, 88, pp 13, (1994)

[Le78] C. M. Lederer e V. S. Shirley (editores), Table of Isotopes, 7ª edição, Wiley, (1978)

[Li76] B. LindGren, E. Kalsson, e B. Johnson, Hyperfine Interactions, v.1, p.505, (1976).

[Ma62] E. Matthias, W. Schneider, R. M. Steffen, Arkiv for Fysik, vol 24-9, pp 97, (1962)

[Ma63] E. Matthias, W. Schneider, R. M. Steffen, Physics Letters, vol 4-1, pp 41, (1963)

[Me77] L. A. Mendoza-Zelis, A. G. Bibilonim M. C. Caracoche, A. R. Lopez-Garcia, J. A. Martinez, R. C. Mercader e A. F. Pasquevich, Hyperfine Interactions 3, p315, (1977)

[Mu87] K. M. Mukhin, Experimental Nuclear Physics, Physics of Atomic Nucleus, Volume 1, Mir Pub. (1987)

[Or94] EG&G Ortec, HPGe Model 162cc, Operating System Manual (1994).

[Pr92] W. H. Press, S. A. Teulkosky, W. T. Vetterling, B. T. Flannery, Numerical Recipes in C, The art of Scientific Computing, Second Edition, Cambridge University Press, (1992)

[Pu73] E. M. Purcell, Eletricidade e Magnetismo, Curso de Física de Berkeley, Edgard Blucher, (1973)

[Ra67] J. Radeloff, N. Buttler, W. Kesternich, E. Bodenstedt, Nuclear Instrument and Methods, 47, pp109, (1967)

[Ra78] – R. L. Rasera; T. Butz, A. Vasquez, H. Ernest, G. Shenoy, B. Dunlap, R. C. Reno, G. Schimidt, J. Phys. F. Metal Phys., v.8, n.7, p.1579-1598, (1978).

[Re93] T. M. Rearick, G. L. Catchen, J. M. Adams, Physical Review B, 48-1, pp 224, (1993)

[Ri79] H. H. Rinnenberg, Atomic Energy Review, 17, v2, pp 475, (1979)

[Sa94] J. J. Sakurai, Modern Quantum Mechanics; Addison Welsey; (1994)

[Sc92] G. Schartz e A. Weidinger, Nuclear Condensed Matter Physics; pp 86, Sttutgart, Germany, (1992).

[St75] R. M. Steffen, K. Alder, Extranuclear Pertubations of Angular Distributions And Correlations, The Eletromagnetic Interaction in Nuclear Spectroscopy, North Holland, (1975)

[To93] M. Todd et al. Physical Review B; Vol 48-1, pp 224, (1993)

[Va96] V. R. Vanin e P. Gouffon, Tópicos Avançados em Tratamento Estatístico de Dados em Física Experimental, LAL, IFUSP, (1996)

[Va97] V. R. Vanin, G. Kenchian, M. Moralles, O. Helene, P. R. Pascholati, Nuclear Instruments and Methods, NIN 391, pp 338, (1997)

[Ye74] Y. Yeshurun e B. Arad, J. Phys. C: Solid State Phys., Vol. 7, pp 430, (1974)

[Wa69] H. F. Wagner, M. Forker; Nuclear Instrument and Methods 69, pp 197, (1969).

[Zm73] H. Zmora, L. M. Lowe e W. V. Prestwich; Nuclear Instruments and Methods, 113; pp 155; (1973)