

GRUPOS DE NEUTRONES Y LA ANISOTROPIA EN LA BANDA PROHIBIDA DEL AL EN ESTADO SUPERCONDUCTOR

R. Baquero y R.A. Brito-Orta

Departamento de Física
Instituto de Ciencias de la Universidad
Autónoma de Puebla
Apdo. Postal J-48, Puebla, Pue., México

(recibido octubre 5, 1984; aceptado febrero 4, 1986)

RESUMEN

Presentamos un cálculo teórico de la dependencia con la temperatura del ancho del grupo de neutrones para el caso del Al en estado superconductor. Predecimos una estructura en la discontinuidad que puede relacionarse directamente con la anisotropía en el valor de la banda prohibida. La estructura es diferente para distintas direcciones de \vec{q} (el momento del fonón). La contribución de la superficie real de Fermi se toma en cuenta.

ABSTRACT

A realistic calculation of the temperature dependence of the width of neutron groups for the case of superconducting Al is presented. We predict a structure in the discontinuity which can be related directly to anisotropy in the band gap. The structure is different for different directions of \vec{q} (the phonon momentum). The real Fermi Surface contribution has been taken into account.

1. INTRODUCCION

La vida media de los fonones en un metal puede ser determinada mediante experimentos de dispersión de neutrones⁽¹⁾. En estos experimentos se hace uso del espectrómetro de tres ejes de Brockhouse y en ellos se hace incidir un haz de neutrones de energía y momento conocidos sobre una muestra sólida. Debido a la fuerza nuclear los neutrones se acoplan directamente al núcleo de los iones del sólido y son dispersados inelásticamente creando o destruyendo fonones. De los neutrones dispersados se seleccionan aquellos que perdieron un cierto momento \vec{q} y se mide su espectro energético; estos neutrones generaron en el sólido un fonón de momento \vec{q} y energía $\hbar\omega_{\vec{q}}$. El espectro energético de los neutrones dispersados se representa mediante una curva de intensidad vs. energía, conocida como grupo de neutrones, que está centrada alrededor de la energía $\omega_{\vec{q}}$ del fonón y tiene una cierta anchura $\Gamma_{\vec{q}}$ proporcional al inverso de la vida media del fonón en el sólido. Los cambios de $\Gamma_{\vec{q}}$ con la temperatura están relacionados entonces con la aparición o desaparición de canales de decaimiento para el fonón.

En un metal superconductor los canales de decaimiento de los fonones dependen de la magnitud y anisotropía de la banda prohibida que caracteriza al estado superconductor. Esta dependencia ha sido observada por Axe y Shirane⁽²⁾ mediante dispersión de neutrones en Nb_3Sn (ver Fig. 1). Existe entonces una relación entre las características de la banda prohibida y el ancho de los grupos de neutrones.

Debido a esta relación, las curvas de grupos de neutrones pueden servir, bajo ciertas condiciones, como una prueba experimental de la anisotropía de la banda prohibida, anisotropía que algunas veces ha sido puesta en controversia⁽³⁾.

En este trabajo hemos calculado la vida media de un fonón de energía y momento determinados en aluminio a temperaturas menores que la temperatura crítica superconductor T_c . En el cálculo hemos incluido nuestros resultados⁽⁴⁾ para la superficie de Fermi obtenidos usando el método del pseudopotencial con 4 ondas planas ortogonalizadas de Ashcroft⁽⁵⁾ y los valores de la banda prohibida del estado superconductor $\Delta_{\vec{k}}$ (donde \vec{k} es el vector de onda que caracteriza los estados electrónicos en el metal) obte-

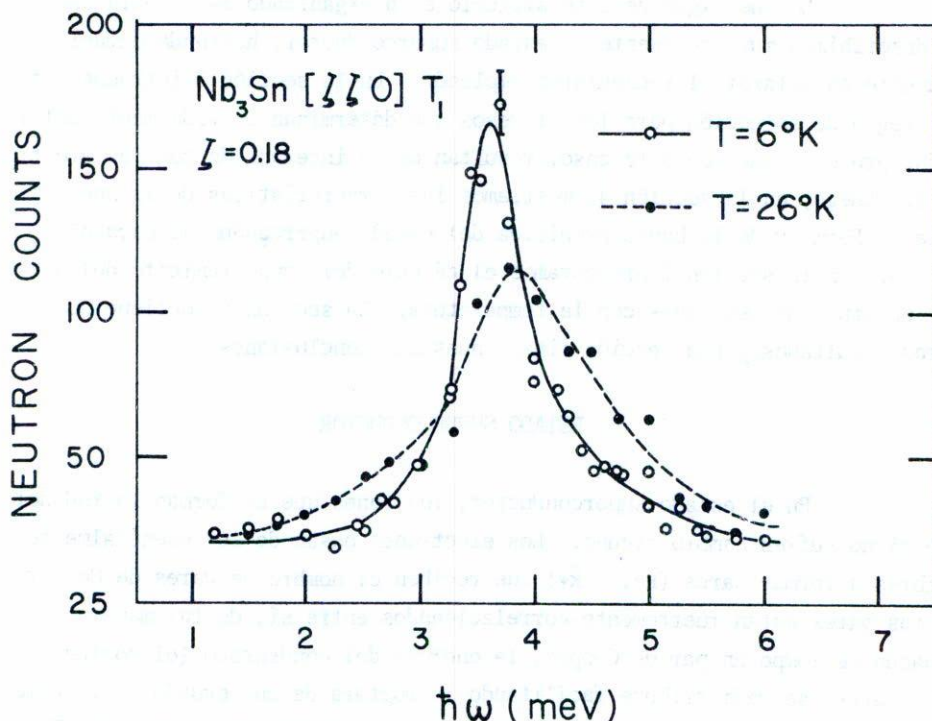


Fig. 1. Efecto de la banda prohibida del estado superconductor en el ancho de un grupo de neutrones. A $T = 6$ K el Nb_3Sn está en el estado superconductor.

nidos por Leung, Carbotte y Leavens⁽⁶⁾ iterando una linealización de las ecuaciones anisotrópicas de Eliashberg que es válida para casos, como el del aluminio, en donde la interacción electrón-fonón es débil.

En nuestro cálculo hemos tomado \vec{q} paralelo a las tres direcciones cristalinas principales y hemos analizado los resultados para identificar la influencia de la anisotropía de la superficie de Fermi y de la banda prohibida en el comportamiento del ancho de las curvas de grupos de neutrones. Concluimos que aunque la temperatura crítica del aluminio, $T_c = 1.2$ °K, hace que la precisión necesaria para obtener resultados experimentales sea inalcanzable por ahora, el tratamiento realista de este caso ilustra claramente (sin recurrir a ningún modelo) el alcance de los experimentos de grupos de neutrones en un tema en controversia.

Lo que sigue de este artículo está organizado así: en la sección 2 describimos muy brevemente el estado superconductor, haciendo énfasis únicamente en aclarar el vocabulario empleado. En la sección 3 introducimos la regla de selección para los procesos que determinan la vida media del fonón, procesos que, en este caso, resultan de la interacción con los electrones. Luego, en la sección 4, mostramos las características de la superficie de Fermi y de la banda prohibida del estado superconductor para el aluminio. En la sección 5 presentamos el cálculo del comportamiento del ancho de un grupo de neutrones con la temperatura. La sección 6 contiene nuestros resultados, y una sección final nuestras conclusiones.

2. EL ESTADO SUPERCONDUCTOR

En el estado superconductor, los iones que conforman la red del metal no sufren cambio alguno. Los electrones pasan de ser esencialmente libres a formar pares ($\vec{k}\uparrow$, $-\vec{k}\downarrow$) que reciben el nombre de Pares de Cooper. Estos pares están fuertemente correlacionados entre sí, de tal manera que, cuando se rompe un par de Cooper, la energía del condensado (el conjunto de los pares) se redistribuye facilitando la ruptura de un segundo par. Este hecho determina la dependencia de la energía de amarre de un par, $2\Delta_{\vec{k}}(T)$, con respecto a la temperatura T . Cualquier energía que quiera ser introducida al sistema electrónico que forma el condensado debe ser suficiente para "liberar" a los electrones, es decir, para hacerlos saltar la banda prohibida $\Delta_{\vec{k}}(T)$ que caracteriza al espectro de excitación de los electrones en el estado superconductor. Esta banda se encuentra simétricamente colocada con respecto a la energía de Fermi del metal, y su magnitud depende de la dirección del vector de onda \vec{k} de los electrones. A $T = 0^\circ\text{K}$, si la frecuencia de la energía de excitación enviada sobre el metal (radiación electromagnética, por ejemplo) es menor que el valor mínimo de $2\Delta_{\vec{k}}(0)$, la energía será reflejada totalmente, o bien, excitará vibraciones en los iones de la red creando fonones. Una vez creados, en esta segunda posibilidad, los fonones tendrán una vida media infinita ya que su energía será muy pequeña para pasar al sistema electrónico.

De manera similar, en los experimentos de dispersión de neutrones, los fonones creados por los neutrones dispersados decaerán sólo cuando

su energía sea igual o superior a $2\Delta_{\vec{k}}(T)$. Es por lo tanto la banda prohibida la que determina la vida media de un fonón particular y, por consiguiente, la anchura de los grupos de neutrones. Esta relación estrecha entre la anchura de los grupos de neutrones y la banda prohibida es la que hace de los experimentos de dispersión de neutrones un instrumento adecuado para tratar de medir los valores de la banda en diferentes direcciones. La precisión de estos experimentos y el intervalo de frecuencias que se puede examinar son mayores que en los experimentos de atenuación ultrasónica, proceso que está teóricamente relacionado.

3. REGLA DE SELECCION

No todos los electrones de conducción de un metal pueden absorber la energía de un fonón determinado. El proceso de interacción electrón-fonón es muy selectivo pues en él se deben conservar la energía y el momento. La energía de los fonones y la de la banda prohibida del estado superconductor son del orden de meV. En aluminio los valores de la banda prohibida son en realidad más pequeños, siendo el promedio de la banda sobre la superficie de Fermi, $\bar{\Delta}(0) \equiv \bar{\Delta}_{\vec{k}}(0)$, igual a .177 meV. Los electrones que participan en el decaimiento del fonón se encuentran sobre la superficie de Fermi y sus energías, en contraste con la de los fonones, es de unos cuantos eV. Ocurre entonces que, al absorber un fonón, la energía del electrón permanece esencialmente constante y la transición es de un sitio a otro de la superficie de Fermi. Por otro lado, la conservación de momento exige que \vec{q} , el momento del fonón, sea prácticamente tangencial a la superficie de Fermi y, por lo tanto, perpendicular al vector de onda \vec{k} del electrón.

En la Fig. 2 se muestra la región de la superficie de Fermi en donde se encuentran los estados ocupados por los electrones que pueden absorber el fonón de momento \vec{q} . Si el metal es 100% puro esta región es simplemente un cinturón máximo de ancho cero en el plano perpendicular al vector de onda del fonón. La disminución de la vida media de los electrones provocada por interacción con impurezas relajará un poco las condiciones de conservación de los procesos de interacción electrón-fonón y el ancho del cinturón aumentará al aumentar el número de impurezas en el metal. En este caso, el ancho del cinturón, que puede caracterizarse por θ , la mitad del

ángulo que subtiende, será aproximadamente igual a $1/q\lambda$, donde λ es el camino libre medio electrónico. En un metal puro λ es muy grande e θ tiende a cero.

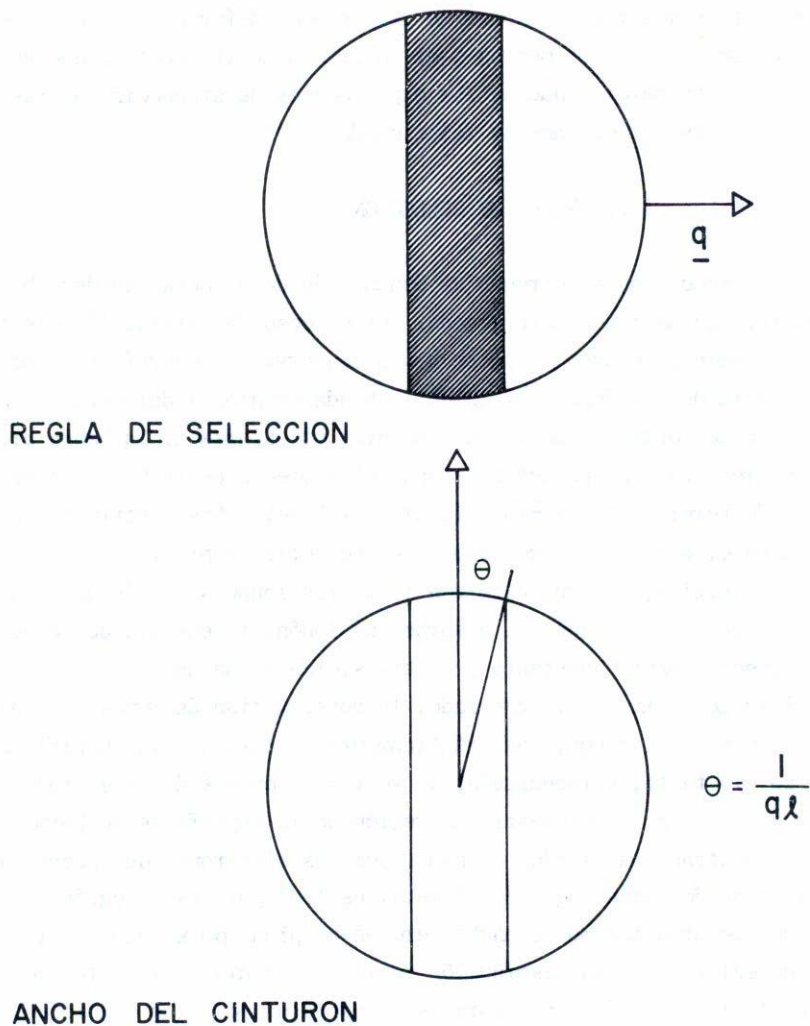


Fig. 2. Regla de selección y ancho del cinturón perpendicular a \vec{q} .

4. LA SUPERFICIE DE FERMI Y LA BANDA PROHIBIDA

El aluminio tiene una estructura cúbica centrada en las caras. Como su grupo de simetría tiene 48 elementos, es suficiente estudiar la superficie de Fermi y la banda prohibida del estado superconductor en una de las 48 zonas irreducibles. Para hacer nuestro cálculo hemos elegido la zona 1/48 que aparece en la Fig. 3 y que está delimitada por los planos $k_z = k_x$, $k_x = k_y$, y $k_y = 0$.

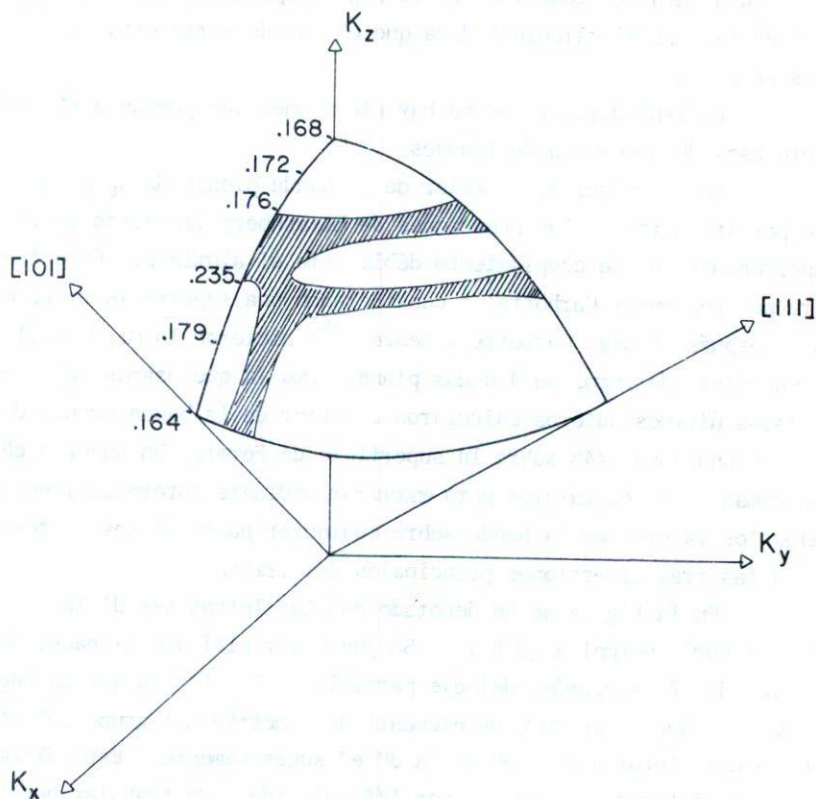


Fig. 3. Esquema de la superficie de Fermi contenida en la zona irreducible 1/48 que se usa en el cálculo. Los números dan los valores de la banda prohibida en meV en puntos contenidos por el cinturón perpendicular a $(0\ 0\ 1)$.

Veremos adelante que para calcular el ancho de los grupos de neutrones necesitamos conocer la magnitud del momento de Fermi \vec{k}_F , la densidad de estados electrónicos $N_{\vec{k}}$ y el valor de la banda prohibida $\Delta_{\vec{k}}$ para las direcciones (θ, ϕ) contenidas en los cinturones máximos de la superficie de Fermi que son perpendiculares a las tres direcciones cristalinas principales.

Hemos determinado \vec{k}_F y $N_{\vec{k}}$ usando el método de Ashcroft⁽⁵⁾ en el que los estados electrónicos se representan mediante 4 ondas planas y la interacción con los iones y los otros electrones se introduce usando un pseudopotencial. Las componentes de Fourier de este pseudopotencial fueron determinadas por Ashcroft ajustando datos experimentales sobre el efecto de Haas - Van Alphen en aluminio. En la Fig. 3 aparecen sombreadas las direcciones en las que el cálculo indica que el mar de Fermi está limitado por planos de Bragg.

En esas direcciones no hay electrones que puedan participar en los procesos de absorción de fonones.

Por otra parte, el valor de la banda prohibida $\Delta_{\vec{k}}$ puede determinarse por iteración de las ecuaciones de Eliashberg linealizadas válidas para superconductores de acoplamiento débil como el aluminio. Esto fue hecho primero por Leavens y Carbotte⁽⁷⁾ considerando una superficie de Fermi esférica. Después, Leung, Carbotte y Leavens⁽⁶⁾ hicieron lo mismo utilizando una superficie de Fermi de 4 ondas planas como la que usamos en este trabajo. Estos últimos autores calcularon el valor de la banda prohibida en 62 puntos de una zona 1/48 sobre la superficie de Fermi. En nuestro cálculo, hemos tomado esos 62 valores para encontrar mediante interpolaciones polinomiales los valores de la banda sobre cualquier punto de los cinturones normales a las tres direcciones principales del cristal.

En la Fig. 4 se ha denotado con las letras d-e-d' la cuarta parte del cinturón normal a $(0\ 0\ 1)$. Se puede ver allí que al hacer dos giros sucesivos de 60° alrededor del eje paralelo a $(1\ 1\ 1)$ (lo que da una rotación de 120° que constituye un elemento de simetría del grupo cúbico), el tramo d-e del cinturón va a e''-d y a d''-e'' sucesivamente. Esta última porción se encuentra dentro de la zona 1/48 elegida para trabajar nuestro problema. Por simetría, basta con tomar en cuenta esta porción.

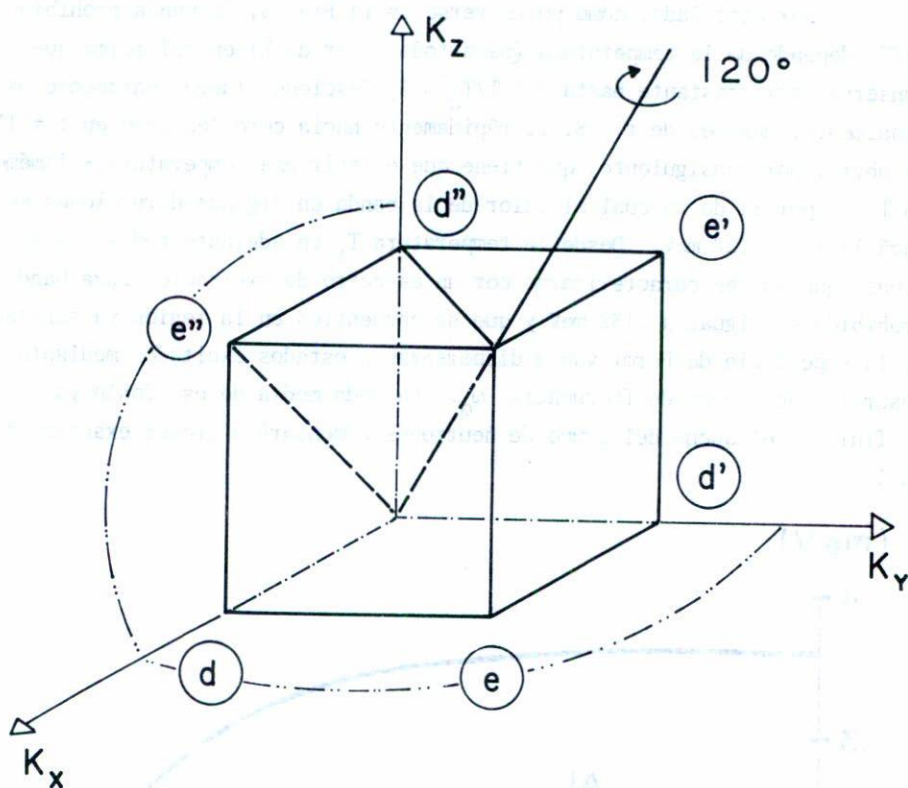


Fig. 4. La simetría del grupo cúbico y el cinturón perpendicular a $(0\ 0\ 1)$.

Regresando a la Fig. 3 podemos ilustrar la idea esencial de este trabajo. En esa figura se han incluido valores $\Delta_k^{\uparrow}(\Gamma = 0\text{ K})$ de la banda prohibida en algunos de los puntos del cinturón normal a $(0\ 0\ 1)$. Supongamos que la energía $\hbar\omega_{\vec{q}}$ del fonón sea igual a $1.5\bar{\Delta} = .265\text{ meV}$. A $T = 0^\circ\text{K}$ sólo aquellos electrones que tienen una banda prohibida de valor menor que la mitad de esa energía, es decir, menor que $.132\text{ meV}$, y que se encuentre en el cinturón perpendicular a $(0,0,1)$ pueden participar en la absorción del fonón considerado. Como en este caso no hay ningún electrón con tales características, pues el valor mínimo de la banda prohibida en la región señalada es de $.164\text{ meV}$, el fonón tendrá un tiempo de vida infinito y el ancho del grupo de neutrones co-

rrespondiente será cero.

Por otro lado, como puede verse en la Fig. 5, la banda prohibida $\Delta_{\vec{k}}(T)$ depende de la temperatura (para todo valor de \vec{k}) en tal forma que se conserva casi constante hasta $t \equiv T/T_c \sim .5$, descendiendo luego lentamente para, finalmente, después de $t \sim .8$, ir rápidamente hacia cero (es cero en $t = 1$). Es obvio, por consiguiente, que tiene que existir una temperatura -llamémosla T_i - a partir de la cual el valor de la banda en algunas direcciones se hará igual a $.132$ meV. Desde la temperatura T_i en adelante todos los electrones que pueden caracterizarse por un espectro de excitación cuya banda prohibida sea igual a $.132$ meV y que se encuentren en la región ya señalada de la superficie de Fermi van a dispersarse a estados excitados mediante la absorción del fonón de frecuencia ω_q . La vida media de ese fonón ya no será finita y el ancho del grupo de neutrones comenzará a crecer exactamente en $T = T_i$.

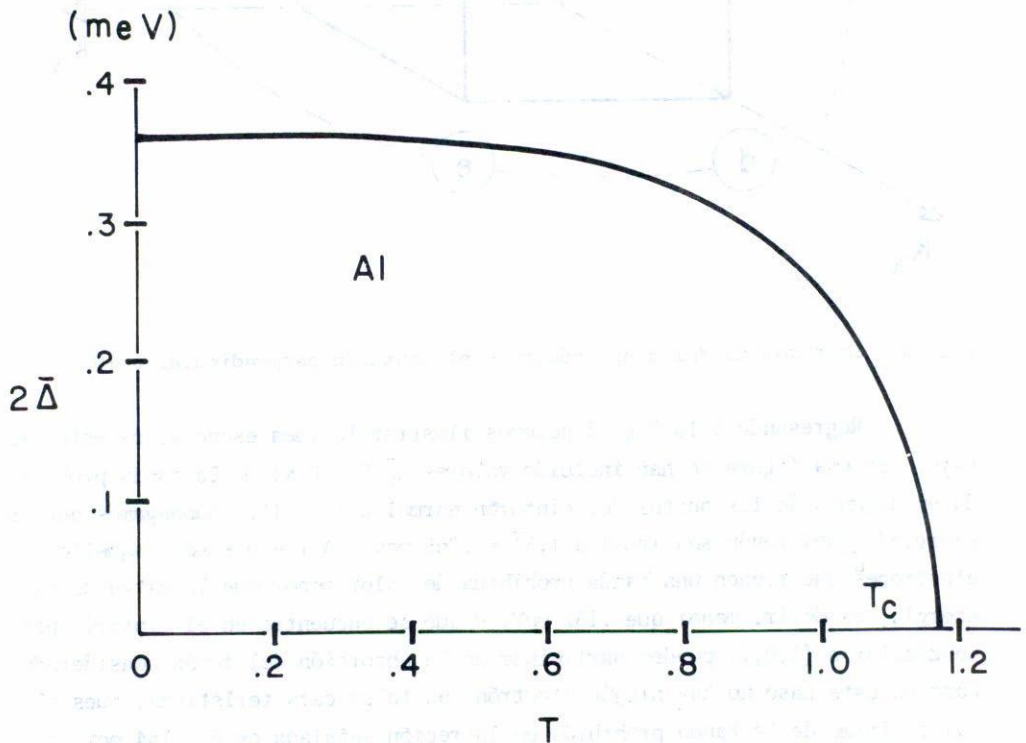


Fig. 5. La dependencia de la banda prohibida con respecto a la temperatura.

5. EL ANCHO DEL GRUPO DE NEUTRONES

El ancho del grupo de neutrones está dado, esencialmente, por la parte imaginaria del vector de polarización retardado⁽¹⁾. Trabajando el espacio fase correspondiente, obtenemos

$$\Gamma_{\vec{q}}^{(s)}(t) = 4 \sum_i W_i (I_i^{(B)} + I_i^{(A)}) \quad , \quad (1)$$

donde el superíndice (s) indica "en el estado superconductor". La suma se efectúa tomando en cuenta la regla de selección de la sección 2 y los pesos W_i son proporcionales a la densidad de estados electrónicos sobre la superficie de Fermi. La suma $\sum_i W_i$ de los pesos sobre el cinturón determinado por la regla de selección se hace igual a 1, de manera que $\Gamma_{\vec{q}}^{(s)}$ es en realidad, el valor del ancho del grupo de neutrones para una muestra superconductor dividida entre su valor para una muestra normal (en el límite $\omega \rightarrow 0$). El primer término de la derecha da la contribución de los procesos en los que el fonón interacciona con los electrones excitados térmicamente (que resultan de los pares rotos por la excitación térmica) y está dado por

$$I_i^{(B)} = \int_0^{\infty} du \frac{1}{1+e^{\tau(u^2 + \delta_i)}} \frac{1}{1+e^{\tau(u^2 + \delta_i + 1)}} \quad (2)$$

$$\times \frac{u^2 (u^2 + 2\delta_i) + u^2 + \delta_i}{(u^2 + 1) (u^2 + 2\delta_i) (u^2 + 2\delta_i + 1)^{1/2}} \quad ,$$

donde $\delta_i \equiv \Delta_i(T)/\hbar\omega_{\vec{q}}$ y $\tau \equiv \hbar\omega_{\vec{q}}/k_B T$, y k_B es la constante de Boltzmann.

Tales procesos pueden ocurrir para cualquier valor de la frecuencia del fonón y son importantes sobre todo para frecuencias pequeñas.

El segundo término de la derecha de (1) da la contribución de los procesos en los que el fonón rompe un par de Cooper. Estos procesos ocurren sólo cuando $\hbar\omega_{\vec{q}}$ es igual o mayor que el valor mínimo de $2\Delta_{\vec{k}}(T)$ y son proce-

esos que hemos descrito en las secciones anteriores. La expresión para $I_i^{(A)}$ es la siguiente:

$$I_i^{(A)} = \int_0^{\left(\frac{1}{2} - \delta_i\right)} du \left[\frac{1}{1+e^{\tau(1-u^2-\delta_i)}} + \frac{1}{1+e^{\tau(u^2+\delta_i)}} - 1 \right] \\ \times \frac{u^2(u^2+2\delta_i) - (u^2 + \delta_i)}{\left[(u^2 - 1)(u^2 + 2\delta_i)(u^2 + \delta_i - 1) \right]^{1/2}} \quad (3)$$

Para calcular $\Gamma_q^{(s)}$ hemos resuelto numéricamente las integrales que aparecen en (2) y (3) para diferentes valores de ω_q y temperaturas entre 0°K y T_c .

6. RESULTADOS

Los resultados obtenidos para $\Gamma_q^{(s)}$ están graficados en función de la temperatura en las Figs. 6, 7 y 8. Para poder apreciar mejor la contribución de la anisotropía, tanto de la superficie de Fermi como de la banda prohibida, hemos incluido en la Fig. 6 la solución teórica del problema isotrópico (curva a trazos) para el caso en el que $\hbar\omega_q = 1.5 \bar{\Delta}(0)$. Vemos allí que a temperaturas para las que $\hbar\omega_q < 2\bar{\Delta}(T)$ los únicos electrones que pueden absorber la energía del fonón son los liberados por la energía térmica ($I_i^{(A)}=0$). A temperatura $T_i = .77 T_c$ donde $2\bar{\Delta}(T_i) = \hbar\omega_q$, el fonón puede romper los pares y el ancho del grupo de neutrones aumenta en forma discreta. La curva presenta, por lo tanto, una discontinuidad en T_i para el caso isotrópico.

Esto puede contrastarse con lo que pasa al considerar la anisotropía. Por ejemplo, en la misma Fig. 6, en la que se considera \vec{q} paralelo a (1 1 1), podemos observar en la curva correspondiente a $\hbar\omega_q = 1.5 \bar{\Delta}(0)$ varias cosas interesantes. Hasta $t \approx .57$ el comportamiento es análogo al del caso isotrópico. A esa temperatura se produce una discontinuidad en la pendiente de la curva ($I_i^{(A)}$ empieza a ser diferente de cero) que indica que el fonón puede

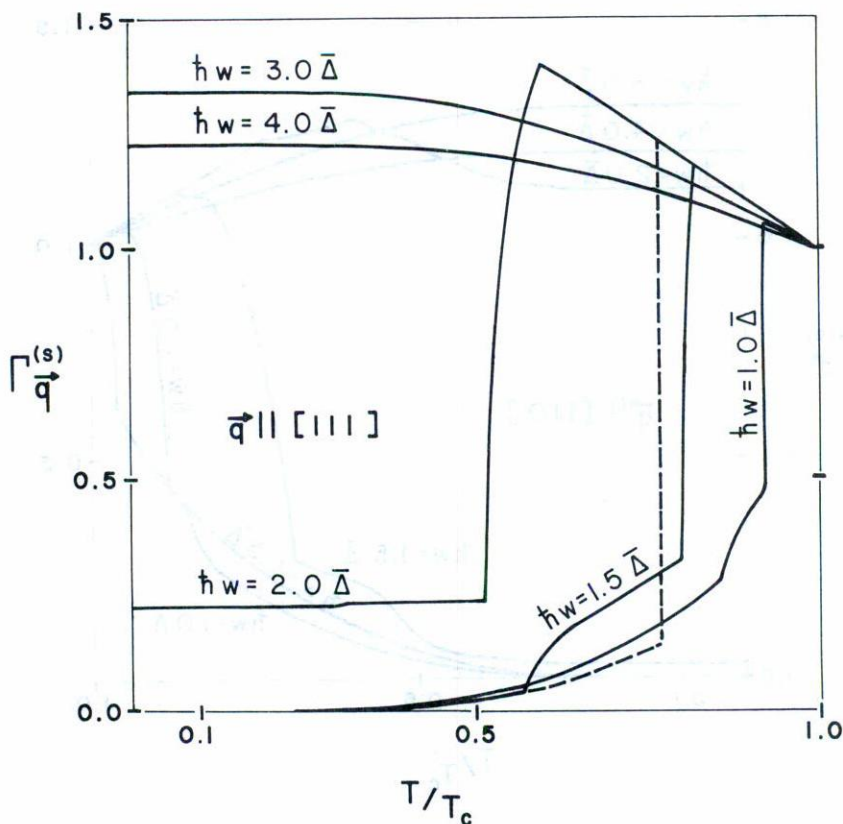


Fig. 6. El ancho del grupo de neutrones, $\Gamma_{\vec{q}}^{(s)}$, como función de la temperatura reducida, $t = T/T_c$, para \vec{q} paralelo a (1 1 1). La curva a trazos representa el caso isotrópico.

romper algunos pares. En forma continua (debido a la variación de la banda prohibida) nuevos pares pueden ser rotos y esto hace crecer el valor de $\Gamma_{\vec{q}}^{(s)}$. La disminución de la pendiente de la curva entre $t \sim 0.7$ y $t \sim 0.8$, sugiere que en alguna región de ese intervalo de temperatura no hay valores de la banda que satisfagan la relación $\hbar\omega_{\vec{q}} = 2\Delta_{\vec{k}}(T)$. En efecto, el cinturón normal a (1 1 1) puede obtenerse a partir de una tira contenida en nuestra zona 1/48 que está dividida en dos partes por una región en donde el mar de Fermi está limitado por los planos de Bragg (las regiones sombreadas de la Fig. 3). En una de esas dos partes de los valores de la banda prohibida varían en forma continua

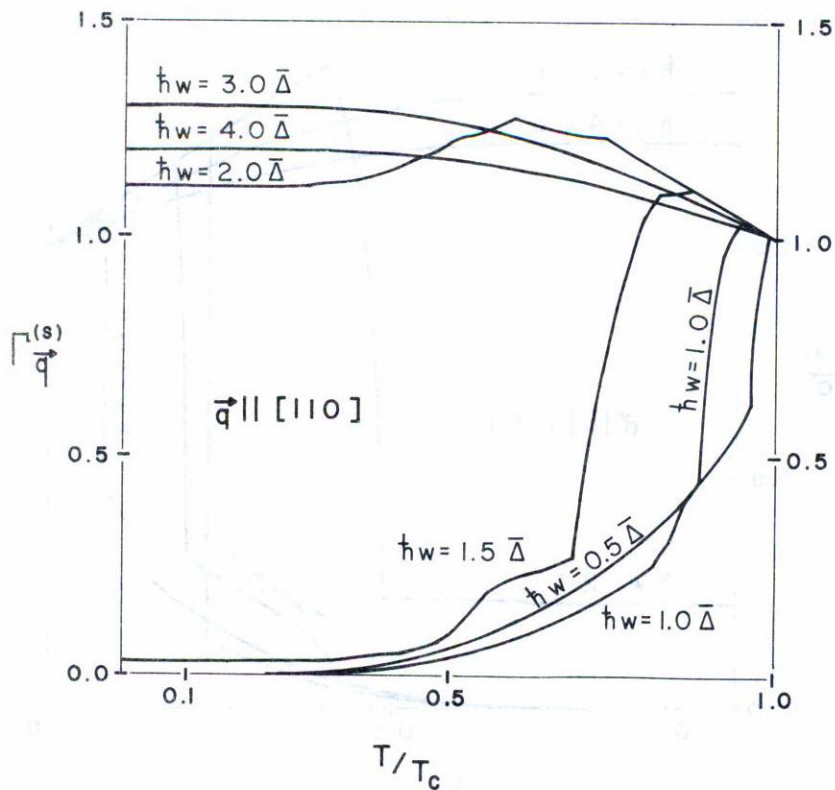


Fig. 7. El ancho del grupo de neutrones, $\Gamma_{\vec{q}}(s)$, como función de la temperatura reducida, para \vec{q} paralelo a $(1\bar{1}0)$.

de .142 meV a .180 meV y en la otra de .186 meV a .195 meV. Existe por tanto un intervalo de valores que la banda prohibida no toma. En $t \sim .8$ la pendiente vuelve a aumentar y la curva alcanza un valor máximo alrededor de $t \sim .84$. Después disminuye hasta que se hace igual a 1 en $t = 1$.

Toda la estructura que aparece en lugar de la discontinuidad se debe a la anisotropía. No ha sido observada aún experimentalmente en aluminio, aunque, como mencionamos en la introducción, se ha observado en otros materiales.

En la Fig. 7 presentamos nuestros resultados para \vec{q} paralelo a $(1\bar{1}0)$.

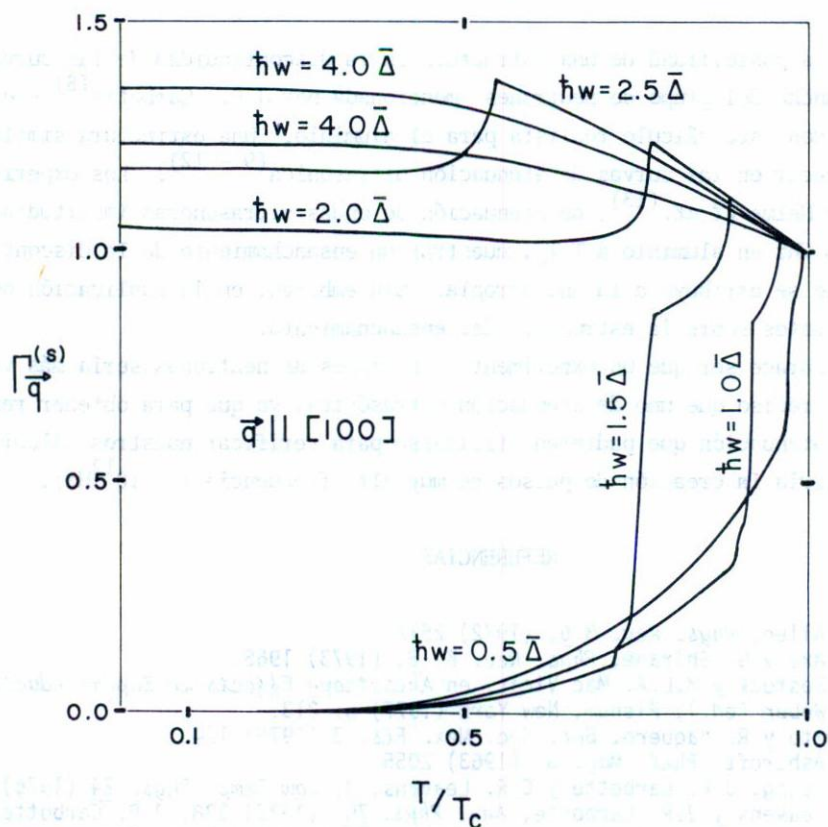


Fig. 8. El ancho del grupo de neutrones, $\Gamma_{\vec{q}}^{(s)}$, como función de la temperatura reducida, para \vec{q} paralelo a $(1^0 0)$.

La particularidad de este caso, para la misma frecuencia $\hbar\omega_{\vec{q}}^{\rightarrow} = 1.5\bar{\Delta}(0)$, es que aún a $T=0^{\circ}\text{K}$, la energía es suficiente para romper algunos pares de Cooper (el valor numérico de la banda prohibida en el cinturón involucrado es de .125 meV). Por eso, $\Gamma_{\vec{q}}^{(s)}$ no es cero y el fonón tiene una vida finita aún a $T = 0$ K. Para esta dirección no hay discontinuidad en los valores que toma la banda prohibida como ocurre en el caso anterior. De la Fig. 3 vemos que esto tampoco ocurre para la dirección $(1\ 0\ 0)$. Las diferencias entre las curvas correspondientes a las diferentes direcciones reflejan obviamente la dependencia de la banda prohibida de su posición sobre la superficie de Fermi.

7. CONCLUSIONES

La posibilidad de una estructura en la discontinuidad de las curvas para el ancho del grupo de neutrones -mencionada por J.P. Carbotte⁽⁸⁾ - es mostrada con este cálculo realista para el aluminio. Una estructura similar debe aparecer en las curvas de atenuación ultrasónica^(9 - 12). Los experimentos de Helme *et al.*⁽¹³⁾, de atenuación de ondas ultrasonoras longitudinales de 35 Ghz en aluminio a $T < T_c$, muestran un ensanchamiento de la discontinuidad que se atribuye a la anisotropía. Sin embargo, en la publicación no aparecen datos sobre la estructura del ensanchamiento.

Parace ser que un experimento con grupos de neutrones sería más variable y preciso que uno de atenuación ultrasónica, ya que para obtener resultados de atenuación que pudieran utilizarse para verificar nuestros cálculos se requeriría la creación de pulsos de muy alta frecuencia ($\sim 10^{12}$ Hz).

REFERENCIAS

1. P.B. Allen, *Phys. Rev. B* **6**, (1972) 2577.
2. J.D. Axe y G. Shirane, *Phys. Rev. B* **8**, (1973) 1965.
3. J.L. Bostock y M.L.A. Mac Vicar, en *Anisotropy Effects in Superconductors*, H.W. Weber (ed.), Plenum, New York (1977) p. 213.
4. R. Brito y R. Baquero, *Bol. Soc. Mex. Fis.* **3** (1978) 134.
5. N.W. Ashcroft, *Phil. Mag.* **8** (1963) 2055.
6. H.K. Leung, J.P. Carbotte y C.R. Leavens, *J. Low Temp. Phys.* **24** (1976) 25.
7. C.R. Leavens y J.P. Carbotte, *Ann. Phys.* **70** (1972) 338; J.P. Carbotte, en *Anisotropy Effects in Superconductors*, H.W. Weber (ed), Plenum, New York (1977), p. 183.
8. J.P. Carbotte, *Rev. Mex. Fis.* **26** (1979) 233.
9. R. Baquero y R. Brito, *Bol. Soc. Mex. Fis.* **3** (1978) 137.
10. K.M. Hong y J.P. Carbotte, *Solid State Commun.* **22** (1979) 299.
11. K.M. Hong y J.P. Carbotte, *Can. J. Phys.* **56** (1978) 1395.
12. K.R. Lyall, D.J. Meredith y E.R. Dobbs, *J. Phys. F.: Metal Phys.* **6** (1976) 807.
13. B.G.M. Helme, P.A. Hilton, D.J. Meredith y J.K. Wigmore, *J. Phys. F: Metal Phys.* **7** (1977) 427.