

Capítulo N°1

Teoría de las correlaciones angulares

1-1 Función de correlación

La influencia del campo extranuclear sobre el patrón de radiación de un núcleo emisor comenzó a desarrollarse a partir de 1940. Los estudios sobre los cambios en la función de correlación angular debido a los diferentes tipos de interacciones entre el núcleo y el campo extranuclear continuaron exhaustivamente hasta 1965, año en que se alcanzó un alto grado de completitud.

La posibilidad de tener perturbaciones extranucleares fue analizado por Hamilton en su trabajo pionero sobre este tema [Hamilton, 1940]. El primer estudio detallado fue realizado por Goertzel [Goertzel, 1946], quien investigó la estructura hiperfina provocada por la interacción entre el el campo nuclear y un campo magnético externo. El tratamiento que incluye la interacción dipolar magnética y cuadrupolar eléctrica fue hecha por Abragam y Pound [Abragam, 1953]. Un cálculo más extenso combinando los resultados de las dos interacciones anteriormente mencionadas fue realizada por Alder et. al. [Alder, 1963].

Los nucleidos radiactivos decaen a otros nucleidos por medio de diferentes procesos, por ejemplo emisión β , captura electrónica, emisión α . Los nucleidos hijos generalmente quedan en un estado excitado, siendo uno de los procesos de tales isótopos, la emisión sucesiva de dos rayos γ . Durante este proceso, el núcleo pasa por tres estados, uno inicial cuyo momento de espín es I_i , el cual es abandonado luego de la emisión del rayo γ_1 ; un estado intermedio cuyo momento de espín es I , de vida media λ y momento cuadrupolar Q ; y un estado final de espín I_f , al cual llega luego de emitir el segundo cuanto γ_2 . Este proceso recibe el nombre de “cascada γ - γ ” y se esquematiza en la Figura 1.1.

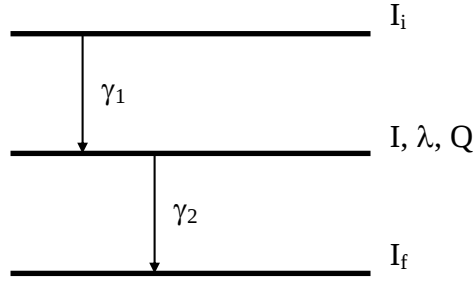


Figura 1.1: Esquema de la cascada γ - γ .

Las emisiones de los fotones γ_1 y γ_2 de momentos angulares L_1 y L_2 , respectivamente, están relacionados a partir de la conservación del momento angular de espín, con el estado intermedio de la cascada γ - γ cuyo momento de espín es I , por lo que I será función de la dirección en la que se emitió la primera radiación, la dependencia con la dirección de emisión del segundo cuanto viene dada por tal ley de conservación. La orientación del espín del estado intermedio I se puede expresar en términos del número cuántico magnético m que cuantifica dicha orientación respecto de un eje arbitrario, en nuestro caso elegiremos la dirección de la primera emisión $\hat{k}_1$.

Teniendo en cuenta que hay del orden de un átomo sonda por cada 10^5 celdas primitivas del cristal [Pavlov, 1987], y que por mm^3 se tienen 10^{14} celdas primitivas, entonces habrá del orden de 10^9 sondas radiactivas por mm^3 . Considerando que el volumen de la muestra analizada en el presente trabajo es del orden de 1 mm^3 , de este modo, la muestra consta de 10^9 sondas. A partir de conocer la vida media de ^{181}Hf ($\tau = 42.2\text{d}$), podemos estimar el número de desintegraciones por segundo que experimenta la muestra, esto es la actividad $A = \lambda N$, donde $\lambda = 1/\tau$ y N es el número de núcleos que transicionan. Entonces, el número de núcleos que transicionan por segundo es del orden de 10^3 , de modo que si están orientados aleatoriamente, el patrón de radiación será isótropo, esto es, la emisión de los rayos γ no tendrá dirección preferencial alguna.

Para que el patrón no sea isótropo, los núcleos deben tener sus espines orientados en alguna dirección particular. Detectando un γ_1 en una dirección $\hat{k}_1$ estamos eligiendo

un subconjunto de núcleos con una orientación de espín preferencial y γ_2 tendrá una distribución angular de emisión definida y no isotrópica.

En el caso de ausencia de campo extranuclear en el entorno del núcleo sonda, la dirección de emisión $\hat{k}_2$ del cuanto γ_2 estará relacionada con la dirección $\hat{k}_1$ a través de la conservación del momento angular.

En cambio, en presencia de campo extranuclear, entonces los momentos nucleares del núcleo sonda interactuarán con dicho campo. Esto se conoce como interacción hiperfina y desde un punto de vista semiclásico es capaz de producir la precesión de los espines nucleares en alguna dirección preferencial cambiando el patrón de emisión. Si el campo cristalino solo tiene una contribución eléctrica, entonces, el gradiente del campo eléctrico interactúa con el momento cuadrupolar (eléctrico) nuclear. La medida del efecto de tal interacción, se obtiene midiendo la diferencia de detecciones entre el detector 2 que detecta γ_2 ubicado a 90° y 180° respecto del detector 1 detectando γ_1 para una diferencia temporal nula entre las emisiones de los dos γ , esto se esquematiza en la Figura 1.2.

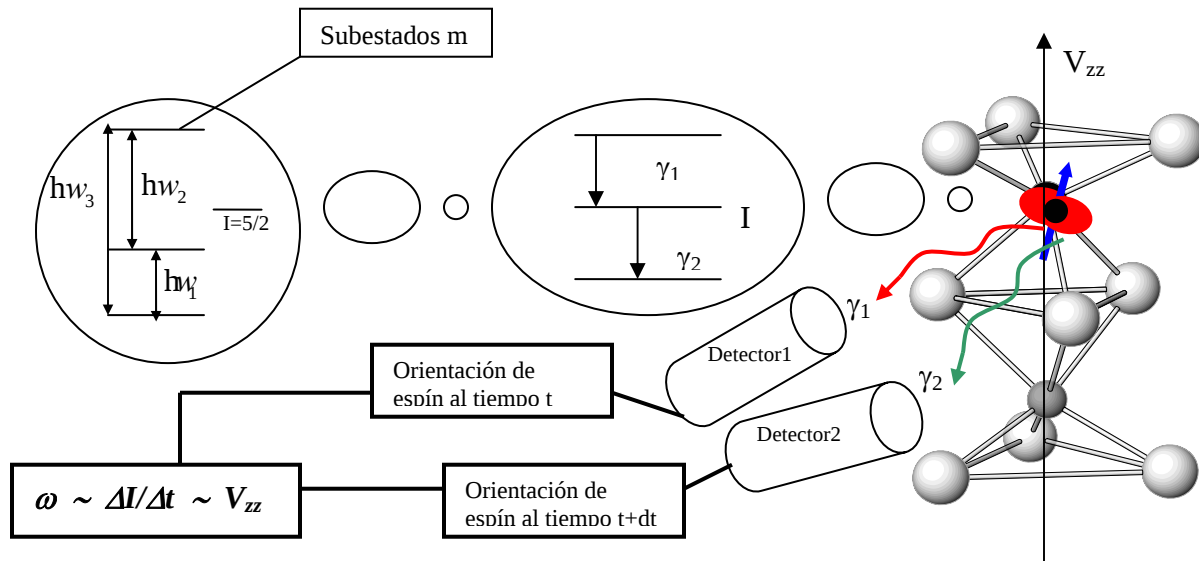


Figura 1.2: Esquema de la precesión del espín nuclear alrededor de un eje de simetría

La degeneración de los subestados m del estado intermedio I del núcleo sonda ahora aparece rota como consecuencia de la interacción hiperfina entre el GCE del campo extranuclear y el momento nuclear. Desde un punto de vista semiclásico, esto se entiende a partir de la precesión del espín nuclear entorno a la dirección principal z del GCE. Los cambios de la componente del espín nuclear en dicho eje respecto del tiempo están relacionados cuánticamente con la evolución temporal de las transiciones entre los subestados m del estado intermedio I .

La frecuencia de precesión está relacionada con el desdoblamiento en energía a partir de la relación de Larmor $\omega = \Delta E/\hbar$. En la figura 1.3 se esquematiza el decaimiento nuclear del núcleo sonda con una descripción detallada del desdoblamiento del nivel intermedio y sus energías en función de la frecuencia de Larmor.

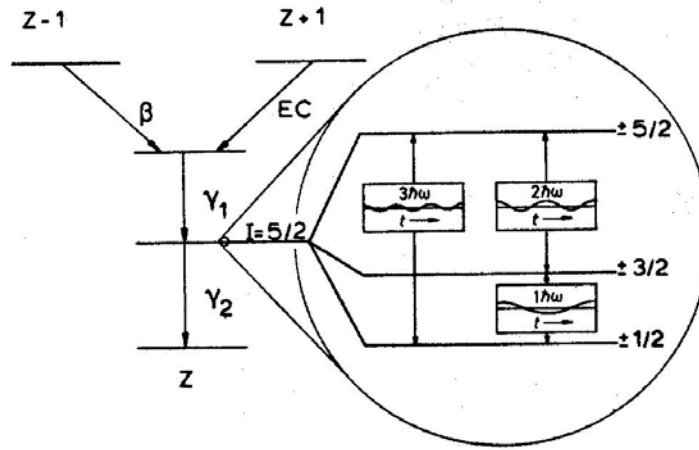


Figura 1.3: esquema de decaimiento nuclear del núcleo sonda, desdoblamiento del nivel intermedio I .

La probabilidad de que γ_2 sea emitido en la dirección $\hat{k}_2$ en una abertura $d\Omega_2$ en el tiempo $t+dt$, siempre que γ_1 haya sido emitido en la dirección $\hat{k}_1$ en el instante t en una abertura $d\Omega_1$, es:

$$P(\hat{k}_1, \hat{k}_2, t) = W(\hat{k}_1, \hat{k}_2, t) \cdot e^{-t/\lambda} d\Omega_1 d\Omega_2 dt \quad , \quad (1.1)$$

$W(\overset{\text{I}}{k}_1, \overset{\text{V}}{k}_2, t)$ se define como la función de correlación angular y es la probabilidad por unidad de ángulo sólido $d\Omega_1$ y $d\Omega_2$, y por unidad de tiempo, de que γ_2 se emita en la dirección $\overset{\text{I}}{k}_2$ al tiempo $t+dt$, siendo que γ_1 ha sido emitido en la dirección $\overset{\text{I}}{k}_1$ al tiempo t .

En el caso de ausencia de campo extranuclear, los subestados m se encuentran todos igualmente poblados. Por otro lado, para campo extranuclear no nulo, los subestados m ya no estarán uniformemente poblados, sino que sus poblaciones dependerán del tiempo y evolucionarán según el operador de evolución temporal característico del campo con el que interactúa el núcleo, más adelante mostramos el caso de interacción dipolar eléctrica ($I = 1$) para fijar estos conceptos. Esto se tiene en cuenta a partir del Factor de Perturbación $G_{K_1 K_2}^{N_1 N_2}(t)$ (ver apéndice 1):

$$W(\overset{\text{r}}{k}_1, \overset{\text{r}}{k}_2, t) = 4\pi \sum_{K_1, K_2} A_{K_1}(\gamma_1) A_{K_2}(\gamma_2) [(2K_1 + 1)(2K_2 + 1)]^{-1/2} \sum_{N_1 N_2} G_{K_1 K_2}^{N_1 N_2}(t) Y_{K_1}^{N_1*}(\theta_1, \varphi_1) Y_{K_2}^{N_2}(\theta_2, \varphi_2) \quad , \quad (1.2)$$

con $K_i = 0, 2, \dots, K_i^{\max}$ y $N_i = -K_i, \dots, 0, \dots, K_i$. Las funciones $Y_{K_i}^{N_i}(\theta_i, \varphi_i)$ son los esféricos armónicos y los ángulos θ_i, φ_i determinan la dirección de emisión de γ_i con $i = 1, 2$. El producto $A_{K_1}(\gamma_1) A_{K_2}(\gamma_2)$ se define como la anisotropía $A_{K_1 K_2}$, los $A_{K_1}(\gamma_1)$ son los coeficientes de orientación y los $A_{K_2}(\gamma_2)$ son los coeficientes de correlación, dependen de los espines de los estados involucrados, de las multipolaridades de las radiaciones emitidas y se normalizan de modo que $A_{00} = 1$. En la figura 1.4 se muestran las direcciones de emisión $\overset{\text{I}}{k}_1$ y $\overset{\text{I}}{k}_2$ con sus respectivas coordenadas angulares respecto del sistema de coordenadas en el que el tensor GCE es diagonal:

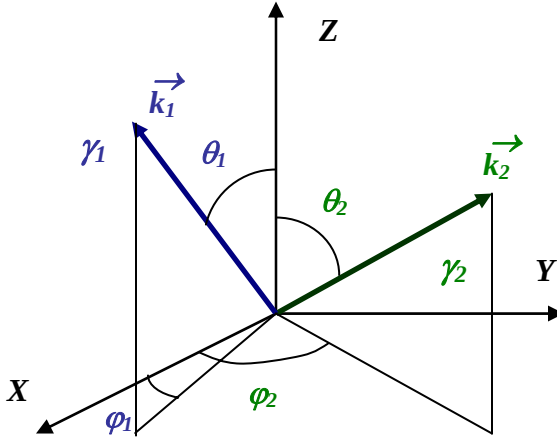


Figura 1.4: Coordenadas angulares de las direcciones de emisión en el sistema de ejes principales del tensor GCE.

El factor $G_{K_1 K_2}^{N_1 N_2}(t)$ se denomina factor de perturbación y contiene toda la información de la interacción hiperfina entre el núcleo y el campo extranuclear, la cual está presente en el transcurso de tiempo que el núcleo se encuentra en el estado intermedio I. Semiclásicamente, este factor describe el cambio en el tiempo de la precesión del espín nuclear alrededor del eje de cuantización. La forma

explícita del factor de perturbación en función del operador de evolución temporal $\hat{\Lambda}(t)$ es la siguiente (ver apéndice I):

$$G_{K_1, K_2}^{N_1, N_2}(t) = \sum_{m_1, m_2} (-1)^{2I+m_1+m_2} [(2K_1+1)(2K_2+1)]^{1/2} \begin{pmatrix} I & I & K_1 \\ m'_1 & m_1 & N_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I & I & K_2 \\ m'_2 & m_2 & N_2 \end{pmatrix} \times \\ \times \langle m_2 | \hat{\Lambda}(t) | m_1 \rangle \langle m'_2 | \hat{\Lambda}(t) | m'_1 \rangle^* , \quad (1.3)$$

donde los símbolos $\begin{pmatrix} I & I & K_1 \\ m'_1 & m_1 & N_1 \end{pmatrix}$ y $\begin{pmatrix} I & I & K_2 \\ m'_2 & m_2 & N_2 \end{pmatrix}$ son los símbolos 3-j de Wigner y se definen a partir de los coeficientes de Clebsch-Gordan (ver apéndice I). A partir de las propiedades que cumplen los símbolos 3-j (ver apéndice I), se puede demostrar que los índices K_1 y K_2 tienen una cota superior: $0 < K_1, K_2 < \min\{2I, 2L_1, 2L_2\}$, donde L_1 y L_2 son los momentos angulares de γ_1 y γ_2 , respectivamente. Debido a que la probabilidad de transición entre los estados nucleares decrece al aumentar el momento angular de la radiación emitida, por lo general $K_{\max}$ no supera el valor 4.

El operador evolución temporal describe como evolucionan en el tiempo las poblaciones de los subestados m del estado intermedio I debido a la interacción hiperfina

del campo cristalino y el núcleo. Dicho operador es función del hamiltoniano de perturbación extranuclear H_Q que describe la interacción mencionada:

$$\hat{\Lambda}(t) = e^{-\frac{i}{\hbar} \int_0^t \hat{H}_Q(t') dt'} \quad (1.4)$$

Para fijar ideas analicemos el patrón de radiación de una correlación angular debido a una interacción dipolo-dipolo.

Consideremos la cascada mostrada en la figura 1.5, donde el momento angular de espín del estado inicial es $I_i = 0$, el del estado intermedio es $I = 1$ y el momento de espín del estado final es $I_f = 0$; los momentos angulares de los cuantos γ_1 y γ_2 son $L_1 = L_2 = 1$.

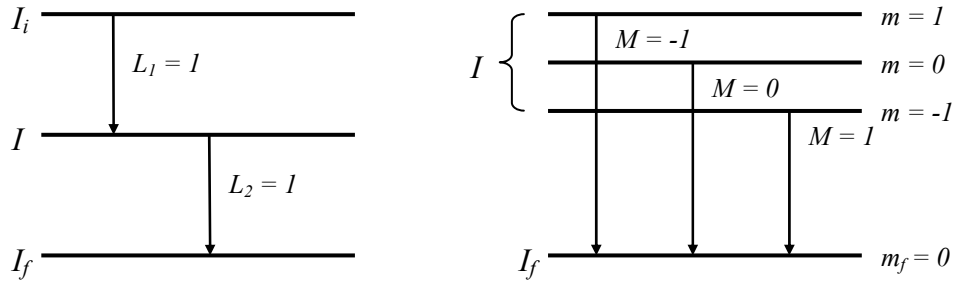


Figura 1.5: Transiciones posibles del estado I al estado I_f

Supondremos que los subniveles del estado intermedio I y el estado inicial I_i se encuentran uniformemente poblados. Primero consideraremos la transición esquematizada en la parte derecha de la figura 1.5. La distribución angular de la radiación dipolar emitida es función de $M = m_f - m$, que es la diferencia entre los números cuánticos magnéticos de los estados involucrados en la transición, en este caso el estado final y el estado intermedio y explícitamente queda expresada como:

$$\begin{aligned} W(\vartheta) d\Omega &= \frac{3}{8\pi} (1 - \cos^2 \vartheta) d\Omega \quad \text{para } M = 0, \\ W(\vartheta) d\Omega &= \frac{3}{16\pi} (1 + \cos^2 \vartheta) d\Omega \quad \text{para } M = +1, \\ W(\vartheta) d\Omega &= \frac{3}{16\pi} (1 + \cos^2 \vartheta) d\Omega \quad \text{para } M = -1, \end{aligned} \quad (1.5)$$

donde ϑ es el ángulo entre la dirección de emisión y un eje Z arbitrario de cuantificación. Es fácil de ver que suponiendo poblaciones uniformes, la distribución angular total es isótropa, esto se consigue sumando las tres $W(\vartheta)$ de la expresión (1.5). Por lo tanto, para observar anisotropía en la distribución angular es necesario que los subestados magnéticos no estén igualmente poblados.

Consideremos, ahora si, la cascada γ - γ para momento angular de espín del estado intermedio $I = 1$. Esto se esquematiza en la figura 1.6.

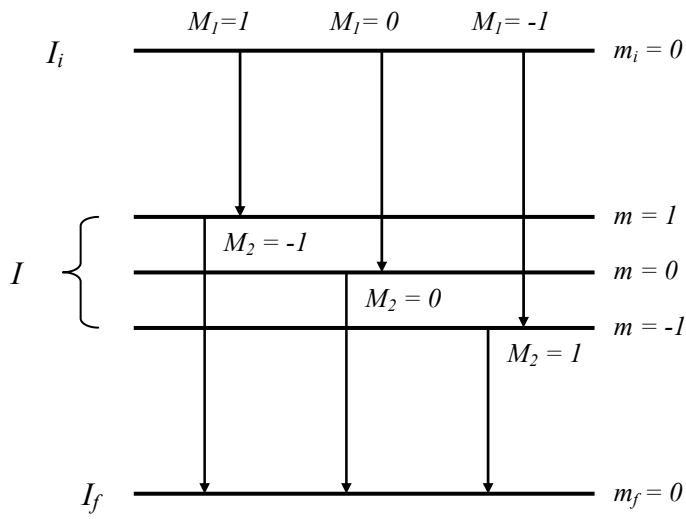


Figura 1.6: cascada γ - γ correspondiente a una interacción dipolar ($I = 1$)

La dirección del eje de cuantificación Z la tomaremos en la dirección de emisión del γ_1 , esto es, $\vartheta = 0$ coincide con la dirección $\hat{k}_1$. Entonces, por (1.5) la transición desde $M_1 = 0$ a $m = 0$ es prohibida ($W(\vartheta) = 0$ para $M = 0$). Por lo que solo se producirán las transiciones $M_1 = 1$ seguida de $M_2 = -1$ y $M_1 = -1$ seguida de $M_2 = 1$, ambas con la misma probabilidad proporcional a $(1 + \cos^2 \vartheta)$.

Por lo tanto, si el cuanto γ_1 se detecta en una dirección $\vartheta = 0$, el cuanto γ_2 tendrá una distribución angular de emisión $W(\vartheta) = (1 - \cos^2 \vartheta)$. En la figura 1.8 mostramos dicho patrón de emisión.

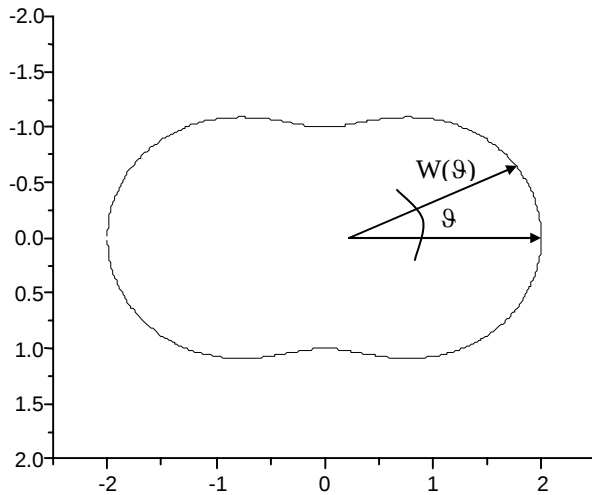


Figura 1.8: Patrón de radiación de la Correlación angular debida a una interacción dipolar.

Por último, vimos que si las poblaciones estaban igualmente pobladas, esto es si el campo extranuclear al núcleo emisor es nulo, la distribución angular de emisión es isotrópica. Además al elegir una dirección arbitraria que la llamamos Z y la hicimos coincidir con la dirección de detección de γ_1 , el cuanto γ_2 tendrá un patrón de emisión bipolar que en el plano de los detectores tendrá una forma similar a la figura 1.8,

donde θ es el ángulo entre los detectores. Y para este caso de campo extranuclear nulo, dicho patrón permanecerá constante en el tiempo y tendrá una dependencia con el tiempo para campo extranuclear diferente de cero.

1-2 Interacciones estáticas en muestras monocristalinas

Teniendo en cuenta que el GCE con el que interactúa el núcleo sonda en su estado intermedio I , no depende del tiempo, analizaremos la forma de la función de correlación perturbada y del factor de perturbación correspondiente a este tipo de interacción.

Por lo dicho en el párrafo anterior, H_Q no depende del tiempo, de modo que el operador de evolución toma la forma:

$$\Lambda(t) = e^{\frac{-i}{\hbar} H_Q t} \quad (1.6)$$

En general, tanto $\Lambda(t)$ como H_Q no son diagonales en la base $|m\rangle$, pero se expresan fácilmente en dicha base. Sea U la matriz que diagonaliza a H_Q ($E = UH_QU^{-1}$), de modo que la matriz E contenga en su diagonal los autovalores E_n , de modo que la exponencial de H_Q diagonalizada queda:

$$U e^{\frac{-i}{\hbar} H_Q t} U^{-1} = e^{\frac{-i}{\hbar} U H_Q U^{-1} t} = e^{\frac{-i}{\hbar} E t} \quad (1.7)$$

Y así el operador evolución nos queda:

$$\Lambda(t) = U^{-1} e^{\frac{-i}{\hbar} E t} U \quad (1.8)$$

Entonces, la expresión para el factor de perturbación para el caso en que la interacción entre el campo extranuclear y el núcleo es independiente del tiempo nos queda:

$$\begin{aligned} G_{K_1, K_2}^{N_1, N_2}(t) = & \sum_{m_1, m_2, n, n'} (-1)^{2I+m_1+m_2} [(2K_1+1)(2K_2+1)]^{1/2} \begin{pmatrix} I & I & K_1 \\ m'_1 & m_1 & N_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I & I & K_2 \\ m'_2 & m_2 & N_2 \end{pmatrix} \times \\ & \times \langle n | \hat{\Lambda}(t) | m_1 \rangle \langle n | \hat{\Lambda}(t) | m_2 \rangle^* \langle n' | \hat{\Lambda}(t) | m'_1 \rangle^* \langle n' | \hat{\Lambda}(t) | m'_2 \rangle, \end{aligned} \quad (1.9)$$

donde se ha desarrollado el operador evolución temporal en la base de los subestados $|m\rangle$ y en la base $|n\rangle$ en que H_Q es diagonal. De modo que en función de los autovalores E_n la ecuación anterior queda:

$$\begin{aligned} G_{K_1, K_2}^{N_1, N_2}(t) = & \sum_{m_1, m_2, n, n'} (-1)^{2I+m_1+m_2} [(2K_1+1)(2K_2+1)]^{1/2} \begin{pmatrix} I & I & K_1 \\ m'_1 & m_1 & N_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I & I & K_2 \\ m'_2 & m_2 & N_2 \end{pmatrix} \times \\ & \times \langle n | m_1 \rangle \langle n | m_2 \rangle^* \langle n' | m'_1 \rangle^* \langle n' | m'_2 \rangle e^{-\frac{i}{\hbar} (E_n - E_{n'}) t} \end{aligned} \quad (1.10)$$

Si definimos:

$$G_{K_1 K_2}(\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, t) = 4\pi [(2K_1+1)(2K_2+1)]^{-1/2} \sum_{N_1 N_2} G_{K_1 K_2}^{N_1 N_2}(t) Y_{K_1}^{N_1*}(\theta_1, \varphi_1) Y_{K_2}^{N_2}(\theta_2, \varphi_2) \quad (1.11)$$

podemos expresar la función de correlación de una forma mucho más compacta:

$$W(\overset{\text{r}}{k}_1, \overset{\text{r}}{k}_2, t) = \sum_{K_1, K_2} A_{K_1 K_2} G_{K_1 K_2}(\overset{\text{r}}{k}_1, \overset{\text{r}}{k}_2, t) , \quad (1.12)$$

donde $A_{K_1 K_2} = A_{K_1}(\gamma_1) A_{K_2}(\gamma_2)$ es la probabilidad de que se emita γ_1 de momento angular K_1 multiplicado por la probabilidad de que se emita γ_2 de momento angular K_2 . Teniendo en cuenta que K_1 y K_2 no pueden superar el valor de 4 y que, como se ha mencionado más arriba, la probabilidad de transición entre los estados nucleares decrece al aumentar el momento angular de la radiación emitida, entonces, los $A_{K_1 K_2}$ con K_1 y K_2 mayores que 4 serán despreciables, y para los coeficientes diferentes de cero se tiene: $A_{22} > A_{24}, A_{42}, A_{44}$

De este modo, la función de correlación angular se puede escribir como sigue:

$$W(\vartheta, t) = 1 + A_{22} G(\vartheta, t) , \quad (1.13)$$

donde ϑ es el ángulo entre las direcciones $\overset{\text{r}}{k}_1$ y $\overset{\text{r}}{k}_2$ y depende de $\theta_1, \varphi_1, \theta_2$ y φ_2 . De esta forma el factor de perturbación $G(\vartheta, t)$ queda:

$$G(\vartheta, t) = G_{22}(\overset{\text{p}}{k}_1, \overset{\text{p}}{k}_2, t) + \frac{A_{24}}{A_{22}} G_{24}(\overset{\text{p}}{k}_1, \overset{\text{p}}{k}_2, t) + \frac{A_{42}}{A_{22}} G_{42}(\overset{\text{p}}{k}_1, \overset{\text{p}}{k}_2, t) + \frac{A_{44}}{A_{22}} G_{44}(\overset{\text{p}}{k}_1, \overset{\text{p}}{k}_2, t) \quad (1.14)$$

Y por último, podemos redefinir (1.11) de modo que nos quede un desarrollo en cosenos de $\omega_n t$, donde $\omega_n = (E_n - E'_n)/\hbar$ es la frecuencia de Larmor, y los coeficientes en función del parámetro de asimetría η , que es función del campo extranuclear, y de ϑ :

$$G_{K_1 K_2}(\vartheta, t) = \sum_{n=0}^3 S_{K_1 K_2}^n(\vartheta, \eta) \cos(\omega_n t) \quad (1.15)$$

Y reemplazando en (1.14) obtenemos el factor de perturbación para un monocristal:

$$\begin{aligned}
G(\vartheta, t) &= \sum_{n=0}^3 S_{22}^n(\vartheta, \eta) \cos(\omega_n t) + \frac{A_{24}}{A_{22}} \sum_{n=0}^3 S_{24}^n(\vartheta, \eta) \cos(\omega_n t) + \frac{A_{42}}{A_{22}} \sum_{n=0}^3 S_{42}^n(\vartheta, \eta) \cos(\omega_n t) + \\
&+ \frac{A_{44}}{A_{22}} \sum_{n=0}^3 S_{44}^n(\vartheta, \eta) \cos(\omega_n t) = \sum_{n=0}^3 \left[S_{22}^n(\vartheta, \eta) + \frac{A_{24}}{A_{22}} S_{24}^n(\vartheta, \eta) + \frac{A_{42}}{A_{22}} S_{42}^n(\vartheta, \eta) + \frac{A_{44}}{A_{22}} S_{44}^n(\vartheta, \eta) \right] \cos(\omega_n t) = \\
&= \sum_{n=0}^3 S_{Kn}(\vartheta, \eta) \cos(\omega_n t) \quad (1.16)
\end{aligned}$$

1-3 Interacción cuadrupolar eléctrica

Supongamos que el núcleo sonda se encuentra en una red cristalina de modo que interactúe con el campo cristalino. Debido a la diferencia de magnitud de las componentes eléctrica y magnética del campo cristalino en su fase paramagnética, se puede asumir que el campo solo es eléctrico. Debido a que el núcleo no es puntual sino que tiene un tamaño finito, y debido a la anisotropía del campo extranuclear, la energía de interacción electrostática entre el núcleo y el campo será la convolución de la densidad de carga nuclear $\rho_n(\mathbf{r})$ con el potencial del campo eléctrico cristalino $V_{ext}(\mathbf{r})$:

$$E_{elec} = \int \rho_n(\mathbf{r}) V_{ext}(\mathbf{r}) d^3r \quad (1.17)$$

El potencial externo al núcleo puede desarrollarse en serie de Taylor [Jackson, 1964], quedando expresada la ecuación (1.17) en una suma donde cada término de orden n representa la multipolaridad n de la interacción:

$$E_{elec} = qV(0) - \mathbf{p} \cdot \mathbf{E} + \frac{1}{6} \sum_i \sum_j Q_{ij} \frac{\partial E_j(0)}{\partial x_i} - \frac{3}{2} \pi \int \rho_{el}(0) \rho_n(\mathbf{r}) r^2 d\mathbf{r}^V, \quad (1.18)$$

donde q es la carga total del núcleo y representa el momento monopolar, $\mathbf{p}$ es el momento dipolar eléctrico y Q_{ij} es el momento cuadrupolar eléctrico nuclear de traza nula.

En (1.18) se puede apreciar que la carga nuclear se acopla con el potencial electrostático; el momento dipolar eléctrico, con el campo eléctrico; el momento cuadrupolar, con el GCE; y el último termino es la contribución de los electrones s que tienen una probabilidad no nula de penetrar en la región nuclear. Debido a que la simetría de la densidad carga de electrones s es esférica, el término es de orden cero y al igual que la interacción del momento monopolar y el potencial $V(0)$ solo produce un corrimiento en la energía electrostática de la interacción. La interacción dipolar se anula debido a la simetría de las funciones de onda nucleares. Por lo tanto, el único término que rompe la degeneración del estado intermedio I es el correspondiente a la interacción entre el momento cuadrupolar eléctrico nuclear y el tensor GCE.

Como ya se mencionó más arriba, la interacción entre el GCE y el momento cuadrupolar Q_{ij} del núcleo en el estado intermedio I, semiclásicamente provoca la precesión del espín nuclear entorno a la dirección del eje de cuantificación.

El tensor GCE se describe a partir de las nueve componentes $V_{ij} = \partial_{ij}^2 V$, $i, j = 1, 2, 3$. Y como $V(\mathbf{r})$ es continuo de orden dos, esto implica que la matriz real de 3x3 del tensor GCE sea simétrica y por ende diagonalizable, reduciéndose a las tres componentes principales V_{11} , V_{22} y V_{33} . Estas tres componentes se definen de manera que $|V_{33}| \geq |V_{22}| \geq |V_{11}|$ y debido a que satisfacen la ecuación de Laplace $V_{11} + V_{22} + V_{33} = 0$ (tensor de traza nula), el tensor GCE diagonalizado queda completamente definido por dos de sus elementos diagonales. Es conveniente definir un parámetro adimensional, el parámetro de asimetría η , que depende de las tres componentes del tensor de modo que el GCE quede completamente determinado a partir de η y V_{33} :

$$\eta = \frac{V_{11} - V_{22}}{V_{33}} \quad (1.19)$$

Este parámetro expresa la desviación del tensor GCE respecto de aquel que posee simetría axial ($\eta = 0$). Además, de la definición de los elementos diagonales del tensor y de η , se tiene $0 \leq \eta \leq 1$.

El hamiltoniano perturbativo que describe la interacción entre el GCE del campo extranuclear y el momento cuadrupolar del núcleo en el estado intermedio I viene dado por [Frauenfelder, 1968]:

$$H_e = \sum_{K=0}^{\infty} \sum_{m=-K}^K Q_K^m V_K^{m*} , \quad (1.20)$$

donde Q_K^m es el operador momento cuadrupolar eléctrico nuclear y V_K^m es el tensor gradiente de campo eléctrico del campo extranuclear. Debido a que trabajamos en la base $|Km\rangle$, ambos operadores se expresan en coordenadas esféricas, esto es $\langle I | Km \rangle = Y_m^K(\theta, \varphi)$. De esta manera, se puede demostrar [Rentería, 1992] que los autovalores del hamiltoniano perturbativo de interacción cuadrupolar eléctrica H_e toman la forma:

$$E_{\pm 5/2} = \frac{1}{\sqrt{3}} \hbar \omega_Q \alpha \cos\left(\frac{1}{3} \arccos \beta\right)$$

$$E_{\pm 3/2} = -\frac{1}{\sqrt{3}} \hbar \omega_Q \alpha \cos\frac{1}{3}(\pi + \arccos \beta) \quad (1.20)$$

$$E_{\pm 1/2} = -\frac{1}{\sqrt{3}} \hbar \omega_Q \alpha \cos\frac{1}{3}(\pi - \arccos \beta) ,$$

donde $\omega_Q \equiv \frac{eQV_{33}}{40\eta}$ es la frecuencia cuadrupolar, $\alpha \equiv 4\sqrt{7(3+\eta^2)}$ y $\beta \equiv 1920\sqrt{3}(1-\eta^2) / \alpha^{-3}$.

Debido a que los autovalores de H_e no dependen del signo m, esto es, del signo de la proyección del espín nuclear I en el eje de cuantificación, entonces las frecuencias de interacción $\omega = \frac{E_m - E_{m'}}{\hbar}$, tampoco dependerán de dicho signo, por lo que solo habrá tres frecuencias diferentes:

$$\omega_1 = \frac{1}{\hbar} (E_{\pm 5/2} - E_{\pm 3/2}) = \omega_Q \alpha \sin\left(\frac{1}{3} \arccos \beta\right)$$

$$\omega_2 = \frac{1}{\hbar} (E_{\pm 5/2} - E_{\pm 1/2}) = \omega_Q \alpha \sin\left(\frac{1}{3} (\pi - \arccos \beta)\right) \quad (1.21)$$

$$\omega_3 = \frac{1}{\hbar} (E_{\pm 3/2} - E_{\pm 1/2}) = \omega_Q \alpha \sin\left(\frac{1}{3} (\pi + \arccos \beta)\right)$$

En la figura 1.9 se grafican los autovalores de energía en unidades de $\hbar\omega_Q$ en función del parámetro de asimetría η .

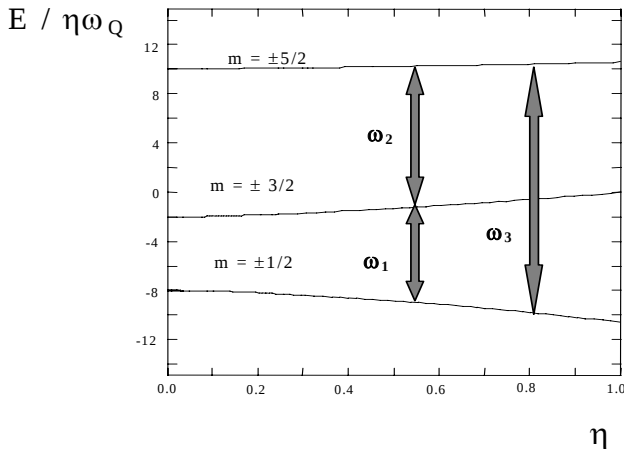


Figura 1.9: Autovalores de energía E vs. η . Se identifican las tres frecuencias de interacción.

Observando las energías (1.21) del desdoblamiento del estado intermedio I del núcleo de espín nuclear $I = 5/2$, vemos que la única información de la interacción cuadrupolar eléctrica necesaria para calcular dichos autovalores reside en η y ω_Q . Es por esto que el factor de perturbación $G(\vartheta, t)$ para un ángulo ϑ entre las direcciones de emisión, al tiempo t solo dependerá del parámetro η y de la frecuencia cuadrupolar ω_Q :

$$G(\vartheta, t) = S_{K0}(\vartheta, \eta) + \sum_{n=1}^3 S_{Kn}(\vartheta, \eta) \cos(\omega_n(\eta, \omega_Q) t) \quad , \quad (1.23)$$

donde se remarca la dependencia de ω_n con η y ω_Q , y la dependencia de los coeficientes S_{Kn} con η y con el ángulo ϑ . Esta última dependencia es la principal diferencia del Factor de perturbación para monocristales respecto del de policristales, el factor de perturbación para policristales tiene una forma similar:

$$G(t) = S_{K0}(\eta) + \sum_{n=1}^3 S_{Kn}(\eta) \cos(\omega_n(\eta, \omega_Q)t) \quad , \quad (1.24)$$

solo que no aparece la dependencia con ϑ debido a que un policristal consta de un gran número de microcristales (del orden de 10^{18} por mm^3) orientados al azar, con lo que esta simetría borra la información de la orientación relativa entre las direcciones de emisión.

Volviendo sobre ω_n , se suele escribir la forma funcional de ω_n en función de ω_Q y η como un producto de factores independientes, esto es:

$$\omega_n = g_n(\eta) \nu_Q = \frac{g_n(\eta)}{2\pi} \omega_Q, \quad n=1, 2, 3 \quad (1.25)$$

En la figura 1.10 se grafica las funciones g_n , con $n=1, 2, 3$, en función de η y los cocientes ω_2/ω_1 y ω_3/ω_1 también en función de η :

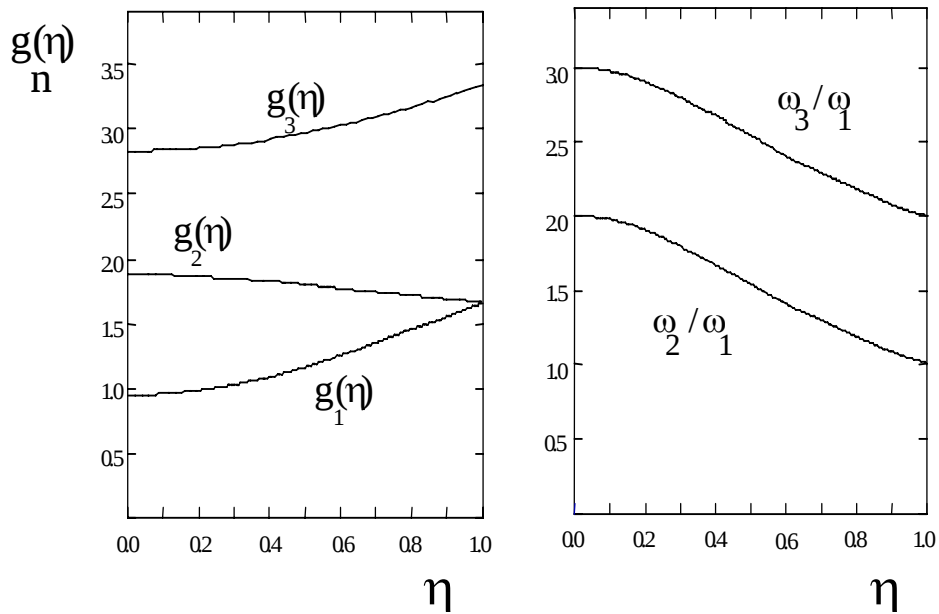


Figura 1.10: gráfico de $g_n(\eta)$ ($n=1,2,3$) vs. η y de los cocientes ω_2/ω_1 y ω_3/ω_1 vs. η

1-4 El signo del GCE

El signo de V_{ii} no puede determinarse a partir de un experimento PAC estándar puesto que la detección del γ_2 no tiene información de su polarización circular. Se puede demostrar que cuando existe interacción cuadrupolar eléctrica, el nivel intermedio se desdobra en $I+1$ subniveles para I entero, y en $I+1/2$ para I semientero.

Para determinar completamente la interacción cuadrupolar eléctrica, esto es, para obtener las dos cantidades que caracterizan el GCE, η y V_{33} , es necesario medir al menos uno de los desdoblamientos de energía del nivel intermedio I , y el orden de la degeneración en ausencia de campo extranuclear. Como $\Delta E_{mm'} \propto \omega_Q \propto V_{33}$, de $\Delta E_{mm'}$ se determina la magnitud de V_{33} , y del orden de la degeneración, el signo.

Los experimentos de interacciones hiperfinas pueden clasificarse en dos grupos: los de métodos energéticos y los de diferencia de fase o precesión.

En los experimentos de métodos energéticos, los desdoblamientos de energía están relacionados directamente con la medición y las autofunciones de los subestados involucrados pueden considerarse independientes del tiempo. En estos experimentos, el signo de V_{33} se determina midiendo el ordenamiento de los niveles desdoblados. Uno de tales experimentos es el que utiliza la técnica Mossbauer y posee la ventaja de determinar el signo aún para muestras policristalinas.

En los métodos de fase, la diferencia de energía de los desdoblamientos no se puede medir directamente y las autofunciones son necesariamente dependientes del tiempo. La información se obtiene a partir de los efectos de interferencia, esto es, a partir de los cambios introducidos por la precesión del espín en el patrón de emisión de la radiación nuclear. Estos métodos se basan en distinguir subestados $+m$ y $-m$. Semiclasicamente, el signo de m está directamente relacionado con el sentido de precesión del espín, el cual depende del signo del torque, es decir que los subestados $+m$ y $-m$ precesan en sentido opuesto. Esto se esquematiza en la figura 1.11.

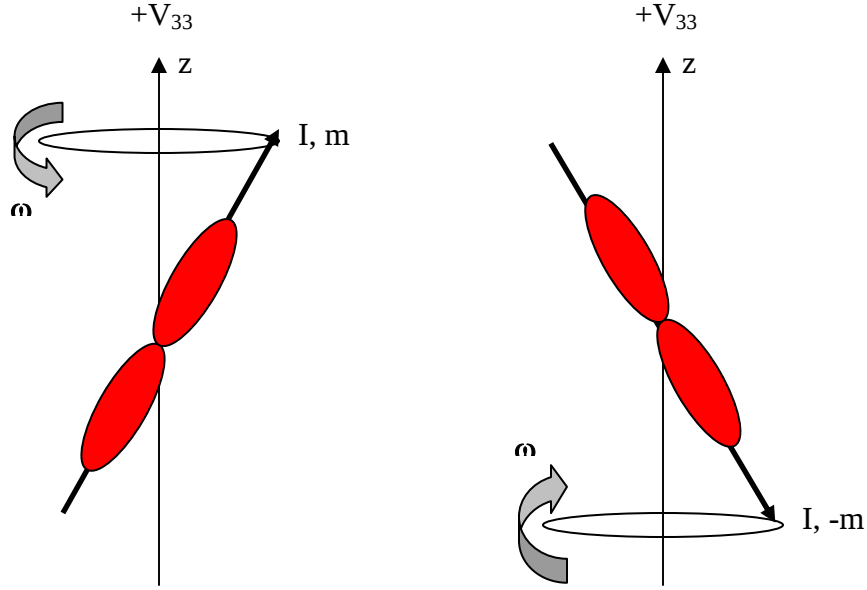


Figura 1.11: esquema semiclásico de un momento de espín I con orientaciones m y $-m$ precesando en direcciones opuestas en la dirección z del tensor GCE.

La detección de γ_2 en coincidencia con γ_1 tiene una distribución angular de radiación definida, esto hace que un conjunto de núcleos en su estado intermedio I tengan una orientación de espín definida. Describiendo el proceso en el formalismo de la matriz densidad, los subestados m se pueblan en función de la interacción entre el campo extranuclear y el núcleo, se dice que los núcleos que se encuentran en el mismo subestado m están alineados entre si. La interacción cuadrupolar hiperfina hace oscilatorias las polarizaciones y los alineamientos de los núcleos.

En el apéndice I se llega a una expresión de la función de correlación angular expresada en una sumatoria de factores:

$$W(\vec{k}_1, \vec{k}_2, t) = \sum_{\substack{m_a, m'_a \\ m_b, m'_b}} \langle m_a | \rho(\vec{k}_1) | m'_a \rangle \langle m'_b | \rho(\vec{k}_2) | m_b \rangle \langle m_b | \Lambda(t) | m_a \rangle \langle m'_b | \Lambda(t) | m'_a \rangle \quad (1.26)$$

donde se pueden apreciar todos los procesos involucrados en la cascada γ - γ : los elementos de matriz del operador evolución temporal contienen los efectos de la perturbación extranuclear; los elementos de matriz de las matrices densidad $\rho(\vec{k}_1)$ y

$\rho(k_2^p)$ están relacionados con la probabilidad de detectar γ_1 en la dirección k_1^p y γ_2 en la dirección k_2^p , respectivamente. Explícitamente, queda la expresión (1.2) y el efecto de la perturbación del GCE sobre el estado intermedio nuclear I viene dado por el factor de perturbación $G_{K_1 K_2}^{N_1 N_2}(t)$. Se puede demostrar que la expresión para el factor de perturbación $G(\vartheta, t)$ viene dada por (1.16), donde se ve claramente que cada término es proporcional a $\cos(n\omega t)$, estos términos contribuyen a los alineamientos, y por ende no son sensibles al signo de m , o lo que es lo mismo, al sentido de la precesión.

Los términos que contribuyen a la polarización son proporcionales a $\sin(n\omega t)$ permitiendo la determinación del signo.

La técnica PAC utilizada para caracterizar la interacción cuadrupolar eléctrica en muestras policristalinas no da información del signo del GCE, debido a que, como se ha dicho anteriormente, un policristal consta de un gran número de microcristales (del orden de 10^{18} por mm^3) orientados al azar, con lo que esta simetría borra la información relacionada con el signo de m , esto se aprecia claramente en la expresión del factor de perturbación $G(t)$ para policristales. En cambio, en la caracterización de monocristales con la técnica PAC, es posible medir el signo del GCE a partir de la medición de la polarización del segundo cuanto γ_2 , esto es consecuencia de que no se anule totalmente el efecto de la polarización en monocristales.