

Lattice energy current in solids and lattice thermal conductivity. I

Autor(en): **Choquard, Ph.**

Objektyp: **Article**

Zeitschrift: **Helvetica Physica Acta**

Band (Jahr): **36 (1963)**

Heft IV

PDF erstellt am: **11.09.2024**

Persistenter Link: <https://doi.org/10.5169/seals-113382>

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Inhalten der Zeitschriften. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern.

Die auf der Plattform e-periodica veröffentlichten Dokumente stehen für nicht-kommerzielle Zwecke in Lehre und Forschung sowie für die private Nutzung frei zur Verfügung. Einzelne Dateien oder Ausdrucke aus diesem Angebot können zusammen mit diesen Nutzungsbedingungen und den korrekten Herkunftsbezeichnungen weitergegeben werden.

Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Die systematische Speicherung von Teilen des elektronischen Angebots auf anderen Servern bedarf ebenfalls des schriftlichen Einverständnisses der Rechteinhaber.

Haftungsausschluss

Alle Angaben erfolgen ohne Gewähr für Vollständigkeit oder Richtigkeit. Es wird keine Haftung übernommen für Schäden durch die Verwendung von Informationen aus diesem Online-Angebot oder durch das Fehlen von Informationen. Dies gilt auch für Inhalte Dritter, die über dieses Angebot zugänglich sind.

Lattice Energy Current in Solids and Lattice Thermal Conductivity. I

by **Ph. Choquard**

Institut Battelle, Genève

(10. XI. 62)

Abstract: An accurate description of the non-equilibrium Lattice Properties of Solids assumes a detailed knowledge of the energy current carried by elastic waves. An analysis of this quantity is presented in this paper, where complete expressions for the harmonic and anharmonic part of the homogeneous and inhomogeneous components of the energy current are derived. A particular feature is the occurrence of a non-diagonal contribution to the homogeneous and harmonic part of the energy current. Some consequences of the features dealt with on the frequency and temperature dependence of the Lattice Thermal Conductivity are discussed, detailed calculations being referred to a forthcoming paper.

Introduction and Summary

With a view to refining the theory of some solid-state kinetic coefficients such as the Lattice Thermal Conductivity of Solids (hereafter referred to as L. T. conductivity) on the basis of modern dynamical theories of dissipative phenomena, a more exhaustive analysis of a key quantity relevant to this transport property, namely the energy current carried by elastic waves, is instrumental. This is indeed necessary when it is noticed that the standard expression known to describe this observable, an expression generally derived on the basis of qualitative arguments, corresponds only to the homogeneous and phase-independent component of the harmonic part of the energy current take into account. Derivation from first, even though elementary, principles of more complete expressions is therefore called for and has been felt worth a separate presentation considering the new features revealed by the analysis and the variety of relevant consequences.

Accordingly we devote the beginning of this paper to the establishment of a general Ansatz for the energy current flowing through a unit surface (taken as the face of unit cell) in a solid in terms of the velocities and forces experienced by its atoms, under the assumption that the atoms are confined in their cells. This Ansatz is shown to satisfy the conservation law for the energy in form of a difference equation. Next, when taking the elastic limit of the Ansatz, the expression obtained is compared and identified with the one derived in classical field theory from a general anisotropic Lagrange density. Then, following some elementary generalizations, an analysis of the inhomogeneous (space dependent) energy current is made in terms of energy-current waves. These oscillatory components are indeed necessary in investigations dealing with the wave-number dependent L. T. conductivity and more generally for treating dynamical and statistical aspects of correlation effects related to energy disturbances in solids, such as those produced by energy spikes for instance.

Next comes the introduction of elastic waves and normal modes. Since this step involves mostly well-known algebra, resulting compact expressions only are given and their major features discussed. However, owing to its particular interest, closer attention is paid to the homogeneous part of the energy current, both on its harmonic and anharmonic parts. The harmonic part is shown to consist of the usual expression (in which the occurrence of the familiar group velocity is strictly derived) and of an additional contribution involving pairs of waves of different polarizations for the same wave vector. Whereas the former is, in classical language, phase independent (quantum mechanically: diagonal), the latter is phase dependent (non diagonal). Another diagonal contribution appears also in the anharmonic part of the energy current and arises from all anharmonic terms which are even in the number of interacting waves. The formal expression for this contribution is correspondingly given.

In the next paper two consequences of the above analysis are tested within the scheme of the classical theory of the L. T. conductivity as based on KUBO's formalism.

First, since phase-dependent observables are expected to give rise to resonance phenomena, the effect on the non-diagonal harmonic energy-current on the L. T. conductivity's frequency-dependence is investigated. It is shown to yield a non-vanishing high-frequency conductivity, thus affecting qualitatively the high-frequency behavior of a thermal conductor commonly interpreted on the basis of a simple heat diffusion equation.

Secondly, since phase-independent observables predominantly affect the static part of kinetic coefficients, the effect of the diagonal part of the anharmonic energy current on the static L. T. conductivity is also investigated for a pure anharmonic solid. When dissipated through second-order, non-diagonal three-wave interactions, the diagonal quartic terms of the energy current are shown to produce a temperature-independent contribution to this transport property. This predicts a high temperature saturation of the L. T. conductivity, even for a pure crystal, as contrasted with the familiar Debye $1/T$ law.

However natural the above effects appear, their partial validity within the bulk of effects contributing to the overall thermal conductivity of solids makes them probably of more theoretical interest, except under extreme experimental conditions.

I. Lattice Energy Current

a) *Ansatz for the Lattice Energy Current*

For simplicity we consider the case of a mono-atomic simple cubic lattice with atoms bound by two-body forces. The generalization to the realistic case of poly-atomic lattices where the atoms are held by two and more body forces will prove straightforward later on.

A useful link for finding the Ansatz for the energy current is to think in terms of the power delivered from a lattice cell \mathbf{s}' to a cell \mathbf{s}'' via the interaction between the atoms located in those respective cells. Here \mathbf{s}' and \mathbf{s}'' are vectors pointing from any given origin toward the center of the cells. These powers, denoted by $P(\mathbf{s}', \mathbf{s}'')$, are partial rate of change of energies per unit time, called $\dot{E}(\mathbf{s}', \mathbf{s}'')$, which can be

expressed in terms of the velocities and forces experienced by the atoms along the following lines, essentially inspired from Peierls' original procedure*).

Let

$$\begin{aligned}\varphi(\mathbf{s}', \mathbf{s}'') &\equiv \varphi(|\mathbf{s}' - \mathbf{s}'' + \mathbf{u}_{\mathbf{s}'} - \mathbf{u}_{\mathbf{s}''}|) \\ &= \varphi(\mathbf{s}'', \mathbf{s}')\end{aligned}$$

be the interatomic potential expressed as a function of the relative displacements $\mathbf{u}_{\mathbf{s}'} - \mathbf{u}_{\mathbf{s}''}$ of the atoms located in the equilibrium position at the site \mathbf{s}' and \mathbf{s}'' . The lattice energy is given by

$$E = \sum_{\mathbf{s}'} \frac{1}{2} m \dot{\mathbf{u}}_{\mathbf{s}'}^2 + \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{s}' \mathbf{s}''} \varphi(\mathbf{s}', \mathbf{s}'').$$

In computing its rate of change per unit time, rate which is obviously zero, the second order time derivatives of the atomic displacements which occur can be eliminated with the aid of the equations of motion. For the α -th ($\alpha = 1, 2, 3$) component of the atomic displacement $\mathbf{u}_{\mathbf{s}'}$, it reads:

$$\begin{aligned}m \ddot{u}_{\mathbf{s}', \alpha} &= - \frac{\partial}{\partial u_{\mathbf{s}', \alpha}} \sum_{\mathbf{s}''} \varphi(\mathbf{s}', \mathbf{s}'') \\ &= - \sum_{\mathbf{s}''} \frac{\partial}{\partial (u_{\mathbf{s}', \alpha} - u_{\mathbf{s}'', \alpha})} \varphi(\mathbf{s}', \mathbf{s}'') \\ &\equiv \sum_{\mathbf{s}''} F_{\alpha}(\mathbf{s}', \mathbf{s}'').\end{aligned}$$

Partial forces have been introduced and defined by

$$F_{\alpha}(\mathbf{s}', \mathbf{s}'') \equiv - \frac{\partial}{\partial (u_{\mathbf{s}', \alpha} - u_{\mathbf{s}'', \alpha})} \varphi(\mathbf{s}', \mathbf{s}''). \quad (1)$$

One has then

$$\begin{aligned}0 = \dot{E} &= \sum_{\alpha=1}^3 \left\{ \sum_{\mathbf{s}'} m u_{\mathbf{s}', \alpha} \ddot{u}_{\mathbf{s}', \alpha} + \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{s}' \mathbf{s}''} (\dot{u}_{\mathbf{s}', \alpha} - \dot{u}_{\mathbf{s}'', \alpha}) (-) F_{\alpha}(\mathbf{s}', \mathbf{s}'') \right\} \\ &= \sum_{\alpha=1}^3 \sum_{\mathbf{s}', \mathbf{s}''} \left\{ \dot{u}_{\mathbf{s}', \alpha} F_{\alpha}(\mathbf{s}', \mathbf{s}'') - \frac{1}{2} (\dot{u}_{\mathbf{s}', \alpha} - \dot{u}_{\mathbf{s}'', \alpha}) F_{\alpha}(\mathbf{s}', \mathbf{s}'') \right\} \\ &= \sum_{\alpha=1}^3 \sum_{\mathbf{s}', \mathbf{s}''} \frac{1}{2} (\dot{u}_{\mathbf{s}', \alpha} + \dot{u}_{\mathbf{s}'', \alpha}) F_{\alpha}(\mathbf{s}', \mathbf{s}'') \\ &\equiv \sum_{\mathbf{s}' \mathbf{s}''} \dot{E}(\mathbf{s}', \mathbf{s}'') = \sum_{\mathbf{s}' \mathbf{s}''} P(\mathbf{s}', \mathbf{s}'').\end{aligned}$$

In the above identity, partial rates of change of energies have been introduced and defined by the relation

$$\dot{E}(\mathbf{s}', \mathbf{s}'') = P(\mathbf{s}', \mathbf{s}'') \equiv \sum_{\alpha=1}^3 \frac{1}{2} (\dot{u}_{\mathbf{s}', \alpha} + \dot{u}_{\mathbf{s}'', \alpha}) F_{\alpha}(\mathbf{s}', \mathbf{s}''). \quad (2)$$

*) R. E. PEIERLS: Annalen der Physik 3, 1060, 1929. Well suited to our purpose we favor this discrete lattice approach although another procedure might be followed along the lines indicated by J. G. KIRKWOOD: J. of Chem. Phys. 14, 180, 1946.

These quantities satisfy the obvious but important antisymmetry relation:

$$P(\mathbf{s}', \mathbf{s}'') + P(\mathbf{s}'', \mathbf{s}') = 0. \quad (2')$$

They serve in particular to express in a properly symmetrized manner the rate of change of the energy contained in an arbitrary portion of the lattice. Imagine for this a portion I of the crystal surrounded by a portion II, the rest of it; one has indeed:

$$\dot{E}_I = -\dot{E}_{II} = \sum_{\mathbf{s}' \in I} \sum_{\mathbf{s}'' \in II} P(\mathbf{s}', \mathbf{s}'').$$

If in particular the portion I is reduced to one cell, labelled with the vector \mathbf{s} , one has

$$\dot{E}(\mathbf{s}) = \sum_{\mathbf{s}'} P(\mathbf{s}, \mathbf{s}'), \quad (3)$$

no restriction on the summation over \mathbf{s}' being necessary since $P(\mathbf{s}, \mathbf{s}) = 0$.

We can now proceed to establish the Ansatz for the energy current. Let us do that inductively in starting with the one-dimensional case. Consider a cell s in a chain of lattice constant a ; the total power delivered across the edge located at $s + a/2$, from left to right say, is obviously given by

$$\sum_{s' \leq s} \sum_{s'' > s} P(s', s'').$$

It is now natural to associate an energy current $Q(s + a/2)$ flowing in the same direction as being proportional to (-1) times this power; the current having the dimension of energy times velocity or power times length, we may choose the proportionality constant as a and check later on whether this choice is correct. We set therefore

$$Q(s + a/2) = -a \sum_{s' \leq s} \sum_{s'' > s} P(s', s''). \quad (4)$$

In order to check the conservation law for the energy, we consider also the current flowing from left to right, through the edge of the cell s located at $s - a/2$, namely

$$Q(s - a/2) = -a \sum_{s' \leq s-a} \sum_{s'' > s-a} P(s', s'')$$

and we form the difference of the two currents. There appears a one-by-one cancellation of all the terms for which the segment $s'' - s'$ crosses both edges. There obviously remains the contributions from what leaves the cell s minus what enters in it; i.e. with s' or $s'' = s$, $s'' - s' = r$ and the antisymmetry property (2')

$$\left. \begin{aligned} \frac{1}{a} \Delta Q(s) &= - \sum_{r > 0} \{P(s, s+r) - P(s-r, s)\} \\ &= - \sum_{r > 0} \{P(s, s+r) + P(s, s-r)\} \\ &= - \sum_{r \geq 0} P(s, s+r) = - \sum_{s'} P(s, s') \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

or, with equation (3)

$$\boxed{\frac{1}{a} \Delta Q(s) = -\dot{E}(s)}. \quad (5')$$

The continuity equation is satisfied in a difference form. This difference in the l. h. s. goes over to the usual differential at the limit $a \rightarrow 0$, thus fixing the choice for the proportionality constant a . It is convenient to rewrite the definition (4) in terms of the variables $r = s'' - s'$ and $t = s - s'$, variables which convey the effect of nearest neighbor, next-nearest-neighbor interaction and so on. We then have

$$Q(s) = -a \sum_{r>0} \sum_{t=0}^{r-a} P(s-t, s-t+r) \quad (4')$$

and notice that for a given distance r , there are r/a contributions corresponding to the possible origins $s' = s - t$ of the partial powers, origins which are located in the center of cells belonging to a rectangle of surface $r \cdot a$ drawn from the right-hand edge of the cell s to the left.

For the two-dimensional case we consider in a square lattice of basis vectors $\mathbf{a}_1 = (a, 0)$ and $\mathbf{a}_2 = (0, a)$ the current Q_1 flowing in the direction 1, say, through the right-hand edge of the lattice cell s . This current is given by a double sum of partial powers $P(s', s'')$ over pairs of cells (s', s'') such that the vector $s'' - s'$ crosses the edge. Introducing again the now vector variables $\mathbf{r} = s'' - s'$ and $\mathbf{t} = s - s'$, then, for a given \mathbf{r} , of components r_1, r_2 , there are as many contributions as origins of partial powers located in the center of cells which are found in a parallelogram drawn from the right-hand edge of cell s in the direction $-\mathbf{r}$. The surface of this parallelogram being $r_1 a$, this number amounts exactly to $r_1 a/a^2 = r_1/a$. We notice also that, r_1 being positive, for $r_1 > |r_2|$ there is a contribution to the current from the cell s , whereas for $r_1 < |r_2|$ there is no contribution from that cell. Finally, if $r_1 = r_2$, we adopt a convention in order not to count twice (i.e. in Q_1 and Q_2) the contributions from the diagonals: either in introducing a weight factor of 1/2 or in association each corner of the cell s to one edge. With these remarks we can write

$$Q_1(s) = -a \sum_{r(1)} \sum_{t(r)} P(s-t, s-t+r) \quad (4'')$$

where $r(1)$ means that one has to sum over the half plane with $r_1 > 0$. The conservation law for the energy is checked in forming the appropriate combination of four current components, namely

$$Q_1\left(s_1 + \frac{a}{2}, s_2\right) - Q_1\left(s_1 - \frac{a}{2}, s_2\right) + Q_2\left(s_1, s_2 + \frac{a}{2}\right) - Q_2\left(s_1, s_2 - \frac{a}{2}\right).$$

Mutual cancellation of terms is first checked for a given \mathbf{r} ; then taking into account the above remarks and the antisymmetry property (2'), this difference is seen to yield:

$$\frac{1}{a} (\Delta_1 Q_1 + \Delta_2 Q_2) = - \sum_{\mathbf{r}} P(s, s+\mathbf{r}) = -\dot{E}(s) \quad (5'')$$

where the summation over \mathbf{r} now extends over the whole plane. The limit $a \rightarrow 0$ applied on the l. h. s. yields, as expected, $\text{div } \mathbf{Q}$. In the three-dimensional case no new feature appears, and we can write for the ν -th component ($\nu = 1, 2, 3$) of the current flowing through the face of the cubic cell, which is normal to the direction ν

$$\boxed{Q_\nu(s) = -a \sum_{r(\nu)} \sum_{t(r)} P(s-t, s-t+r)} \quad (4''')$$

where again, for a given \mathbf{r} , the number of contributing partial powers amounts to $r_\nu \cdot a^2/a^3 = r_\nu/a$. The symbol $\mathbf{r}(\nu)$ means that one has to sum over the half-space with $r_\nu > 0$. In this case, the continuity equation reads, in difference form

$$\boxed{\frac{1}{a} \sum_{\nu=1}^3 \Delta_\nu Q_\nu(\mathbf{s}) = -\dot{E}(\mathbf{s})} \quad (5''')$$

b) *Elastic limit*

From the above definition of the current flowing through the face of an elementary cell we easily get the definition of the energy current density $\mathbf{g}(\mathbf{s})$, namely

$$\mathbf{g}_\nu(\mathbf{s}) = \frac{1}{a^3} Q_\nu(\mathbf{s}) = -\frac{1}{a^2} \sum_{\mathbf{r}(\nu)} \sum_{\mathbf{t}(\mathbf{r})} P(\mathbf{s} - \mathbf{t}, \mathbf{s} - \mathbf{t} + \mathbf{r}) \quad (6)$$

It is instructive at this stage to carry out the elastic limit of equation (6). Starting with equation (2) for the partial power

$$P(\mathbf{s}', \mathbf{s}'') = \sum_{\alpha=1}^3 \frac{1}{2} (\dot{u}_{\mathbf{s}', \alpha} + \dot{u}_{\mathbf{s}'', \alpha}) F_\alpha(\mathbf{s}', \mathbf{s}'') \quad (2)$$

we take the harmonic approximation for the partial forces, which yields, according to equation (1),

$$F_\alpha(\mathbf{s}', \mathbf{s}'') = -\sum_{\alpha'=1}^3 \varphi_{\alpha\alpha'}(\mathbf{s}' - \mathbf{s}'') \cdot (\mathbf{u}_{\mathbf{s}', \alpha'} - \mathbf{u}_{\mathbf{s}'', \alpha'})$$

where

$$\varphi_{\alpha\alpha'}(\mathbf{r}) \equiv \frac{\partial^2}{\partial r_\alpha \partial r_{\alpha'}} \varphi(\mathbf{r}) \quad (7)$$

and then pick first order contributions in the time and space derivatives of the atomic displacements $\mathbf{u}_{\mathbf{s}'}, \mathbf{u}_{\mathbf{s}''}$ expanded around their value at the site \mathbf{s} . This gives

$$\begin{aligned} \mathbf{u}_{\mathbf{s}', \alpha} - \mathbf{u}_{\mathbf{s}'', \alpha'} &\cong -\sum_{\nu'=1}^3 r_{\nu'} \frac{\partial}{\partial s_{\nu'}} \mathbf{u}_{\mathbf{s}, \alpha'} \\ \frac{1}{2} (\dot{u}_{\mathbf{s}', \alpha} + \dot{u}_{\mathbf{s}'', \alpha}) &\cong \dot{u}_{\mathbf{s}, \alpha} \end{aligned}$$

and leads to

$$\mathbf{g}_\nu(\mathbf{s}) = -\frac{a}{a^3} \sum_{\alpha\alpha'\nu'} \sum_{\mathbf{r}(\nu)} \sum_{\mathbf{t}(\mathbf{r})} \dot{u}_{\mathbf{s}, \alpha'} \varphi_{\alpha\alpha'}(\mathbf{r}) r_{\nu'} \frac{\partial}{\partial s_{\nu'}} \mathbf{u}_{\mathbf{s}, \alpha'} \quad (8)$$

The summation over $\mathbf{t}(\mathbf{r})$ can be carried out since it appears as dummy variable. It amounts to the important number r_ν/a , so that

$$\mathbf{g}_\nu(\mathbf{s}) = -\frac{1}{a^3} \sum_{\alpha\alpha'\nu'} \sum_{\mathbf{r}(\nu)} \dot{u}_{\mathbf{s}, \alpha} r_\nu \varphi_{\alpha\alpha'}(\mathbf{r}) r_{\nu'} \frac{\partial}{\partial s_{\nu'}} \mathbf{u}_{\mathbf{s}, \alpha'}$$

The summation over $\mathbf{r}(\nu)$ can also be performed. Introducing the tensor of elastic energy constants

$$\left. \begin{aligned} \gamma_{\alpha\alpha'}^{\nu\nu'} &\equiv \frac{1}{a^3} \sum_{\mathbf{r}(\nu)} r_\nu \varphi_{\alpha\alpha'}(\mathbf{r}) r_\nu \\ &= \frac{1}{a^3} \cdot \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{r}} r_\nu \varphi_{\alpha\alpha'}(\mathbf{r}) r_{\nu'} \end{aligned} \right\} \quad (9)$$

owing to obvious symmetry properties; finally we get

$$\boxed{g_\nu(\mathbf{s}) = - \sum_{\alpha\alpha'\nu'} \dot{u}_{s,\alpha} \gamma_{\alpha\alpha'}^{\nu\nu'} \frac{\partial}{\partial s_{\nu'}} u_{s,\alpha'}} \quad (8')$$

We ought to compare this expression with the one derived in classical field theory from the corresponding Lagrange density. Going to the elastic limit in the potential energy we get, in setting $\mathbf{s}'' = \mathbf{s}' + \mathbf{r}$, $\mathbf{s}' = \mathbf{s}$, the following expression for the potential energy density

$$v(\mathbf{s}) = \frac{1}{2} \sum_{\substack{\alpha\alpha' \\ \nu\nu'}} \left\{ \frac{1}{2a^3} \sum_{\mathbf{r}} \varphi_{\alpha\alpha'}(\mathbf{r}) r_\nu r_{\nu'} \right\} \frac{\partial u_{s,\alpha}}{\partial r_\nu} \cdot \frac{\partial u_{s,\alpha'}}{\partial r_{\nu'}}$$

with equation (9)

$$v(\mathbf{s}) = \frac{1}{2} \sum_{\substack{\alpha\alpha' \\ \nu\nu'}} \gamma_{\alpha\alpha'}^{\nu\nu'} \frac{\partial u_{s,\alpha}}{\partial r_\nu} \cdot \frac{\partial u_{s,\alpha'}}{\partial r_{\nu'}}$$

Now with $\rho = m/a^3$ the anisotropic Lagrange density reads

$$L(\mathbf{s}) = \frac{1}{2} \sum_{\alpha} \rho \dot{u}_{s,\alpha}^2 - \frac{1}{2} \sum_{\substack{\alpha\alpha' \\ \nu\nu'}} \gamma_{\alpha\alpha'}^{\nu\nu'} \frac{\partial u_{s,\alpha}}{\partial s_\nu} \cdot \frac{\partial u_{s,\alpha'}}{\partial s_{\nu'}}$$

from which is derived the expression for the energy current density*)

$$\begin{aligned} g_\nu(\mathbf{s}) &= \sum_{\alpha} \dot{u}_{s,\alpha} \frac{\partial L(\mathbf{s})}{\partial \frac{\partial u_{s,\alpha}}{\partial s_\nu}} \\ &= - \sum_{\alpha\alpha'\nu'} \dot{u}_{s,\alpha} \gamma_{\alpha\alpha'}^{\nu\nu'} \frac{\partial u_{s,\alpha'}}{\partial s_{\nu'}} \end{aligned}$$

which means exactly equation (8').

c) Generalizations

Equation (4''') can readily be extended to those cases where many-body forces cannot be neglected. Consider for illustration 3-body forces. If they are derived from a potential energy of the form

$$V^{(3)} = \frac{1}{3!} \sum_{s', s'', s'''} \varphi(s', s'', s'''),$$

*) G. WENTZEL: *Einführung in die Quantentheorie der Wellenfelder* (F. Deuticke, Wien 1943), equation (2.2) p. 8. For the purpose of comparison, we find it more appropriate to work with the unsymmetrized strain tensor than with its symmetrized and antisymmetrized components more familiar in elasticity theory.

partial powers, depending upon 3 sites, can be defined as follow

$$P(\mathbf{s}', \mathbf{s}'', \mathbf{s}''') = \sum_{\alpha} \left(-3 \dot{u}_{\mathbf{s}', \alpha} \frac{\partial}{\partial s'_{\alpha}} + \dot{u}_{\mathbf{s}', \alpha} \frac{\partial}{\partial s'_{\alpha}} + \dot{u}_{\mathbf{s}'', \alpha} \frac{\partial}{\partial s''_{\alpha}} + \dot{u}_{\mathbf{s}'', \alpha} \frac{\partial}{\partial s''_{\alpha}} \right) \frac{1}{3!} \varphi(\mathbf{s}', \mathbf{s}'', \mathbf{s}''').$$

Their contribution to the energy current, $Q_{\nu}(\mathbf{s} | \text{3-body})$, can be expressed as a sum over a triplet of sites $(\mathbf{s}', \mathbf{s}'', \mathbf{s}''')$ such that the vectors $\mathbf{s}'' - \mathbf{s}'$ and $\mathbf{s}''' - \mathbf{s}'$ or $\mathbf{s}''' - \mathbf{s}''$ cross the face of the cell normal to the direction ν . In addition to the variables $\mathbf{r} = \mathbf{s}'' - \mathbf{s}'$, $\mathbf{t} = \mathbf{s} - \mathbf{s}'$, one introduces a third variable $\mathbf{z} = \mathbf{s}''' - \mathbf{s}''$ so that

$$Q_{\nu}(\mathbf{s} | \text{3-body}) = -a \sum_{\mathbf{r}(\nu)} \sum_{\mathbf{t}(\mathbf{r})} \sum_{\mathbf{z}(\mathbf{t}, \mathbf{r})} P(\mathbf{s} - \mathbf{t}, \mathbf{s} - \mathbf{t} + \mathbf{r}, \mathbf{s} - \mathbf{t} + \mathbf{r} + \mathbf{z}),$$

the domain of summation of \mathbf{z} consisting of two interpenetrating skew pyramids of vertices \mathbf{s}' , \mathbf{s}'' intersecting at the face of the cell \mathbf{s} normal to the direction ν .

Finally the generalization of equation (4''') to the case of polyatomic lattices is obvious. One has indeed to introduce partial powers depending not only upon the sites but also upon the indices of the atoms in the sites, and sum over pairs (or triplets) such that $P(\mathbf{s}', \mathbf{s}'')$ entering the above formulae becomes, in the case of e.g. two-body forces:

$$P(\mathbf{s}', \mathbf{s}'') = \sum_{n', n''=1}^{n_0} P_{n', n''}(\mathbf{s}', \mathbf{s}''),$$

n_0 being the number of atoms per cell, with

$$P_{n', n''}(\mathbf{s}', \mathbf{s}'') = \sum_{\alpha} \frac{1}{2} (\dot{u}_{\mathbf{s}', n', \alpha} + \dot{u}_{\mathbf{s}'', n'', \alpha}) F_{\alpha, n', n''}(\mathbf{s}', \mathbf{s}'')$$

and

$$F_{\alpha, n', n''}(\mathbf{s}', \mathbf{s}'') = - \frac{\partial}{\partial (u_{\mathbf{s}', n', \alpha} - u_{\mathbf{s}'', n'', \alpha})} \varphi_{n', n''}(\mathbf{s}', \mathbf{s}'').$$

As detailed calculations have shown that no new feature was introduced by these generalizations except the one already revealed by the model case, further development will be made on the basis of the mono-atomic three-dimensional case, which obviously simplifies notations.

d) Energy-current waves

The relations established so far are expressed as functions of the lattice site \mathbf{s} . In view of future studies on correlation effects related to energy disturbances in solids, it is natural to derive dual expressions as functions of a wave number \mathbf{k} belonging to the first Brillouin zone of the reciprocal lattice. For this, we start again from equation (4''')

$$Q_{\nu}(\mathbf{s}) = -a \sum_{\mathbf{r}(\nu)} \sum_{\mathbf{t}(\mathbf{r})} P(\mathbf{s} - \mathbf{t}, \mathbf{s} - \mathbf{t} + \mathbf{r}) \quad (4'''')$$

and analyse the partial powers as follows

$$P(\mathbf{s}', \mathbf{s}'') = P(\mathbf{s}', \mathbf{s}' + \mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k}\mathbf{s}'} P(\mathbf{k}, \mathbf{r}) \quad (10)$$

with

$$P(\mathbf{k}, \mathbf{r}) = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{s}'} e^{-i\mathbf{k}\mathbf{s}'} P(\mathbf{s}', \mathbf{s}' + \mathbf{r}) = P^*(-\mathbf{k}, \mathbf{r}), \tag{11}$$

the asterisk meaning complex conjugate.

Introduction of (10) in (4''') yields, with $\mathbf{s}' = \mathbf{s} - \mathbf{t}$

$$Q_\nu(\mathbf{s}) = -a \sum_{\mathbf{k}} \sum_{\mathbf{r}(\nu)} \sum_{\mathbf{t}(\mathbf{r})} e^{i\mathbf{k}(\mathbf{s}-\mathbf{t})} P(\mathbf{k}, \mathbf{r}).$$

This transformation enables an independent summation over $\mathbf{t}(\mathbf{r})$, for which we introduce a function

$$\theta_\nu(\mathbf{k}, \mathbf{r}) \equiv a \sum_{\mathbf{t}(\mathbf{r})} e^{-i\mathbf{k}\mathbf{t}}. \tag{12}$$

In particular

$$\theta_\nu(0, \mathbf{r}) = r_\nu. \tag{12'}$$

With this definition, we obtain

$$Q_\nu(\mathbf{s}) = \sum_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k}\mathbf{s}} (-1) \sum_{\mathbf{r}(\nu)} \theta_\nu(\mathbf{k}, \mathbf{r}) P(\mathbf{k}, \mathbf{r}). \tag{13}$$

Besides, we can introduce energy-current waves of amplitude $Q_\nu(\mathbf{k})$ by the decomposition

$$Q_\nu(\mathbf{s}) = \sum_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k}\mathbf{s}} Q_\nu(\mathbf{k}) \tag{14}$$

with

$$Q_\nu(\mathbf{k}) = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{s}} e^{-i\mathbf{k}\mathbf{s}} Q_\nu(\mathbf{s}) = Q_\nu^*(-\mathbf{k}). \tag{15}$$

Substitution of (14) in (13) gives the general relation between the amplitude of the energy-current wave and the partial-power waves

$$\boxed{Q_\nu(\mathbf{k}) = (-1) \sum_{\mathbf{r}(\nu)} \theta_\nu(\mathbf{k}, \mathbf{r}) P(\mathbf{k}, \mathbf{r}).} \tag{16}$$

From equation (16) one can easily go to the long-wave limit. The converse however would not be so trivial, and in this respect the above relation may be instrumental in studying the dynamics of the short-wave spectrum of highly localized energy fluctuations in crystalline lattices. We can close this part of our analysis in writing the continuity equation (5''') in \mathbf{k} space. With

$$\dot{E}(\mathbf{k}) = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{s}} e^{-i\mathbf{k}\mathbf{s}} \dot{E}(\mathbf{s})$$

and

$$\Delta_\nu Q_\nu(\mathbf{s}) \rightarrow (1 - e^{-ik_\nu a}) Q_\nu(\mathbf{k})$$

the continuity equation reads, always for our simple cubic lattice

$$\boxed{E(\mathbf{k}) + \sum_{\nu=1}^3 \frac{1}{a} (1 - e^{-ik_\nu a}) Q_\nu(\mathbf{k}) = 0.} \tag{17}$$

e) *Introduction of lattice waves*

Although wave-number dependent, the components $Q_\nu(\mathbf{k})$ are still functions of the atomic displacements and their time derivatives in the \mathbf{s} representation. Introduction of lattice waves and normal modes is therefore the next step with which to proceed. Since this step involves mostly standard calculations, these will not be reproduced here in details. The nature of the general component $Q_\nu(\mathbf{k})$ will be described and closer attention paid to the steady component $Q_\nu(0)$ owing to its particular interest.

Expansion of the interatomic potential in powers of the atomic displacement followed by the introduction of the amplitude $w_p(\mathbf{q})$ of the mode of wave vector \mathbf{q} and polarization p through the usual transformation

$$u_{s,\alpha} = \frac{1}{\sqrt{mN}} \sum_{\mathbf{q},p} e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{s}} X_\alpha^p(\mathbf{q}) w_{\mathbf{q},p}, \quad (18)$$

where $X_\alpha^p(\mathbf{q})$ are the elements of the polarization matrix, yields the well-known expression for the energy of an anharmonic solid which can be written in compact tensor forms as follows

$$E = \frac{1}{2} \dot{w} \cdot \dot{w}^* + \frac{1}{2} \frac{\Delta_2}{N} \Phi_2 : w \cdot w + \frac{1}{3!} \frac{\Delta_3}{N^{3/2}} \Phi_3 : w \cdot w \cdot w + \dots \quad (19)$$

Here w is a tensor of rank 1 with $3(N-1)$ components $w_p(\mathbf{q})$, and Φ_n a tensor of rank n containing a sum over n space variables of multiple derivatives of order n of the crystal potential, multiplied by a n -product of elements of polarization matrices $X_\alpha^p(\mathbf{q})$; $\Delta_n \equiv \Delta(\mathbf{q})$ with $\mathbf{q} = \mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2 + \dots + \mathbf{q}_n$ and $\Delta(\mathbf{q})$ is the function familiar in lattice dynamics, namely

$$\Delta(\mathbf{q}) = \sum_{\mathbf{s}} e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{s}} = \begin{cases} N & \mathbf{q} = 0, 2\pi\boldsymbol{\tau} \\ 0 & \text{otherwise} \end{cases}$$

$\boldsymbol{\tau}$ being any vector in the reciprocal lattice. The harmonic part of the potential energy reads in particular

$$\begin{aligned} & \frac{1}{2} \frac{\Delta_2}{N} \Phi_2 : w \cdot w \\ &= \frac{1}{2} \sum_{\substack{\mathbf{q}, \mathbf{q}' \\ p, p'}} \frac{\Delta(\mathbf{q} + \mathbf{q}')}{N} \sum_{\alpha, \alpha'} \left[\frac{1}{2} \sum_{\mathbf{r}} \frac{\varphi_{\alpha\alpha'}(\mathbf{r})}{m} (1 - e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}}) (1 - e^{i\mathbf{q}'\cdot\mathbf{r}}) \right] \cdot X_\alpha^p(\mathbf{q}) \cdot X_{\alpha'}^{p'}(\mathbf{q}') \cdot w_{\mathbf{q},p} \cdot w_{\mathbf{q}',p'} \\ &= \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{q},p} \lambda_{\mathbf{q},p} w_{\mathbf{q},p} w_{\mathbf{q},p}^* \end{aligned}$$

since its diagonal, with the eigenvalues

$$\delta_{p,p'} \lambda_{\mathbf{q},p} = \delta_{p,p'} \omega_{\mathbf{q},p}^2 = \sum_{\alpha, \alpha'} \left[\frac{1}{2} \sum_{\mathbf{r}} \frac{\varphi_{\alpha\alpha'}(\mathbf{r})}{m} (2 - 2 \cos \mathbf{q}\cdot\mathbf{r}) \right] X_\alpha^p(\mathbf{q}) X_{\alpha'}^{p'}(\mathbf{q}). \quad (20)$$

It will be convenient to rewrite this bilinear expression in matrix form instead of tensor form. w becomes a column vector with $3(N-1)$ components, w^+ its hermitian conjugate, λ a diagonal matrix; introducing a definition for the quantity in parenthesis, namely

$$A_{\alpha\alpha'}(\mathbf{q}) \equiv \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{r}} \frac{1}{m} \varphi_{\alpha\alpha'}(\mathbf{r}) (2 - 2 \cos \mathbf{q}\cdot\mathbf{r}), \quad (21)$$

equation (20), together with the eigenvalue equations and the unitarity condition applying to the polarization matrix, then reads

$$\lambda = X^+ A X, \tag{20'}$$

$$A X = X \lambda, \tag{20''}$$

$$X^+ A = \lambda X^+, \tag{20'''}$$

$$X^+ X = 1. \tag{20''''}$$

These equations will be used presently.

In carrying out parallel calculations on the partial powers which in turn are introduced in equation (16), an expansion of the following form is found for the general component $Q_\nu(\mathbf{k})$:

$$Q_\nu(\mathbf{k}) = \frac{1}{2N} \left\{ \frac{\Delta_2(-\mathbf{k})}{N} \chi_2^\nu : i \dot{w} w + \frac{\Delta_3(-\mathbf{k})}{N^{3/2}} \chi_3^\nu : i \dot{w} \cdot w \cdot w + \dots \right\} \tag{22}$$

where the χ_n^ν result from combining partial powers with the function θ_ν , and summing over $\mathbf{r}(\nu)$ and where $\Delta_n(-\mathbf{k}) \equiv \Delta(\mathbf{q})$ with $\mathbf{q} = -\mathbf{k} + \mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2 + \dots + \mathbf{q}_n$. Notice that in the form (22), $Q_\nu(\mathbf{k})$ conveys the effects of the anharmonicity of interatomic forces. It is obvious that the energy transferred through the lattice carries also its anharmonic part. Even if small in magnitude, this part may produce first-order effects which should not be overlooked.

f) *Homogeneous energy current*

We proceed in studying the steady component $Q_\nu(0)$, its harmonic $Q_{\nu,h}(0)$ and anharmonic part $Q_{\nu,a}(0)$. Consider first $Q_{\nu,h}(0)$; remembering that $\theta_\nu(0, \mathbf{r}) = r_\nu$, it reads

$$\begin{aligned} Q_{\nu,h}(0) &= \frac{1}{2N} \frac{\Delta_2}{N} \chi_2 : i \dot{w} w \\ &= \frac{1}{2N} \sum_{\substack{\mathbf{q}, \mathbf{q}' \\ p, p'}} \frac{\Delta(\mathbf{q} + \mathbf{q}')}{N} \sum_{\alpha \alpha'} \left[(-i) \sum_{\mathbf{r}(\nu)} r_\nu \frac{\varphi_{\alpha\alpha'}(\mathbf{r})}{m} (1 + e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}}) (1 - e^{i\mathbf{q}'\mathbf{r}}) \right] \\ &\quad \times X_\alpha^p(\mathbf{q}) \cdot X_{\alpha'}^{p'}(\mathbf{q}') \cdot i \dot{w}_{q,p} \cdot w_{q',p'} \\ &= \frac{1}{2N} \sum_{\substack{\mathbf{q} \\ p, p'}} \sum_{\alpha \alpha'} \left[\sum_{\mathbf{r}(\nu)} r_\nu \frac{1}{m} \varphi_{\alpha\alpha'}(\mathbf{r}) 2 \sin \mathbf{q} \mathbf{r} \right] \cdot X_\alpha^p(\mathbf{q}) X_{\alpha'}^{p*}(\mathbf{q}^*) \cdot i \dot{w}_{q,p} \cdot w_{q,p}^* \end{aligned}$$

Defining the quantity in square parenthesis by

$$B_{\alpha\alpha'}^p(\mathbf{q}) \equiv \sum_{\mathbf{r}(\nu)} r_\nu \frac{\varphi_{\alpha\alpha'}(\mathbf{r})}{m} 2 \sin \mathbf{q} \mathbf{r} \equiv \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{r}} r_\nu \frac{\varphi_{\alpha\alpha'}(\mathbf{r})}{m} \cdot 2 \sin \mathbf{q} \mathbf{r} \tag{24}$$

$Q_{\nu,h}(0)$ can be written in compact matrix form:

$$Q_{\nu,h}(0) = \frac{1}{2N} w^+ X^+ B X i \dot{w}. \tag{23'}$$

Now inspection of (24) and (21) shows the important connection

$$\boxed{B^p(\mathbf{q}) = \frac{\partial}{\partial q_\nu} A(\mathbf{q})}, \tag{25}$$

a relation which will be used to transform further equation (23').

To do so, we start from (20') that we derive on both sides with respect to q_ν

$$\frac{\partial}{\partial q_\nu} \lambda = \frac{\partial X^+}{\partial q_\nu} A X + X^+ \cdot \frac{\partial a}{\partial q_\nu} \cdot X + X^+ A \cdot \frac{\partial X}{\partial q_\nu};$$

the second term on the r. h. s. is precisely the term we want. In applying the eigenvalue equations (20'), (20'') and taking into account the unitarity condition (20'''), one finds:

$$X^+ \frac{\partial A}{\partial q_\nu} X = X^+ B X = \frac{\partial \lambda}{\partial q_\nu} + [\lambda, Y^\nu] \quad (26)$$

with $[\lambda, Y^\nu] = \lambda Y^\nu - Y^\nu \lambda$

$$Y^\nu = \frac{\partial X^+}{\partial q_\nu} \cdot X, \quad (27)$$

$$Y^{\nu+} = -Y^\nu, \quad (27')$$

$$Y_{p p'}^\nu(\mathbf{q}) = \sum_{\alpha=1}^3 \frac{\partial}{\partial q_\nu} X_\alpha^{*p}(\mathbf{q}) \cdot X_\alpha^{p'}(\mathbf{q}). \quad (27'')$$

Thus

$$Q_{\nu, h}(0) = \frac{1}{N} \left\{ \omega^+ \frac{1}{2} \frac{\partial \lambda}{\partial q_\nu} i \dot{\omega} + \omega^+ \frac{1}{2} [\lambda, Y^\nu] i \dot{\omega} \right\}. \quad (28)$$

With $\lambda_{q, p} = \omega_{q, p}^2$ and the definition of the group velocity

$$C_{q, p}^\nu = \frac{\partial}{\partial q_\nu} \omega_{q, p}$$

the eigenvalues of the diagonal part read

$$\frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial q_\nu} \lambda_{q, p} = C_{q, p}^\nu \cdot \omega_{q, p}. \quad (29)$$

Equation (28), then, reads, in scalar form:

$$Q_{\nu, h}(0) = \frac{1}{N} \sum_{p, p'} \left\{ C_{q, p}^\nu \omega_{q, p} i \dot{\omega}_{q, p} \omega_{q, p}^* \delta_{p, p'} + \frac{1}{2} (\omega_{q, p}^2 - \omega_{q, p'}^2) Y_{p p'}^{(q)} i \dot{\omega}_{q, p'} \cdot \omega_{q, p}^* \right\}. \quad (28')$$

This equation is amenable to comparison with the standard form if the usual transformation to normal coordinates is made, namely:

$$\left. \begin{aligned} \omega_{q, p} &= \sqrt{\frac{1}{2 \omega_{q, p}}} (a_{q, p} + a_{-q, p}^*) \\ i \dot{\omega}_{q, p} &= \sqrt{\frac{\omega_{q, p}}{2}} (a_{q, p} - a_{-q, p}^*) \end{aligned} \right\} \quad (30)$$

After some manipulations showing cancellation of all antisymmetric contribution in (p, p') , the final formula reads:

$$\boxed{\begin{aligned} Q_{\nu, h}(0) &= \frac{1}{N} \sum_{q, p} C_{q, p}^\nu \omega_{q, p} a_{q, p}^* a_{q, p} \\ &+ \frac{1}{N} \sum_{\substack{q \\ p, p'}} \frac{1}{2} (\omega_{q, p}^2 - \omega_{q, p'}^2) Y_{p p'}^\nu(\mathbf{q}) \frac{1}{2} (1/\omega_{q, p} + 1/\omega_{q, p'}) \\ &(\omega_{q, p} \cdot \omega_{q, p'})^{1/2} \cdot \frac{1}{2} (a_{q, p'} a_{q, p}^* + a_{q, p}^* a_{q, p}). \end{aligned}} \quad (28'')$$

The proof of (28), (28') and (28'') for polyatomic lattices follows exactly the same lines, so that it will be spared here. The summation over p can readily be extended from 3 to $3n_0$.

The first part, which is phase independent, represents the well-known expression for the steady component of the harmonic energy current in which the presence of the group velocity has been strictly derived. A few words about the group velocity ought to be said here.

Inspection of the oscillatory component $Q_{v,h}(\mathbf{k})$ shows indeed that the concept of group velocity is applicable only for $\mathbf{k} = 0$. This is due to the function $\theta_v(\mathbf{k}, \mathbf{r})$, which acts as a difference and displacement operator. For instance, in the one-dimensional case, where the function θ_v can easily be evaluated

$$\theta(k, r) = \sum_{t=0}^{r-a} e^{-ikt} = \frac{1 - e^{-ikr}}{1 - e^{-ika}},$$

the harmonic part of $Q(k)$ reads

$$\begin{aligned} Q_h(k) &= \frac{1}{2N} \frac{\Delta_2(-k)}{N} \chi_2 : i \dot{w} \cdot w \\ &= \frac{1}{2N} \sum_{q,q'} \frac{\Delta(q+q'-k)}{N} \left[(-i) \sum_{r>0} \frac{\varphi''(r)}{m} (1 + e^{iqr}) (1 - e^{iq'r}) \right] i \dot{w}_q w_{q'} \end{aligned}$$

and becomes, after some manipulations

$$Q_h(k) = \sum_q a \cdot \frac{i}{1 - e^{-ika}} \frac{1}{2} [\omega^2(q-k) - \omega^2(q) + \omega^2(k)] i \dot{w}_q w_{q-k}^* \quad (31)$$

where we notice a suggestive combination of eigenvalues taking the place of the group velocity. In the three-dimensional case the situation is more complicated owing to the presence of polarization matrices. The above example however illustrates clearly the limit of validity of the concept of group velocity. Furthermore the interesting long-wave limit can be investigated in general by further application of the method used to transform the steady component (23) in the convenient form (28). Higher derivatives of the eigenvalues $\lambda_{q,p}$ appear as well as additional phase dependent contributions*).

The second part of formula (28') represents a new contribution to the homogeneous energy current which is carried by excitations mixing two different polarizations for the same wave vector. This part is phase dependent, and the excitations oscillate rapidly with the angular frequency $\omega_{q,p} - \omega_{q,p'}$. Several interesting consequences of dynamical and statistical nature follow from the presence of these terms; for instance dynamic effects are expected to manifest themselves through resonance phenomena of which a prototype will be treated in the next paper in connection with the frequency-dependence of the L. T. conductivity. Statistical effects will also be met there, but we can readily estimate the simplest one in computing the mean square average $\langle \Delta Q_h^2 \rangle = \langle Q_h^2 \rangle$ since $\langle Q_h \rangle = 0$ of the energy current given by (28'') for a classical harmonic crystal in equilibrium. In this respect it is

*) Cf. L. SALEM, Phys. Rev. 125, 1788-1791 (1962), where a similar situation is studied in Hilbert space.

convenient to introduce action-angle variables by the following transformation

$$a_{\mathbf{q},\mathbf{p}} = \sqrt{A_{\mathbf{q},\mathbf{p}}} \exp i \alpha_{\mathbf{q},\mathbf{p}}. \quad (32)$$

As a function of these variables the harmonic energy is known to read

$$E_h = \sum_{\mathbf{q},\mathbf{p}} \omega_{\mathbf{q},\mathbf{p}} A_{\mathbf{q},\mathbf{p}}$$

and the volume element in phase space is simply $dA_{\mathbf{q},\mathbf{p}} d\alpha_{\mathbf{q},\mathbf{p}}$ for each oscillator. Making use of the classical expectation value

$$\langle A_{\mathbf{q},\mathbf{p}} \rangle = \frac{K T}{\omega_{\mathbf{q},\mathbf{p}}} \quad (33)$$

we find, after some manipulations, the illustrative formula

$$\left. \begin{aligned} \sum_{\nu=1}^3 \langle Q_h^\nu(0)^2 \rangle &= \frac{(K T)^2}{N^2} \\ \times \left\{ \sum_{\mathbf{q},\mathbf{p},\nu} C_{\mathbf{q},\mathbf{p}}^{\nu 2} + \sum_{\substack{\mathbf{q},\nu \\ \mathbf{p},\mathbf{p}'}} \frac{1}{16} Y_{\mathbf{p}\mathbf{p}'}^\nu(\mathbf{q}) Y_{\mathbf{p}\mathbf{p}'}^{\nu*}(\mathbf{q}) \left[(\omega_{\mathbf{q},\mathbf{p}}^2 - \omega_{\mathbf{q},\mathbf{p}'}^2) \left(\frac{1}{\omega_{\mathbf{q},\mathbf{p}}} + \frac{1}{\omega_{\mathbf{q},\mathbf{p}'}} \right) \right]^2 \right\} \end{aligned} \right\} \quad (34)$$

which settles on proper ground the question of the relative importance of the phase-dependent part of the homogeneous energy current.

Going back now to equation (22), the presence of anharmonic contributions suggests a study of the phase-independent part of its homogeneous component in order to detect sources of first-order effects. As in the well-known case of the potential energy, these terms are found in all interactions involving an even number of waves (4, 6, etc.). Following the introduction of action-angle variables, the process of averaging over the phases produces the well-known pairing rule between modes of different wave number in such a way that the phase average homogeneous and anharmonic energy current takes the following form, written in compact notation:

$$\overline{Q_{\nu a}(0)} = \frac{1}{2N} \left\{ 3 \frac{1}{N} \overline{\chi_4^\nu} : A \cdot \omega^{-1} A + 5 \cdot 3 \frac{1}{N^2} \overline{\chi_6^\nu} : A \cdot \omega^{-1} A \cdot \omega^{-1} A \cdots \right\} \quad (35)$$

where A and $\omega^{-1}A$ mean tensors of first rank with $3n_0N - 3$ components $A_{\mathbf{q},\mathbf{p}}$ and $\omega_{\mathbf{q},\mathbf{p}}^{-1} \cdot A_{\mathbf{q},\mathbf{p}}$.

The effect of the (non-dissipative) quartic terms of (35) on the high-temperature-dependence of the L. T. conductivity will be estimated in lowest order in the next paper, under the assumption that dissipation is provided by the three-mode-interactions of the potential energy. Further consequences borne out of the above analysis will be presented in subsequent papers, where the treatment of some fundamental Lattice Properties of Solids will be handled anew.

Acknowledgments

We are particularly indebted to Prof. L. V. HOVE, of CERN, for his stimulating and sustained interest in this research.

We are also indebted to Profs. E. VERBOVEN and A. THELLUNG for interesting discussions on the subject of the present paper.

The work has been supported in part by the 'Thermoelectric Cooling Research Group' (Battelle Memorial Institute, Columbus, Ohio), and we are indebted to Drs A. C. BEER and E. LOUGHER for their kind sponsorship.

Corrélations angulaires directionnelles bêta-gamma dans la désintégration de Sb^{124} , Eu^{152} et Eu^{154}

par **Jules-Willy Sunier**

Laboratoire de Physique des Hautes Energies, E. P. F., Zurich

(4. VII. 1962)

Summary. The β - γ directional correlations involving the first forbidden 2,31, 1,48 and 1,84 MeV beta transitions in the decay of Sb^{124} , Eu^{152} and Eu^{154} have been measured as a function of beta particle energy. Near maximum beta energy the anisotropy factor $\varepsilon(W)$ in the correlation function $N(W, \theta) = 1 + \varepsilon(W) P_2(\cos\theta)$ was found to be $\varepsilon(4,74 m_e c^2) = -0,387 \pm 0,012$, $\varepsilon(3,64) = -0,447 \pm 0,013$ and $\varepsilon(4,33) = -0,315 \pm 0,034$ for Sb^{124} , Eu^{152} and Eu^{154} respectively. The absence of a term $P_4(\cos\theta)$ in the β - γ correlation functions provides further evidence for the first-forbidden character of the involved beta transitions. Pure $\int B_{ij}$ transitions are excluded from the experimental values of $\varepsilon(W)$ but the data imply that this matrix element must contribute very significantly. The nuclear matrix elements involved in the observed beta transitions have been computed from the measured values of $\varepsilon(W)$ and taking into account the experimental data of the shape correction factors and of the β - γ (circularly polarized) angular correlations. The results are characterized by the predominance of the $\int B_{ij}$ matrix element and yield for Sb^{124} , Eu^{152} and Eu^{154} respectively:

$$\begin{array}{l} \left| \int B_{ij}/R \right| = (1,76 \pm 0,22) \cdot 10^{-2}; \quad (2,86 \pm 0,36) \cdot 10^{-3}; \quad (1,20 \pm 0,14) \cdot 10^{-3} \\ \left| \int \mathbf{r}/R \right| = (1,7 \pm 1,1) \cdot 10^{-3}; \quad (5,5 \pm 3,0) \cdot 10^{-4}; \quad (0,5 \pm 1,5) \cdot 10^{-4} \\ \left| \int i \boldsymbol{\sigma} \times \mathbf{r}/R \right| = (1,4 \pm 1,4) \cdot 10^{-3}; \quad (0,97 \pm 1,70) \cdot 10^{-4}; \quad (2,3 \pm 1,4) \cdot 10^{-4} \\ \left| \int i \boldsymbol{\alpha} \right| = (1,43 \pm 0,77) \cdot 10^{-4}; \quad (1,97 \pm 0,82) \cdot 10^{-4}; \quad (0,73 \pm 0,50) \cdot 10^{-4} \end{array}$$

(R is the nuclear radius in units $\hbar = m_e = c = 1$). Selection rules suppressing the matrix elements other than $\int B_{ij}$ are discussed. The results are compared with the predictions of the Conserved Vector Current Theory.

I. Introduction

L'hypothèse de la non-conservation de la parité dans les interactions faibles, émise par LEE et YANG¹⁾ en 1957, a stimulé de nombreuses études théoriques et expérimentales dans le domaine de l'interaction bêta. La clarification de nos connaissances sur la forme de l'interaction elle-même en est la conséquence directe. D'une part, la mesure de la distribution angulaire des électrons émis par des noyaux polarisés²⁾ et l'étude des corrélations angulaires bêta-gamma polarisés circulairement dans les transitions permises ont établi que la violation de la parité est maxima. D'autre part, la mesure par GOLDHABER³⁾ de l'hélicité du neutrino et l'étude des corrélations angulaires électron-neutrino⁴⁾ ont confirmé la théorie à deux composantes du neutrino et précisé que l'interaction bêta est uniquement de forme vectorielle (V) et pseudo-vectorielle (A). En outre, l'expérience de BURG⁵⁾ sur la désintégration de neutrons polarisés ainsi que la mesure de la durée de vie du neutron libre⁶⁾ et de $0^{14} \text{ } ^7\text{)}^8) ont permis de déterminer le signe et la grandeur des constantes$

de couplage de l'interaction. Il est dès lors établi que l'interaction bêta est du type $V - A$, avec $C_A = [-1,19 \pm 0,03] C_V$.

L'étude des transitions bêta en corrélation avec les transitions électromagnétiques qui leur succèdent est ainsi devenue un moyen d'investigation direct de la structure nucléaire. La forme de l'interaction bêta étant admise, il est désormais possible de déterminer expérimentalement les éléments de matrice nucléaires de l'hamiltonien d'interaction. Leur calcul théorique n'est possible que dans quelques cas, car il nécessite une connaissance complète des fonctions d'onde globales des états initial et final du noyau. Ces fonctions peuvent être évaluées sur la base des modèles nucléaires, mais seule une théorie exacte des forces nucléaires pourrait donner des résultats satisfaisants. L'accumulation de valeurs expérimentales apporte une contribution à l'étude critique des modèles nucléaires et à leur perfectionnement.

Dans le cas des transitions permises, seuls deux éléments de matrice interviennent: $\int \mathbf{1}$ et $\int \boldsymbol{\sigma}$. Ils sont entièrement déterminés par la mesure du $\log ft$ et de la fonction de corrélation bêta-gamma polarisé circulairement. Pour les transitions interdites du premier ordre, six éléments de matrice entrent en jeu [$\int \boldsymbol{\gamma}_5$, $\int \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{r}$; $\int \mathbf{r}$, $\int \boldsymbol{\alpha}$, $\int \boldsymbol{\sigma} \times \mathbf{r}$; $\int B_{ij}$] dans le cas le plus général. Il est nécessaire de faire intervenir pour les leptons des fonctions d'onde relativistes, solutions de l'équation de Dirac pour des particules dans un champ coulombien. Les différentes formes de la probabilité de transition sont ensuite développées en une série de puissances décroissantes du facteur $\xi = (\alpha Z)/(2R)$. α est la constante de structure fine, Z la charge du noyau et R son rayon. Dans le cas général, le premier terme de cette série contient ξ^2 et ne dépend pas de l'énergie W de la particule bêta émise. Pour la plupart des transitions interdites du premier ordre, il est suffisant de ne considérer que le premier terme du développement. C'est l'approximation ξ . Dans cette approximation, seules deux combinaisons linéaires des éléments de matrice caractérisant la transition bêta peuvent être déterminées.

Cependant, il existe quelques transitions pour lesquelles l'approximation ξ n'est pas valable. Leur valeur ft est anormalement élevée. En outre, le facteur de forme du spectre, la corrélation directionnelle bêta-gamma et le facteur de polarisation de la corrélation bêta-gamma polarisé circulairement dépendent fortement de l'énergie de la particule bêta, le dernier facteur présentant de plus une dépendance angulaire. Pour les transitions impliquant une différence de spin de 1 entre l'état initial et final du noyau, le nombre des éléments de matrice nucléaires inconnus est réduit à quatre. Ces quatre éléments peuvent, en principe, être déterminés univoquement par l'ensemble des mesures énumérées ci-dessus. Le fait que ces transitions ne puissent être traitées dans l'approximation ξ est attribué soit à une annulation mutuelle des éléments de matrice intervenant dans le premier terme du développement en ξ , soit à l'influence d'une règle de sélection qui tend à diminuer la contribution de certains de ces éléments de matrice. Les modèles nucléaires déterminent ces règles de sélection.

Plusieurs cas typiques ont été soulignés par KOTANI⁹⁾, en particulier le Sb^{124} , l' Eu^{152} et l' Eu^{154} . Nous nous sommes proposé, pour ces trois isotopes, de mesurer la corrélation directionnelle des cascades $3^-(\beta) 2^+(\gamma) 0^+$ en fonction de l'énergie W de la particule bêta. Ces mesures, comparées à celles du $\log ft$, du facteur correctif du spectre et de la corrélation bêta-gamma polarisé circulairement, nous ont permis de déterminer les éléments de matrice nucléaires des transitions bêta envisagées. La

confrontation des résultats devait mettre en évidence l'influence d'une règle de sélection réduisant la contribution des éléments de matrice $\int \alpha$, $\int r$ et $\int \sigma \times r$ par rapport à l'élément de matrice $\int B_{ij}$. Le cas des deux noyaux Gd^{152} et Gd^{154} , situés de part et d'autre de la limite des noyaux déformés, était en outre intéressant pour tester la validité de la règle de sélection K , déterminée par le modèle collectif de Bohr et Mottelson.

Cette étude développe essentiellement les résultats de publications antérieures et tient compte des mesures de corrélations bêta-gamma polarisé circulairement dans la désintégration de Sb^{124} et de Eu^{152} , effectuées dans l'intervalle par d'autres auteurs¹⁰⁻¹⁴). Elle confirme les résultats de mesure de la fonction de corrélation directionnelle bêta-gamma, donnés précédemment par l'auteur¹⁰) pour l' Eu^{152} et par STEFFEN¹⁵) pour Sb^{124} . Par contre elle est en désaccord avec d'autres travaux sur l' Eu^{152} (16)¹⁷)¹⁸). L'étude de l' Eu^{154} a été développée. En particulier, l'utilisation d'une source liquide a permis de lever l'indétermination due à l'atténuation de la corrélation, atténuation provoquée par l'interaction des moments nucléaires avec les champs électrique et magnétique dans un milieu polycristallin.

Dans un premier chapitre, nous rappellerons brièvement les éléments théoriques nécessaires à la compréhension du problème. Une deuxième partie sera consacrée à la description de notre dispositif de mesure, des sources et des différentes corrections qu'il convient d'apporter aux résultats. Les résultats et le calcul des éléments de matrice seront présentés dans un troisième chapitre, tandis qu'une dernière partie sera réservée à une discussion et à l'interprétation de ces résultats.

II. Rappels théoriques et formules utilisées

1. Probabilité de transition et éléments de matrice nucléaires

Le calcul de toute fonction de corrélation bêta-gamma fait intervenir la probabilité de transition bêta entre deux états nucléaires $|i\rangle$ et $|f\rangle$. Cette probabilité est proportionnelle au carré de l'élément de matrice $\langle f | H_{if} | i \rangle$ de l'hamiltonien d'interaction. Dans le cadre de la théorie $V - A$, cet élément de matrice a la forme:

$$\langle f | H_{if} | i \rangle = \left. \begin{aligned} & \sum_{k=1}^A \sum_{\mu=1}^4 \int d\tau [\bar{\psi}_f^{(k)} \gamma_{\mu} (C_V - C_A \gamma_5) \tau_{(k)}^{-} \psi_i^{(k)}] \\ & \times [\bar{\psi}_e \gamma_{\mu} (1 + \gamma_5) \psi_{\nu}] + h.c. \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

expression dans laquelle $\psi_i^{(k)}$ et $\psi_f^{(k)}$ sont les fonctions d'onde d'un nucléon d'indice k dans l'état initial et final du noyau, ψ_e et ψ_{ν} les fonctions d'onde de l'électron et du neutrino, τ^{-} la composante de l'opérateur d'isospin transformant un neutron en proton, et γ_{μ} les matrices de Dirac. L'intégrale s'étend simultanément aux coordonnées spatiales des nucléons et des leptons. L'interaction bêta est locale et la longueur d'onde associée à l'électron et au neutrino est beaucoup plus grande que les dimensions nucléaires; il est donc légitime de calculer $\langle f | H_{if} | i \rangle$ en effectuant un développement limité des fonctions d'onde des leptons, solutions de l'équation de Dirac pour une particule dans un champ coulombien. La densité d'interaction se décompose alors en une combinaison linéaire d'éléments de matrice nucléaires qui contiennent toutes les variables dynamiques de la transition. Ces différents éléments de matrice sont de la forme $\langle \psi_f^* | O_{\lambda} | \psi_i \rangle$, que nous écrirons simplement

M_λ . L'opérateur O_λ doit satisfaire les règles de sélection déterminées par les changements de spin et de parité entre les états nucléaires initiaux et finaux :

$$|I_i - I_f| \leq \lambda \leq |I_i + I_f| \text{ et } \pi_i \pi_f \pi_\lambda = +1.$$

λ est l'ordre tensoriel de l'opérateur O_λ . Le moment angulaire total emporté par la paire électron-neutrino est égal à λ .

Les éléments de matrice contribuant aux transitions bêta interdites du premier ordre sont énumérés dans le tableau 1. Rappelons que ces transitions sont caractérisées par $\Delta\pi = -1$ et $\Delta I = 0, \pm 1, \pm 2$.

Tableau 1

Eléments de matrice des transitions bêta interdites du premier ordre

$M_\lambda = \int O_\lambda$	λ	ΔI
$C_A \int i \gamma_5$		
$C_A \int \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{r}$	0	0
$C_V \int \mathbf{r}$		0, ± 1
$C_V \int i \boldsymbol{\alpha}$	1	
$C_A \int i \boldsymbol{\sigma} \times \mathbf{r}$		0 \rightarrow 0 interdit
$C_A \int B_{ij} =$		0, $\pm 1, \pm 2$
$C_A \int [\sigma_i x_j + x_i \sigma_j - \frac{2}{3} \delta_{ij} \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{r}]$	2	0 \rightarrow 0, 1 \rightarrow 0, 0 \rightarrow 1 interdits

2. Corrélations bêta-gamma

Soit un noyau effectuant une transition entre les états I_0 et I_1 , avec émission d'un électron d'énergie W (impulsion \vec{p}). Soit une transition entre les états I_1 et I_2 , avec émission d'un photon d'impulsion \vec{k} et de multipolarités L et L' ($|I_1 - I_2| \leq L, L' \leq |I_1 + I_2|$). La probabilité de détecter simultanément les deux radiations dans les directions \hat{p} et \hat{k} s'exprime par :

$$N(W) \sim \sum_n \sum_{\lambda \lambda'} b_{n\lambda\lambda'} G_{n\lambda\lambda'}(I_0 I_1 I_2, L L') P_n(\hat{p} \cdot \hat{k}). \quad (2)$$

Les facteurs $G_{n\lambda\lambda'}$ sont des coefficients géométriques qui ne dépendent que des règles d'addition vectorielle des moments angulaires. Les $P_n(\hat{p} \cdot \hat{k})$ sont les polynômes de Legendre de degré n . Les indices λ et λ' caractérisent l'ordre tensoriel des opérateurs O_λ et $O_{\lambda'}$, responsables de la transition bêta. Les paramètres de particules $b_{n\lambda\lambda'}$ contiennent les variables spécifiquement nucléaires sous forme d'un produit d'éléments de matrice :

$$b_{n\lambda\lambda'} = a_{n\lambda\lambda'}(W, \xi) M_\lambda M_{\lambda'}. \quad (3)$$

W est l'énergie de la particule bêta. $\xi = (\alpha Z)/(2R)$ est le facteur d'énergie coulombienne; α est la constante de structure fine, Z la charge du noyau et R son rayon.

Il est indiqué, pour le calcul de la probabilité de transition, de développer les coefficients $a_{n\lambda\lambda'}$ en séries de puissances décroissantes de ξ . Pour les noyaux intermédiaires et lourds, ξ est de l'ordre de 10 et ces développements convergent rapidement. Dans le tableau 2 nous indiquons la puissance de ξ et de W qui intervient dans les facteurs $a_{n\lambda\lambda'}$, pour chaque combinaison bilinéaire des éléments de matrice M_λ et $M_{\lambda'}$ qui entrent en jeu dans quelques observables liées à une désintégration bêta interdite du premier ordre. Les indices λ et λ' se rapportent aux éléments de matrice énumérés dans le tableau 1, et les trois observables indiquées seront celles que nous utiliserons pour déterminer expérimentalement ces éléments de matrice.

Tableau 2

Ordre de grandeur des termes successifs du développement en ξ et éléments de matrice contribuant aux transitions bêta interdites du premier ordre

Observable	n	$0(\xi^2)$		$0(\xi \cdot W)$		$0(W^2)$	
		λ	λ'	λ	λ'	λ	λ'
Facteur de forme du spectre bêta: $C(W)$	0	0	0	0	0	0	0
		1	1	1	1	1	1
						2	2
Facteur d'anisotropie de la corrélation directionnelle bêta-gamma: $\varepsilon(W)$	2			0	2	1	1
				1	1	1	2
				1	2	2	2
Facteur de polarisation de la corrélation bêta-gamma polarisé circulairement: $P_c(W)$	1	0	1	0	1	0	1
		1	1	1	1	1	1
				1	2	1	2
	3					1	2
						2	2

3. Approximation « ξ »

Lorsque W_0 , l'énergie de la transition, est telle que $\xi \gg W_0$, il suffit de considérer la contribution des termes d'ordre ξ^2 pour l'évaluation des coefficients $a_{n\lambda\lambda'}$ de la formule (3). Ceci définit l'approximation « ξ ». L'élément de matrice d'ordre 2 (B_{ij}) ne figure pas dans $a_{n\lambda\lambda'}$ (cf. tableau 2). Dans cette approximation, la forme du spectre bêta est essentiellement statistique, ou «permise», la corrélation directionnelle bêta-gamma est isotrope, et la corrélation bêta-gamma polarisé circulairement a les mêmes caractéristiques que celle des transitions permises. Seules les deux combinaisons linéaires d'éléments de matrice

$$V = C_A \int i \gamma_5 + \xi C_A \int \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{r} \quad \text{et}$$

$$Y = -C_V \int i \boldsymbol{\alpha} + \xi C_A \int i \boldsymbol{\sigma} \times \mathbf{r} - \xi C_V \int \mathbf{r}$$

peuvent être déterminées expérimentalement.

La plupart des transitions interdites du premier ordre satisfont à cette approximation, ou ne nécessitent qu'une faible correction due aux termes d'ordre ξW . Elles sont appelées transitions coulombiennes et ne présentent pas d'intérêt pour la détermination expérimentale des éléments de matrice nucléaires.

4. Non-validité de l'approximation « ξ »

Il peut arriver qu'une combinaison linéaire particulière des éléments de matrice qui contribuent aux termes d'ordre ξ^2 soit si petite que les termes suivants du développement des $a_{n\lambda\lambda'}$ deviennent dominants, ceci même si la condition $\xi \gg W_0$ est satisfaite. Il s'agit d'un effet d'annulation mutuelle des éléments de matrice. Un tel cas est connu dans le *Ra E*.

Si par contre les éléments de matrice d'ordre $\lambda = 0$ et 1 sont petits par rapport à l'élément d'ordre 2, l'importance de ce dernier devient telle que l'approximation ξ perd sa validité. Il en résulte une déviation sensible de la forme du spectre, par rapport à la répartition statistique. De plus, la corrélation directionnelle bêta-gamma devient fortement anisotrope, et un terme en $P_3(\cos\theta)$ apparaît dans la fonction de corrélation bêta-gamma polarisé circulairement (cf. tableau 2). Un tel effet est dû à une règle de sélection définie dans le cadre d'un modèle nucléaire particulier. Nous citerons deux cas :

— *Modèle en couches: interdiction «j»*

Lorsque les protons et neutrons participant à la transition occupent des états de la même couche principale, seules des transitions pour lesquelles $|j - j'| \geq 2$ (j et j' étant les états initiaux et finaux) donnent lieu à un changement de parité. Ce fait résulte de la succession des niveaux propre au modèle en couches. L'opérateur B_{ij} ($\lambda = 2$) dominera dans une transition bêta interdite du premier ordre, les opérateurs d'ordre $\lambda = 0$ et 1 ne pouvant induire des transitions pour lesquelles $|j - j'| > 1$.

— *Modèle de Bohr et Mottelson: interdiction «K»*

Dans le cas des noyaux déformés, un état nucléaire est caractérisé par son spin total I , sa parité π et son moment angulaire intrinsèque K , projection de I sur l'axe de symétrie du noyau. Si la transition bêta relie deux états K et K' , tels que $|K - K'| \geq 2$, l'élément de matrice $\int B_{ij}$ peut être le seul autorisé.

Les transitions bêta interdites du premier ordre pour lesquelles l'effet d'une règle de sélection provoque une déviation de l'approximation ξ et une prédominance de l'élément de matrice $\int B_{ij}$ sont les transitions favorables à la détermination expérimentale des éléments de matrice nucléaires.

5. Cas des transitions $3^-(\beta) 2^+(\gamma) 0^+$

La transition bêta a lieu avec un changement de spin de 1. Dans ce cas, seuls 4 éléments de matrice contribuent à la fonction de corrélation, car les opérateurs d'ordre $\lambda = 0$ ne peuvent induire de transition $\Delta I = 1$. Avec la notation de KOTANI⁹⁾

nous les introduirons sous la forme des paramètres u , x , Y et z définis par les relations:

$$\left. \begin{aligned} u &= \eta^{-1} \left[C_A \int i \boldsymbol{\sigma} \times \mathbf{r} \right] \\ x &= \eta^{-1} \left[- C_V \int \mathbf{r} \right] \\ Y &= \eta^{-1} \left[- C_V \int i \boldsymbol{\alpha} \right] - \xi (u + x) \\ z &= \eta^{-1} \left[C_A \int B_{ij} \right] \end{aligned} \right\} \begin{array}{l} \lambda = 1 \\ \lambda = 2. \end{array} \quad (4)$$

η est un élément de matrice de normalisation arbitraire, la probabilité de transition ne dépendant que de combinaisons bilinéaires d'éléments de matrice. Nous le choisissons égal à $C_A \int B_{ij}$, ce qui revient à poser $z \equiv 1$.

Avec cette notation, l'équation (2) prend la forme:

$$\left. \begin{aligned} N_{\beta\gamma}(W, \theta) &= A_0(W) + A_2(W) P_2(\cos\theta) \\ &+ \frac{p}{W} [A_1(W) P_1(\cos\theta) + A_3(W) P_3(\cos\theta)]. \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

Les coefficients $A_n(W)$ sont des formes bilinéaires des paramètres u , x et Y définis par les relations (4). Nous donnerons, pour une cascade $3^-(\beta) 2^+(\gamma) 0^+$, les différentes observables que nous utiliserons pour la détermination des paramètres u , x et Y .

a) *Facteur de forme du spectre bêta*: Mesuré en fonction de W et normalisé pour une énergie W_n .

$$C_n(W) = A_0(W) A_0^{-1}(W_n), \quad (6a)$$

$$\left. \begin{aligned} A_0(W) &= \frac{1}{12} [(W_0 - W)^2 + \lambda_1(W^2 - 1)] + Y^2 + \left(\frac{2}{3W} - \frac{2W_0}{3} \right) x Y \\ &+ \left(\frac{2}{3W} - \frac{4W}{3} + \frac{2W_0}{3} \right) u Y \\ &+ \left(\frac{W_0^2}{3} - \frac{1}{9} - \frac{4W W_0}{9} - \frac{2W_0}{9W} + \frac{4W^2}{9} \right) x^2 \\ &+ \left(\frac{W_0^2}{6} - \frac{7}{18} - \frac{5W W_0}{9} + \frac{2W_0}{9W} + \frac{5W^2}{9} \right) u^2. \end{aligned} \right\} \quad (6b)$$

b) *Corrélation directionnelle bêta-gamma*: Mesurée en fonction de W .

$$\varepsilon(W) = A_2(W) A_0^{-1}(W), \quad (7a)$$

$$\left. \begin{aligned} A_2(W) &= - \frac{W^2 - 1}{252W} [6 \lambda_1 W + 36 \lambda_2 Y - (12 \lambda_2 W_0 - 12W) x \\ &- (30W - 12 \lambda_2 W_0) u + 24 \lambda_2 x Y \\ &- 12 \lambda_2 u Y - (8 \lambda_2 W_0 + 4W) x^2 \\ &- (4 \lambda_2 W_0 - 7W) u^2 - (12W - 12 \lambda_2 W_0) u x]. \end{aligned} \right\} \quad (7b)$$

c) *Corrélation bêta-gamma polarisé circulairement*: Mesurée en fonction de θ pour une énergie moyenne \bar{W} .

$$P_c(\bar{W}, \theta) = \sqrt{\frac{\bar{W}^2 - 1}{W^2}} \frac{A_1(\bar{W}) P_1(\cos\theta) + A_3(\bar{W}) P_3(\cos\theta)}{A_0(\bar{W}) + A_2(\bar{W}) P_2(\cos\theta)} \quad (8a)$$

$$A_1(W) = \frac{1}{180} \left[\begin{aligned} & -60 Y^2 - 60 \lambda_4 W Y + 4(5 W_0^2 + 6 W^2 - 5 W W_0 - 6) x \\ & + 2(5 W_0^2 + 24 W - 20 W W_0 - 9) u \\ & + 20(5 W - 2 W_0) u Y + 40(W_0 - W) x Y \\ & + 20(W_0^2 - 3 W W_0 + 2 W^2) u x \\ & + 5(3 - W_0^2 + 6 W W_0 - 8 W^2) u^2 \end{aligned} \right] \quad (8b)$$

$$A_3(W) = (W^2 - 1) \left[\frac{1}{28} \lambda_1 + \frac{2}{35} x - \frac{1}{35} u \right]. \quad (8c)$$

Dans les équations (6) à (8), W_0 est l'énergie maximum de la transition bêta. Les paramètres λ_1 , λ_2 , λ_4 sont des fonctions de W et ont été calculés par KOTANI²⁰. Chacune des observables a , b et c définit une surface du deuxième degré dans un système de coordonnées u , x , Y . Le point d'intersection commun à ces surfaces permet de déterminer u , x et Y ; il est alors aisé de tirer la valeur des 4 éléments de matrice à partir du $\log f t$.

III. Dispositif expérimental et technique de mesure

1. Appareillage

Le dispositif expérimental utilisé pour les mesures préliminaires et celles de Sb^{124} a été décrit précédemment¹⁰). Pour les mesures de l' Eu^{152} et de l' Eu^{154} , nous avons construit une chambre à vide plus grande et utilisé un spectromètre à coïncidences à plusieurs canaux. Les caractéristiques de ce dispositif sont les suivantes: La source est montée sur une feuille de mylar de $0,9 \text{ mg/cm}^2$, tendue sur un anneau de plexiglas de 86 mm de diamètre intérieur et de 3 mm d'épaisseur. Elle est placée sous vide, à l'intérieur d'un cylindre en aluminium de 250 mm de diamètre et

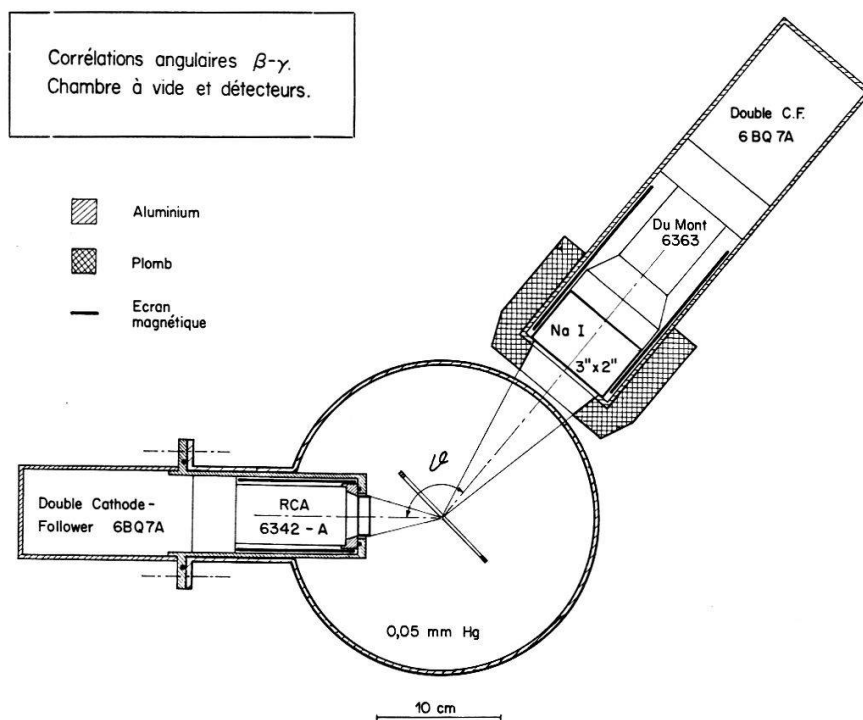


Fig. 1

400 mm de hauteur, avec une épaisseur de paroi de 3 mm. Un sas permet de l'enlever rapidement et de la remplacer par une source étalon. Le détecteur bêta est fixé perpendiculairement à l'axe de la chambre à vide et plonge à l'intérieur. Il est constitué d'un scintillateur plastique (Nuclear Enterprises NE 102) de 36 mm de diamètre et 9 mm de hauteur, et d'un photomultiplicateur RCA 6342-A. L'une des bases et le manteau du scintillateur ont été recouverts par évaporation sous vide d'un mince film d'aluminium. Le détecteur gamma, extérieur à la chambre à vide, est mobile autour de l'axe de celle-ci. Il se compose d'un cristal de NaI (Tl) de 76 mm de diamètre et 51 mm d'épaisseur, et d'un photomultiplicateur DuMont 6363. La résolution du détecteur bêta est de 18% pour la ligne de conversion de 980 keV du Pb^{207} , celle du détecteur gamma de 9% pour la ligne de 661 keV du Cs^{137} . L'étalonnage en énergie de la voie bêta a été effectué à l'aide des lignes de conversion du Cs^{137} (624 keV) et du Pb^{207} (980 et 481 keV). La validité de l'extrapolation linéaire vers les hautes énergies a été périodiquement contrôlée à l'aide d'un générateur d'impulsions. Le dispositif de détection est représenté par la figure 1.

Le spectromètre à coïncidences proprement dit est du type «fast-slow». Les impulsions recueillies sur l'anode des photomultiplicateurs passent par un amplificateur rapide, saturé avec une impulsion d'entrée de 20 mV, et sont normées à une amplitude de 1 V et une durée de 5 nsec. Elles commandent un étage de coïncidences rapides, dont le temps de résolution est $2\tau_R = 9$ nsec. Dans chacune des voies lentes, les impulsions collectées à la huitième dynode du photomultiplicateur sont amplifiées linéairement (Nuclear Enterprises «Non-overloading» NE 5202). Plusieurs analyseurs à un canal (2 dans la voie gamma, 4 dans la voie bêta) sélectionnent chacun une bande d'énergie et déclenchent, par l'intermédiaire d'unités de mise en forme des impulsions, un circuit de coïncidences lent de résolution $2\tau_L = 4 \cdot 10^{-7}$ sec. Une horloge permet de présélectionner la durée de chaque mesure, et commande automatiquement le déplacement du détecteur mobile et l'enregistrement des résultats. Le schéma général de l'installation est illustré par la figure 2.

2. Sources

Sb^{124} : Un échantillon métallique enrichi à 97,7% de Sb^{123} a été irradié pendant 18 jours dans un flux de $2 \cdot 10^{13}$ n/cm² sec. Ce métal a été évaporé sous vide sur une feuille d'aluminium de 0,4 mg/cm², tendue sur un anneau de plexiglas de 20 mm de diamètre intérieur. La source avait un diamètre de 3 mm et une épaisseur de 1 mg/cm².

Eu^{152} : De l'oxyde d'Eu enrichi à 91,9% d' Eu^{151} a été irradié pendant 20 jours dans un flux de $0,9 \cdot 10^{14}$ n/cm² sec. La source a été préparée par évaporation à sec d'une goutte d' EuCl_3 en solution aqueuse sur une feuille d'or de 1,5 mg/cm². Elle a été oxydée dans un four à une température de 700°C et recouverte d'un film protecteur de laque LC600 de quelques $\mu\text{g}/\text{cm}^2$. Son épaisseur était de 0,9 mg/cm² et son diamètre de 2 mm. La feuille d'or a ensuite été collée sur un disque de mylar perforé en son centre.

Eu^{154} : De l'oxyde enrichi à 98,96% d' Eu^{153} a été irradié pendant 4 semaines dans un flux de $1,3 \cdot 10^{14}$ n/cm² sec. Deux sources ont été utilisées. L'une a été préparée comme dans le cas précédent, sur une feuille de mica de 1 mg/cm². Son diamètre était de 8 mm et son épaisseur de 0,7 mg/cm². La seconde consistait en

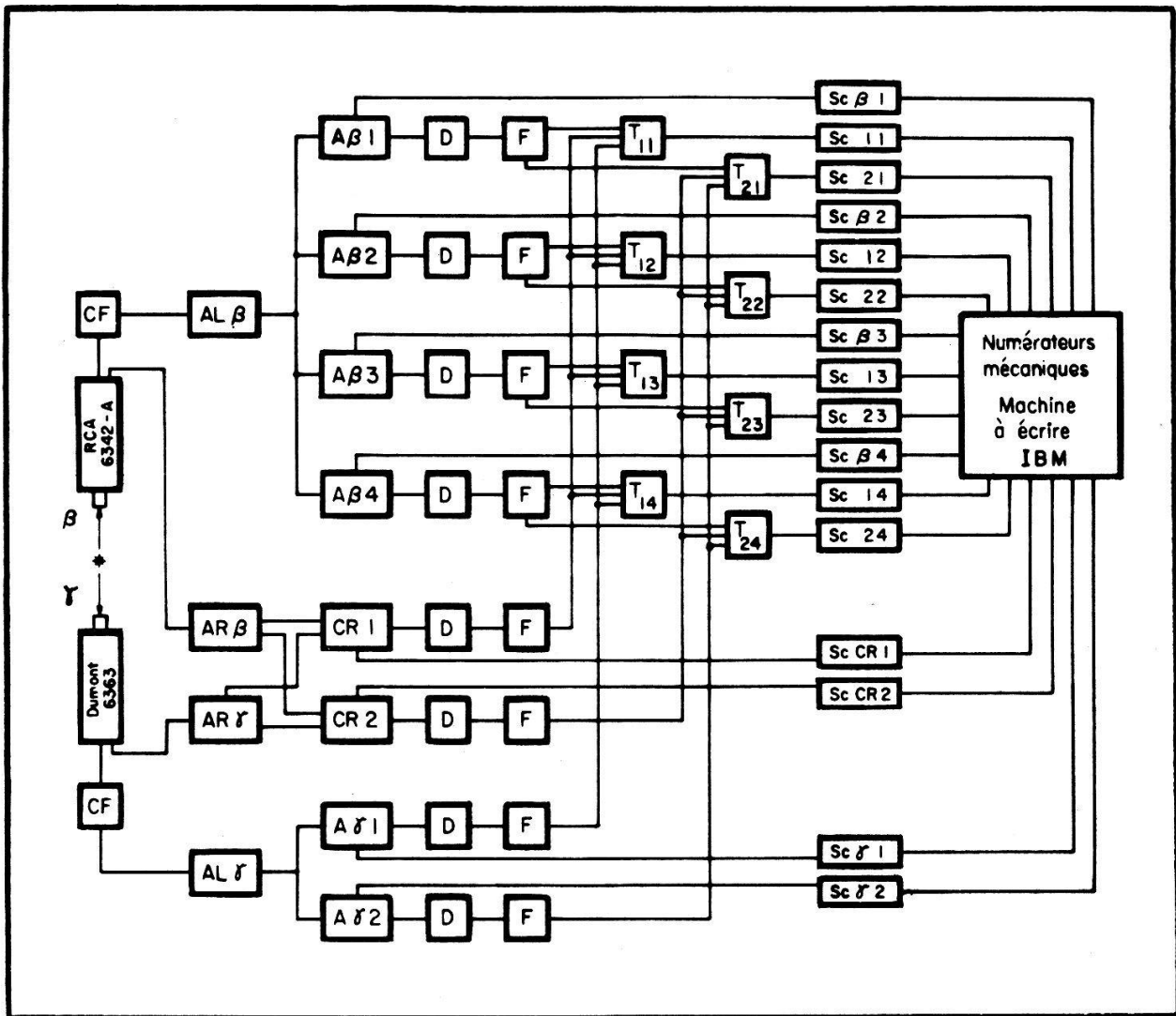


Fig. 2

Schéma général de l'électronique

AL = Amplificateur linéaire NE 5202; AR = Amplificateur rapide; A = Analyseur mono-canal NE 5102; D = Délai (variable de 0 à 2 μ sec); F = Mise en forme des impulsions (12 V et 0,3 μ sec); CR = Coïncidence rapide ($2\tau_R = 9$ nsec); T = Coïncidence triple ($2\tau_L = 0,4$ μ sec), Sc = Echelle

une solution aqueuse d' EuCl_3 contenant 70% de glycérine. La viscosité du mélange était d'environ 0,2 poises à 25°C. Une goutte de cette solution a été étalée entre un disque de mica de 1 mg/cm² et une feuille de mylar de 0,9 mg/cm². L'étanchéité du tout a été réalisée par un film de laque 70700 dont l'épaisseur était d'environ 200 μ g/cm². Cette source avait un diamètre de 10 mm et une épaisseur de 5 mg/cm².

3. Technique de mesure

La fonction de corrélation bêta-gamma dépend de l'énergie de la particule bêta. Pour étudier cette dépendance, nous sélectionnons dans les analyseurs de la voie bêta 4 bandes d'énergie différente, d'une largeur de 100 keV. Selon le seuil choisi, plusieurs cas peuvent se présenter; ils sont illustrés par la figure 3.

Dans le cas a) une seule transition bêta est enregistrée (β_1). Nous n'acceptons alors dans chacune des voies gamma que les impulsions correspondant au pic photoélectrique de la transition γ_1 . La corrélation $\beta_1-\gamma_1$ pure est ainsi mesurée dans chacune des voies du circuit de coïncidences. Cette mesure simultanée dans deux circuits différents permet de contrôler la bonne marche de nos appareils.

Dans le cas b), une partie du spectre de deux transitions bêta différentes est acceptée par l'analyseur bêta. Les deux analyseurs gamma sont réglés pour n'accepter que les pics photoélectriques des transitions γ_1 et γ_2 . Si l'énergie de la transition γ_2 est supérieure à celle de la transition γ_1 , une des voies du circuit de coïncidences mesure la corrélation $\beta_2-\gamma_2$ pure, l'autre un mélange des corrélations $\beta_1-\gamma_1$ et $\beta_2-\gamma_2$, ainsi que la corrélation triple $\beta_2-(\gamma_2)-\gamma_1$, où la radiation γ_2 n'est pas observée. Cette façon de procéder permet de corriger dans les meilleures conditions la contribution de corrélations étrangères à la corrélation $\beta_1-\gamma_1$ que nous cherchons à déterminer.

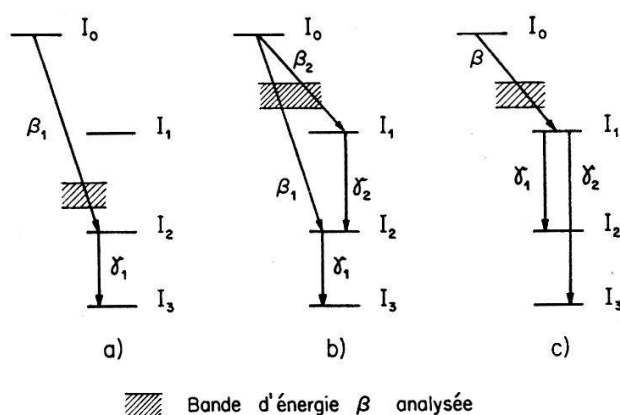


Fig. 3

Différents types de mesures

Dans le cas c), les fonctions de corrélation $\beta-\gamma_1$ et $\beta-\gamma_2$ peuvent être mesurées si l'on connaît le profil de ligne de chacune des transitions gamma enregistrée par notre détecteur, ainsi que leur rapport d'embranchement.

Pour chaque bande d'énergie comprise entre W_s et $W_s + \Delta W$, la fonction de corrélation directionnelle entre une transition bêta interdite du premier ordre et la transition gamma qui lui succède est de la forme :

$$N_{\beta\gamma}(\overline{W}) = 1 + \varepsilon(\overline{W}) P_2(\cos\theta).$$

θ est l'angle sous-tendu par les directions d'émission des deux radiations, et \overline{W} est l'énergie moyenne de l'électron dans la bande choisie. Cette énergie est définie par la relation

$$\overline{W} = \frac{\int_{W_s}^{W_s + \Delta W} W n(W) dW}{\int n(W) dW}$$

où $n(W)$ est le nombre de bêta émis avec l'énergie W .

Une mesure du taux de coïncidences pour $\theta = 90^\circ$ et $\theta = 180^\circ$ est en principe suffisante pour déterminer $\varepsilon(\overline{W})$. Elle ne permet cependant pas de déceler les asy-

métries d'appareillage. Il est en outre nécessaire de s'assurer que la source est bien centrée et que les diffusions éventuelles des deux radiations en cascade, à l'intérieur et à l'extérieur de la chambre à vide, ne modifient pas la forme de la fonction de corrélation. Le centrage de la source est obtenu en déplaçant l'axe de la chambre à vide, qui passe par le centre de la source, jusqu'à ce que le nombre de gamma enregistrés sous les angles $\theta = 90^\circ$, 180° et 270° diffère de moins de 0,5%. La forme de la fonction de corrélation expérimentale peut être déterminée en choisissant les angles d'un cycle de mesures dans la succession $\theta = 90^\circ$, 135° , 180° ; 180° , 225° et 270° ; ce choix permet également de contrôler la symétrie du dispositif par rapport à $\theta = 180^\circ$, et de comparer le taux de coïncidences mesuré en fonction de θ avec une corrélation de la forme

$$N(\theta) = 1 + \varepsilon P_2(\cos\theta) + A_4 P_4(\cos\theta) .$$

Nous définissons les deux paramètres de mesure

$$A = \frac{2 Ct(180^\circ) - Ct(90^\circ) - Ct(270^\circ)}{Ct(90^\circ) + Ct(270^\circ) - 2 Cf}$$

$$U = \frac{Ct(135^\circ) + Ct(225^\circ) - Ct(90^\circ) - Ct(270^\circ)}{Ct(90^\circ) + Ct(270^\circ) - 2 Cf} .$$

$Ct(\theta) = nC/\beta\gamma$ est le nombre de coïncidences total C rapporté au nombre de bêta et de gamma, enregistré sous un angle θ pendant n cycles de durée T . Cf est le taux de coïncidences fortuites, déterminé avec la méthode des deux sources.

Une moyenne de k mesures A^k , U^k , pondérée proportionnellement à l'inverse du carré de l'erreur statistique, a été calculée pour chaque énergie W (analyse χ^2). Les coefficients ε et A_4 ont été déterminés à partir des valeurs moyennes \bar{A} et \bar{U} . L'absence d'un terme en $P_4(\cos\theta)$ dans la fonction de corrélation ($A_4 = 0$), qui se traduit par $\bar{A} = 2\bar{U}$, est non seulement une confirmation du degré d'interdiction de la transition bêta étudiée, mais encore un test de la symétrie géométrique de notre appareillage. Cette symétrie a en outre été vérifiée par la mesure d'une corrélation relative à une transition bêta permise, pour chacun des isotopes étudiés; une telle corrélation est théoriquement isotrope.

Chaque mesure a duré de 20 à 40 heures, y compris le temps réservé à la mesure des coïncidences fortuites. La position du détecteur gamma était modifiée toutes les 5 à 10 minutes (T). Entre chaque mesure, les analyseurs ont été étalonnés en énergie et les seuils de discrimination réajustés. Pour une énergie donnée de la particule bêta, le nombre total des coïncidences enregistrées sous un angle θ dans une série de k mesures a varié entre 50000 et 120000.

4. Corrections pour un mélange de cascades

La corrélation mesurée peut contenir une contribution de cascades $\gamma-\gamma$ selon la bande d'énergie choisie dans la voie bêta. Cette contribution peut être directement mesurée si l'on absorbe les électrons par un écran d'aluminium placé devant le scintillateur bêta; elle est en général petite en raison de la faible efficacité d'un scintillateur plastique mince pour les rayons gamma.

Une correction plus importante doit être faite lorsque deux transitions bêta sont admises dans la bande d'énergie de la voie bêta. La fonction mesurée est alors une superposition de trois corrélations; un tel cas est illustré par la figure 3b). Nous mesurons alors dans la voie $\beta_1-\gamma_1$ un mélange des corrélations:

1. $I_0(\beta_1) - I_2(\gamma_1) - I_3$,
2. $I_0(\beta_2) - [I_1(\gamma_2)] - I_2(\gamma_1) - I_3$,
3. $I_0(\beta_2) - I_1(\gamma_2) - I_2$.

La parenthèse [] signifie que la radiation γ_2 n'est pas observée, tandis que la troisième cascade n'intervient que par la fraction du spectre de scintillation Compton de γ_2 comprise sous le pic photoélectrique de γ_1 .

Soit a le rapport du nombre d'électrons d'énergie E de la transition β_2 à celui de la transition β_1 . Soit b le rapport du nombre de photons de la transition γ_2 à celui de la transition γ_1 , admis dans la bande de l'analyseur gamma. Soient enfin ε_1 , ε_2 , ε_3 les facteurs d'anisotropie des corrélations 1, 2 et 3. La valeur mesurée ε^* s'écrit:

$$\varepsilon^* = \frac{\varepsilon_1 + a \varepsilon_2 + a b \varepsilon_3}{1 + a + a b}.$$

En posant $c = \varepsilon_2/\varepsilon_1$ et $d = \varepsilon_3/\varepsilon_1$, nous obtenons pour la fonction de corrélation principale:

$$\varepsilon_1 \cong \varepsilon^* \frac{1 + a + a b}{1 + a (b + c/d) \varepsilon_3/\varepsilon^*}.$$

Le facteur a est déduit du rapport d'intensité total des deux transitions β_1 et β_2 . b est une fonction de l'efficacité du détecteur gamma, de sa résolution, du rapport d'embranchement des deux transitions gamma envisagées et de leurs coefficients de conversion interne. La valeur de ε_3 est mesurée directement dans la seconde voie du circuit de coïncidences, simultanément à celle de ε^* . Le rapport c/d , pour une transition γ_1 pure, a la forme suivante:

$$\frac{c}{d} = F_2(L_1 L_1 I_3 I_2) \cdot \left[(2 I_1 + 1) (2 I_2 + 1) \right]^{1/2} \\ \times \frac{(-1)^{I_1-I_2-L_2} W(I_1 I_1 I_2 I_2; 2 L_2) + \delta^2 (-1)^{I_1-I_2-L'_2} W(I_1 I_1 I_2 I_2; 2 L'_2)}{F_2(L_2 L_2 I_2 I_1) + 2 \delta F_2(L_2 L'_2 I_2 I_1) + \delta^2 F_2(L'_2 L'_2 I_2 I_1)}.$$

L_2 et L'_2 caractérisent l'ordre multipolaire de la transition γ_2 , et δ le paramètre de mélange. Les coefficients géométriques $W(I_a I_a I_b I_b; n L_k)$ et $F_n(L_k L'_k I_b I_a)$ sont tabellés.

5. Corrections d'angle solide. Dimensions et épaisseur de source

Ces corrections se ramènent à la multiplication par un facteur correctif de la valeur de ε_{exp} . Ce procédé n'est valable que si les détecteurs ont un axe de symétrie de rotation et si les dimensions de la source sont petites par rapport à celles des détecteurs. Dans notre dispositif, l'influence de l'extension finie de la source est négligeable. L'épaisseur de la source nécessite une correction très faible, inférieure à 0,5% de la valeur mesurée. Pour la source liquide d'Eu¹⁵⁴, le facteur correctif était de 1,015 dans la bande d'énergie $\bar{W} = 3,53 m_0 c^2$. La correction d'angle solide pour

le détecteur gamma a été déterminée expérimentalement selon la méthode de LAWSON et FRAUENFELDER¹⁹). Nous avons admis que l'efficacité du détecteur bêta était de 100%, indépendamment de l'angle d'incidence de la particule bêta. La correction d'angle solide a été calculée. L'influence de la rétrodiffusion des électrons sur le scintillateur bêta, évaluée d'après le profil de la ligne de conversion du Pb²⁰⁷ (980 keV), a été négligée, ce profil étant pratiquement symétrique.

Le tableau 3 donne les différentes caractéristiques des détecteurs et les corrections apportées. Dans ce tableau, $d_{s\beta}$ et $d_{s\gamma}$ sont les distances de la source aux détecteurs bêta et gamma. Les facteurs $Q_{2\beta}$ et $Q_{2\gamma}$ sont les facteurs de correction d'angle solide pour le terme en $P_2(\cos\theta)$ de la fonction de corrélation, et E_γ est l'énergie de la transition gamma de la cascade étudiée.

Tableau 3
Caractéristiques des sources et des détecteurs

Isotope	Source		Détecteur β		Détecteur γ		$d_{s\beta}$	$d_{s\gamma}$	E_γ	$Q_{2\beta}$	$Q_{2\gamma}$
	\varnothing mm	ρ mg/cm ²	\varnothing mm	h mm	\varnothing mm	h mm					
Sb ¹²⁴	3	1	32	12	25,4	25,4	33	39	603	1,171	1,046
Eu ¹⁵²	2	0,9	36	7	76	51	61	165	344	1,065	1,037
Eu ¹⁵⁴	8	0,7	34	9	76	51	56	182	123	1,068	1,024*)
(Oxyde)			32	9	76	51	56	179	123	1,060	1,036**)
Eu ¹⁵⁴ (Liquide)	10	5,0	34	9	76	51	56	179	123	1,068	1,036

*) Diaphragme du collimateur de Pb entourant le détecteur gamma: $\varnothing = 50$ mm
 **) Diaphragme du collimateur de Pb entourant le détecteur gamma: $\varnothing = 68$ mm

IV. Résultats des mesures

1. Sb¹²⁴

Notre première étude de corrélations directionnelles bêta-gamma dans la désintégration de l'Eu¹⁵² ¹⁰) et les résultats communiqués par différents auteurs¹⁶⁾¹⁷⁾¹⁸) divergent considérablement. Nous avons donc jugé opportun de mesurer la corrélation 3-(2,31 MeV) 2+(0,603 MeV) 0+ dans le Sb¹²⁴, avec les mêmes conditions expérimentales que nous avons adoptées pour l'Eu¹⁵². Les résultats, comparés avec une mesure très précise de STEFFEN¹⁵), devaient permettre un contrôle de la sensibilité de notre dispositif expérimental. La figure 4 représente le schéma de désintégration de Sb¹²⁴ (Nuclear Data Sheets, NRC 60-6-76).

Nous avons mesuré la dépendance en énergie de la fonction de corrélation directionnelle $\beta_1-\gamma_1$ (cf. fig. 4), pour des énergies bêta comprises entre 1,1 et 1,8 MeV; au-dessous de 1,58 MeV, il était nécessaire de corriger la valeur expérimentale $\varepsilon(\overline{W})$, qui contient une contribution importante des corrélations $\beta_2-\gamma_2$ et $\beta_2-(\gamma_2)-\gamma_1$. Cette correction ne peut être faite correctement que si la corrélation $\beta_2-\gamma_2$ et le facteur de mélange multipolaire de la radiation γ_2 sont connus. Nous avons utilisé à cet effet les résultats d'une mesure de PAUL²¹). Pour chaque bande d'énergie mesurée, les contributions relatives des trois corrélations contribuant à ε_{exp} ont été

déterminées sur la base du rapport d'intensité total des deux transitions β_1 et β_2 . Le spectre de scintillations du gamma de 722 keV a été extrapolé à partir de celui de la ligne de 662 keV du Cs^{137} .

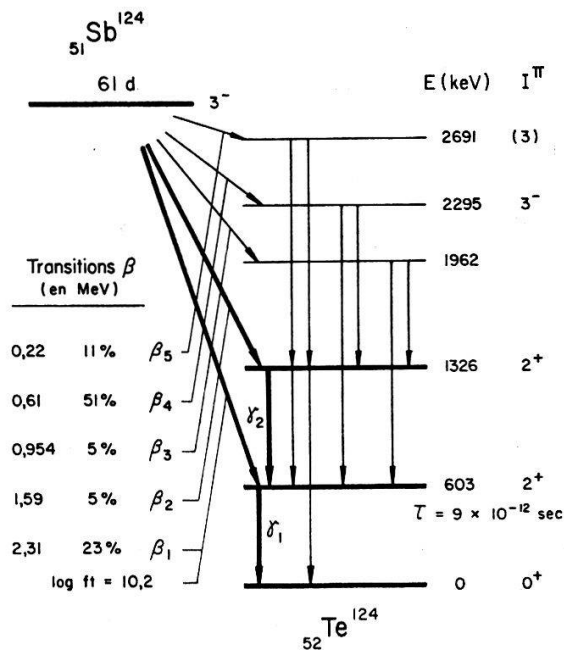


Fig. 4

Schéma de désintégration de Sb^{124}

Le tableau 4 récapitule les résultats des mesures, et donne :

1. la valeur moyenne de l'énergie \bar{W} de chaque bande mesurée,
2. la valeur expérimentale $\varepsilon_{exp}(\bar{W})$, corrigée pour la présence de coïncidences fortuites et l'extension finie des détecteurs (angle solide),
3. le rapport d'intensité a des deux transitions β_1 et β_2 relatif à la bande d'énergie choisie,
4. la valeur $\varepsilon(\bar{W})$ corrigée pour la contribution d'autres cascades, ainsi que son erreur,
5. le rapport des coïncidences fortuites Cf aux coïncidences totales Ct .

L'erreur indiquée $\Delta\varepsilon$ tient compte de l'écart quadratique moyen de la répartition statistique des mesures et de l'incertitude des différentes corrections.

Nous donnons encore dans ce tableau la valeur du facteur d'anisotropie de la corrélation $\beta_2-\gamma_2$ et le paramètre de mélange E2—M1 de la transition γ_2 que nous avons utilisés pour la correction de $\varepsilon_{exp}(\bar{W})$. Ces grandeurs sont tirées des mesures de PAUL²¹⁾ et de LINDQUIST *et al.*²²⁾. A titre de comparaison, quelques valeurs de STEFFEN²³⁾ pour le facteur ε de la fonction de corrélation $\beta_1-\gamma_1$ sont indiquées.

Nos résultats sont compatibles avec ceux de STEFFEN. Il est donc légitime d'admettre que, malgré l'exigüité de la chambre à vide utilisée, la corrélation mesurée n'est ni atténuée ni déformée par la diffusion des électrons sur les parois de cette chambre. La sensibilité de notre dispositif expérimental est ainsi vérifiée. Bien que cette conclusion soit positive, un nouveau dispositif a été construit. Il s'adaptait plus facilement à l'électronique rapide de notre laboratoire, tout en permettant des mesures plus complètes et plus précises. Une seconde mesure dans le cas de l' Eu^{152} est venue confirmer son efficacité.

Tableau 4

Résultats des mesures de la corrélation directionnelle
 $\text{Sb}^{124} 3^- (2,31 \text{ MeV } \beta) 2^+ (0,603 \text{ MeV } \gamma) 0^+ \text{Te}^{124}$

\bar{W}	$\varepsilon_{exp}(\bar{W})$	a	$\varepsilon_1(\bar{W})$	$\Delta\varepsilon$	Cf/Ct
1)	2)	3)		4)	5)
3,16	- 0,228	0,258	- 0,264	0,020	0,04
3,36	- 0,248	0,188	- 0,270	0,015	0,05
3,54	- 0,272	0,127	- 0,289	0,015	0,04
3,60	- 0,285	0,117	- 0,304	0,015	0,09
3,75	- 0,284	0,079	- 0,295	0,012	0,08
3,80	- 0,290	0,066	- 0,306	0,010	0,09
3,98	- 0,321	0,029	- 0,336	0,010	0,12
4,10	- 0,353	~ 0	- 0,353	0,014	0,16
4,58	- 0,378		- 0,378	0,009	0,15
4,74	- 0,387		- 0,387	0,012	0,05

Corrélation $\beta_2 - \gamma_2$:
 $\varepsilon_2 = +0,19 \pm 0,01$ $\delta_{\gamma_2}(\text{E2} - \text{M1}) = +0,9 \pm 0,2$

Valeurs de STEFFEN:

$\bar{W} = 3,2$	$\varepsilon_1(\bar{W}) = -0,260 \pm 0,007$
$= 4,0$	$= 0,350 \pm 0,009$
$= 4,7$	$= -0,390 \pm 0,006$

2. Eu^{152}

L'objectif final de ce travail étant la détermination expérimentale des éléments de matrice nucléaires de la transition bêta, il était souhaitable de connaître la corrélation $\text{Eu}^{152} (1,48 \text{ MeV } \beta) 2^+(0,344 \text{ MeV } \gamma) 0^+ \text{Gd}^{152}$ avec une meilleure précision que celle de notre première étude¹⁰). La présente mesure a permis de faire une correction rigoureuse pour l'influence de cascades perturbatrices tout en vérifiant la sensibilité de notre nouvel appareillage. La figure 5 représente le schéma de désintégration de l' Eu^{152} (Nuclear Data Sheets NRC 59-4-77). Le spin 4 du niveau de 755 keV du Gd^{152} a été déterminé dans ce laboratoire par une mesure de la corrélation $\gamma_2 - \gamma_1$ en coïncidence avec la transition β_2 (cf. fig. 5*). D'après cette même étude, le paramètre de mélange $\text{M3} - \text{E2}$ de la transition γ_2 est de $+0,15 \leq \delta \leq +0,20$ ²⁸).

Nous avons mesuré la corrélation directionnelle $\beta_1 - \gamma_1$ en fonction de l'énergie des particules bêta. Le seuil de la bande d'énergie sélectionnée variait entre 850 et 1350 keV. Comme dans le cas de Sb^{124} , une correction est nécessaire pour les bandes d'énergie comprises entre 850 et 1050 keV. Pour l'effectuer, nous avons mesuré simultanément la corrélation $\beta_2 - \gamma_2$ pour les énergies considérées. Le tableau 5 donne :

1. les valeurs de ε_{exp} corrigées pour les coïncidences fortuites, les coïncidences gamma-gamma, l'extension et la résolution finie des détecteurs,
2. les valeurs de $\varepsilon(\bar{W})$ compte tenu de la correction pour les cascades perturbatrices, et leur erreur,
3. le rapport d'intensité a des deux transitions β_2 et β_1 dans la bande d'énergie mesurée,

*) Note en cours d'impression: Cette mesure a été récemment confirmée par SCHICK et GRODZINS [Bull. Am. Phys. Soc. 8, 333 (1963)].

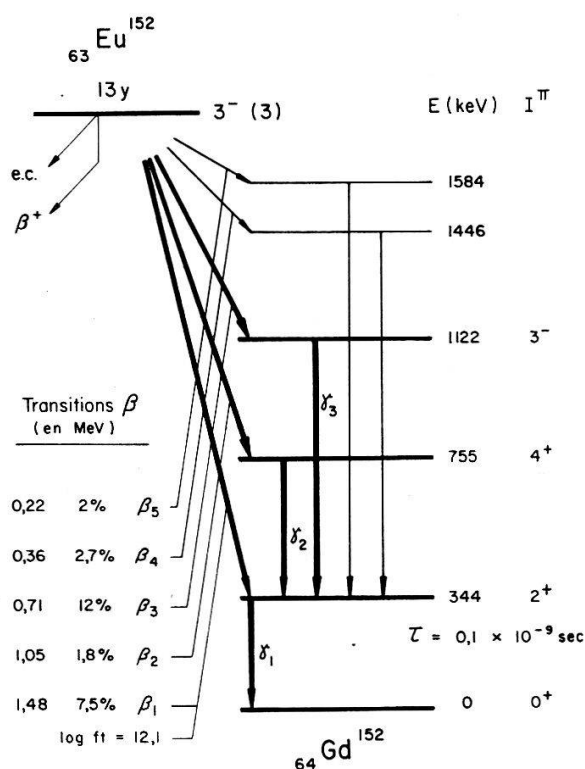


Fig. 5

Schéma de désintégration de Eu^{152}

4. le rapport des coïncidences gamma-gamma et des coïncidences fortuites aux coïncidences totales,
 5. les valeurs de ε_2 pour la fonction de corrélation $\beta_2-\gamma_2$.
- $\Delta\varepsilon$ tient compte de l'erreur statistique et de l'erreur des différentes corrections.

Tableau 5

Résultats des mesures de la corrélation directionnelle
 $\text{Eu}^{152} 3^- (1,48 \text{ MeV } \beta) 2^+ (0,344 \text{ MeV } \gamma) 0^+ \text{ Gd }^{152}$

\bar{W}	$\varepsilon_{exp}(\bar{W})$ 1)	a 3)	$\varepsilon(\bar{W})$ 2)	$\Delta\varepsilon$	$C_{\gamma\gamma}/Ct$ 4)	Cf/Ct 4)
2,51	- 0,262	0,09	- 0,282	0,014	0,15	0,03
2,70	- 0,329	0,05	- 0,340	0,020	0,14	0,03
2,86	- 0,365	0,01	- 0,367	0,009	0,12	0,03
3,01	- 0,392	~ 0	- 0,392	0,008	0,12	0,04
3,12			- 0,399	0,009	0,14	0,05
3,23			- 0,405	0,011	0,14	0,04
3,32			- 0,425	0,012	0,13	0,05
3,42			- 0,434	0,013	0,12	0,04
3,49			- 0,436	0,008	0,11	0,04
3,54			- 0,457	0,012	0,10	0,05
3,64			- 0,447	0,013	0,07	0,04

Corrélation $\beta_2-\gamma_2$:

$\bar{W} = 2,51$	$\varepsilon_2(\bar{W}) = - 0,053 \pm 0,013$
$= 2,70$	$= - 0,074 \pm 0,011$
$= 2,86$	$= - 0,084 \pm 0,014$

La symétrie de notre dispositif a été contrôlée par la mesure de la corrélation $\beta_3-\gamma_3$; la transition β_3 est permise et la corrélation doit être isotrope. La valeur obtenue pour une énergie bêta comprise entre 400 et 700 keV: $\varepsilon_3 = +0,010 \pm 0,015$ confirme que la diffusion des électrons dans la chambre à vide ne provoque pas d'asymétrie dans le taux de coïncidences. Enfin, la forme de la corrélation: $N_{\beta\gamma}(\theta) = 1 + \varepsilon P_2(\cos\theta)$ a été contrôlée par une série de mesures pour lesquelles nous avons mesuré les deux paramètres expérimentaux A et U , définis plus haut. La figure 6a) représente le résultat de l'une de ces mesures.

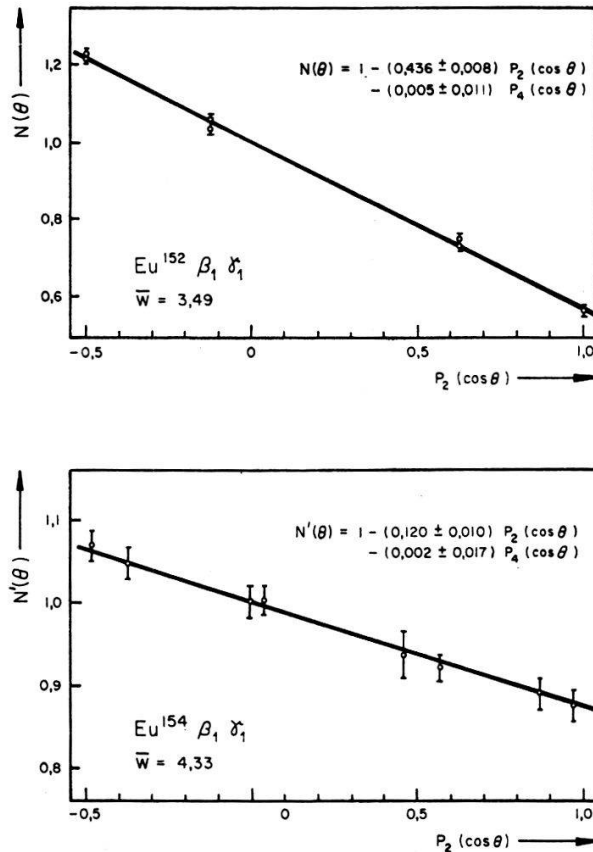


Fig. 6

Corrélation $\beta_1-\gamma_1$ reportée en fonction de $P_2(\cos\theta)$ a) Eu^{152} ; b) Eu^{154}

Les valeurs de $\varepsilon(\bar{W})$ observées sont compatibles avec les résultats de notre première étude¹⁰⁾, bien qu'en moyenne légèrement inférieures. Elles sont par contre en désaccord avec les mesures de DULANEY *et al.*¹⁶⁾, BHATTACHERJEE *et al.*¹⁷⁾ et FISCHBECK *et al.*¹⁸⁾, l'écart moyen absolu étant respectivement de 0,09, 0,11 et 0,05 pour une énergie $\bar{W} \cong 3,35 m_0 c^2$. Nous ne pouvons pas expliquer ces différences. Leur effet sur la détermination des rapports des éléments de matrice est d'ailleurs beaucoup moins important.

3. Eu^{154}

Cet isotope, à bien des égards analogue à l' Eu^{152} , s'en distingue cependant par deux caractéristiques essentielles. Le Gd^{154} est déformé et possède un spectre de rotation alors que le Gd^{152} est sphérique et possède un certain nombre de niveaux de vibration. D'autre part, la durée de vie du premier niveau excité du Gd^{154} est longue, en raison de la faible énergie du niveau; elle pose un problème particulier:

celui de l'atténuation de la fonction de corrélation. La figure 7 représente le schéma de désintégration de l' Eu^{154} (Nuclear Data Sheets NRC 59-3-63).

Des mesures de corrélation gamma-gamma²⁴⁾ ont montré que l'atténuation était due à deux types de perturbation: d'une part l'interaction du moment quadropolaire électrique du noyau avec une variation du champ électrique local dans une source polycristalline, d'autre part l'interaction de structure hyperfine due au couplage des moments magnétiques dipolaires du noyau et de l'ion paramagnétique Gd^{3+} . La corrélation est atténuée car le spin du noyau dans le niveau intermédiaire

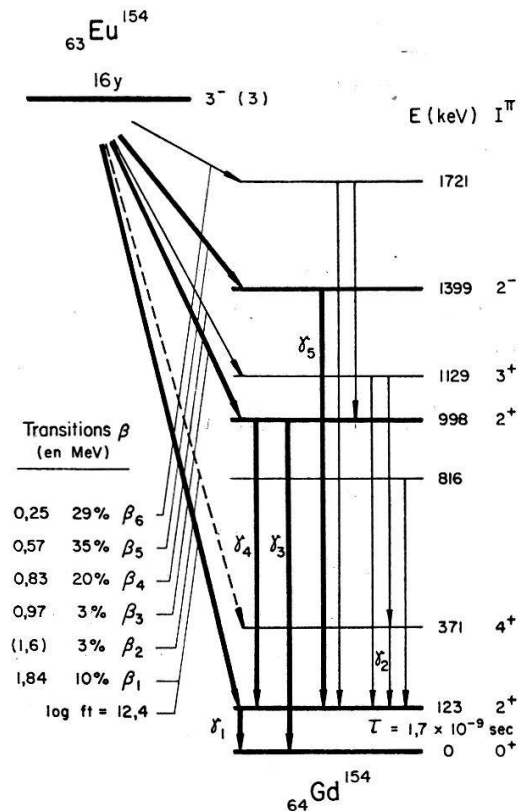


Fig. 7

Schéma de désintégration de Eu^{154}

de la cascade change d'orientation avant que ce niveau se désexcite. L'expérience a montré que dans le cas d'une source liquide l'interaction quadropolaire est négligeable pour une durée de vie du niveau intermédiaire de l'ordre de 1 nsec. En particulier, OFER²⁵⁾ a constaté que les corrélations mettant en jeu le niveau de 122 keV du Sm^{152} , dont la durée de vie est de $\tau_n = 2$ nsec, n'étaient pas modifiées que la source soit en solution aqueuse d'une viscosité de 0,01 poises ou dans un mélange de glycérol de viscosité égale à 5 poises. D'autre part, en découplant le spin du noyau et le spin de la couche électronique par un champ magnétique parallèle à la direction d'observation du premier quantum, STIENING et DEUTSCH²⁶⁾ sont parvenus à éliminer la perturbation due à l'interaction de structure hyperfine dans la cascade $2^-(\gamma_5) 2^+(\gamma_1) 0^+$ du Gd^{154} (cf. fig. 7). La corrélation vraie étant connue, il est alors possible de mesurer par comparaison les coefficients d'atténuation de différentes sources.

Du point de vue des corrélations bêta-gamma, il n'est guère possible de concilier les exigences d'une source mince et d'une diffusion négligeable des électrons dans

l'entourage de la source avec un dispositif de découplage magnétique permettant d'obtenir la corrélation vraie à partir d'une source liquide. La plupart de nos mesures ont été faites avec une source d'oxyde d'Eu et sont donc sujettes à la double atténuation quadropolaire et hyperfine. Les mesures faites avec une source liquide ont permis de vérifier que le coefficient d'atténuation dû à l'interaction quadropolaire est, dans la limite d'erreur expérimentale, le même pour la corrélation bêta-gamma que pour la corrélation gamma-gamma.

Soit G_2^O le rapport des anisotropies de la corrélation pour une source d'oxyde et pour une source liquide. Nos mesures donnent :

$$G_2^O(\beta \gamma) = 0,56 \pm 0,03 .$$

Ce résultat est compatible avec les résultats de DEBRUNNER²⁴) :

$$G_2^O(\gamma \gamma) = 0,55 \pm 0,10 .$$

En utilisant d'autre part la mesure de l'atténuation due à l'interaction de structure hyperfine de STIENING et DEUTSCH²⁶), nous obtenons le coefficient d'atténuation total d'une source d'oxyde :

$$G_2^t(\beta \gamma) = G_2^O(\beta \gamma) G_2^{Hfs}(\beta \gamma) = G_2^O(\beta \gamma) \cdot \frac{1}{1 + \tau_n/\tau_2} = 0,46 \pm 0,04$$

expression dans laquelle $\tau_n = 1,7$ nsec et $\tau_2 = 7,8$ nsec²⁶). Ce coefficient d'atténuation est compatible avec celui que l'on obtient sur la base de corrélations gamma-gamma, soit $G_2^t(\gamma \gamma) = 0,41 \pm 0,08$ ²⁴). Signalons en outre qu'il a été établi que la grande majorité des atomes, après la désintégration bêta, retournent au niveau fondamental de l'ion Gd³⁺ en un temps considérablement plus court que la durée de vie du niveau 2⁺ de 123 keV; la perturbation peut donc être considérée comme stationnaire²⁶). Il est ainsi plausible que l'atténuation ne dépende pas du fait que la première transition de la cascade soit une transition bêta ou une transition gamma.

Nous avons mesuré les fonctions de corrélation directionnelle des cascades $\beta_1-\gamma_1$ et $\beta_3-\gamma_3$ (cf. fig. 7). La première est comparable au cas de l'Eu¹⁵² discuté plus haut. La seconde est intéressante car, le niveau 2⁺ (998 keV) du Gd¹⁵⁴ étant un niveau de rotation $K = 2$, la transition β_3 n'est pas interdite par la règle de sélection K . Il n'en est pas de même pour la transition β_1 , pour laquelle on a $\Delta I < \Delta K = 3$. La corrélation $\beta_1-\gamma_1$ a été mesurée en fonction de l'énergie des bêta, par bandes de 100 et 200 keV, avec un seuil variant entre 1000 et 1700 keV. La corrélation $\beta_2-\gamma_2$ a été mesurée simultanément pour les bandes d'énergie comprises entre 1000 et 1400 keV. Le nombre minime des coïncidences enregistrées dans cette voie montre que la transition β_2 est douteuse. Les résultats de l'analyse du spectre bêta par LANGER²⁷) s'accordent avec cette conclusion. La correction due à un mélange des corrélations $\beta_1-\gamma_1$, $\beta_2-(\gamma_2)-\gamma_1$ et $\beta_2-\gamma_2$ a été ainsi négligée. La source utilisée contient un mélange d'Eu¹⁵² et d'Eu¹⁵⁴. Le rapport d'intensité des transitions β_1 de l'Eu¹⁵² et β_1 de l'Eu¹⁵⁴ y est égal à 7,5%. La contribution de la transition γ_1 (344 keV) de l'Eu¹⁵² dans la bande d'énergie correspondant au pic photoélectrique de la transition γ_1 (123 keV) de l'Eu¹⁵⁴ est faible. Aucune correction due à la présence d'Eu¹⁵² dans la source n'a donc été faite.

La mesure de la dépendance en énergie de la corrélation $\beta_3-\gamma_3$ est très imprécise pour les énergies bêta inférieures à 830 keV, en raison de la forte intensité de la

transition β_4 . Nous n'avons mesuré que la corrélation dans une bande d'énergie comprise entre 830 keV et 970 keV. Les pics photoélectriques des transitions γ_3 et γ_4 issues du niveau 2^+ de 998 keV ne sont pas complètement séparés dans notre détecteur gamma. Nous avons en fait mesuré dans les deux canaux de notre spectromètre à coïncidences les corrélations $\beta_3 - [\gamma_3 + x \gamma_4]$ et $\beta_3 - [y \gamma_3 + \gamma_4]$. Les deux corrélations pures ont été obtenues en tenant compte des rapports d'intensité relative x et y , déterminés expérimentalement.

La symétrie de notre dispositif expérimental a été vérifiée pour 4 énergies bêta différentes par une mesure de la corrélation $\beta_5 - \gamma_5$, qui est isotrope. Enfin, pour chaque mesure, les paramètres A et U ont été déterminés. L'absence d'un terme en $P_4(\cos\theta)$ dans la fonction de corrélation confirme le spin 3 de l'Eu¹⁵⁴. La figure 6b) représente le résultat d'une mesure, reporté en fonction de $P_2(\cos\theta)$.

La mesure des corrélations $\beta_3 - \gamma_3$ et $\beta_3 - \gamma_4$ permet en outre de déterminer le paramètre de mélange multipolaire E2-M1 de la transition γ_4 . Le résultat obtenu

$$\delta = 6,5 \begin{array}{l} + 4,0 \\ - 1,9 \end{array}$$

est compatible avec celui que donne DEBRUNNER²⁴).

Les mesures sont résumées par les tableaux 6a et 6b. Le tableau 6a donne les valeurs de $\varepsilon(\bar{W})$ avec et sans correction pour l'atténuation de la corrélation, et le rapport des coïncidences gamma-gamma et fortuites aux coïncidences totales. Le tableau 6b donne les valeurs de $\varepsilon_{\beta_3\gamma_3}$ et $\varepsilon_{\beta_3\gamma_4}$ ainsi que celles de $\varepsilon_{\beta_5\gamma_5}$. Les erreurs données dans ces deux tableaux tiennent compte de l'erreur statistique, augmentée en fonction de χ^2 pour les valeurs εG_2^Q , ainsi que de l'indétermination de G_2^t pour les valeurs de ε . Les résultats des mesures avec la source d'oxyde d'Eu sont compatibles avec ceux que donnent SASTRY *et al.*²⁸) et WYLY *et al.*²⁹).

Tableau 6 a

Résultats des mesures de la corrélation directionnelle
Eu¹⁵⁴ 3- (1840 keV β) 2+ (123 keV γ) 0+ Gd¹⁵⁴

\bar{W}	$\varepsilon(\bar{W}) G_2$	$\Delta(\varepsilon G_2)$	$\varepsilon(\bar{W})$	$\Delta\varepsilon(\bar{W})$	$C_{\gamma\gamma}/Ct$	Cf/Ct
Source d'oxyde d'Eu: $G_2^t = 0,46 \pm 0,04$						
3,05	- 0,118	0,018	- 0,256	0,045	0,126	0,46
3,25	- 0,125	0,020	- 0,271	0,049	0,070	0,46
3,44	- 0,145	0,015	- 0,315	0,041	0,025	0,47
3,64	- 0,149	0,012	- 0,323	0,037	0,016	0,47
3,73	- 0,158	0,005	- 0,330	0,028	0,009	0,45
3,83	- 0,159	0,006	- 0,332	0,030	~ 0	0,47
3,90	- 0,149	0,005	- 0,323	0,031		0,43
4,04	- 0,146	0,006	- 0,317	0,030		0,45
4,21	- 0,140	0,007	- 0,304	0,029		0,44
4,25	- 0,154	0,008	- 0,334	0,033		0,50
4,30	- 0,138	0,013	- 0,299	0,037		0,46
4,33	- 0,145	0,010	- 0,315	0,034		0,30
Source liquide: $G_2^{Hfs} = 0,82 \pm 0,02$						
3,53	- 0,260	0,017	- 0,318	0,024	0,018	0,35
3,90	- 0,270	0,005	- 0,330	0,008	~ 0	0,20
4,25	- 0,258	0,010	- 0,315	0,014		0,25

Tableau 6 b

Corrélation	\bar{W}	$\varepsilon(\bar{W})$	$\Delta\varepsilon(\bar{W})$
$\beta_3 - \gamma_3$	2,65	- 0,041	0,005
$\beta_3 - \gamma_4$	2,65	+ 0,021	0,004
$\beta_5 - \gamma_5$	1,64	+ 0,001	0,001
	1,73	+ 0,003	0,001
	1,83	- 0,002	0,002
	1,98	- 0,001	0,002

4. Calcul des éléments de matrice nucléaires

Les paramètres nucléaires Y , x et u définis au chapitre II, § 5, ont été calculés pour les transitions bêta de plus haute énergie (β_1) dans la désintégration de Sb^{124} , Eu^{152} et Eu^{154} . Les mesures suivantes ont été prises en considération pour ce calcul:

1. Facteur d'anisotropie $\varepsilon(W)$ des corrélations directionnelles $\beta_1 - \gamma_1$ que nous avons mesurées.
2. Facteur de correction du spectre $C_n(W)$, donné par LANGER et SMITH²⁷⁾ pour Sb^{124} , Eu^{152} et Eu^{154} .
3. Facteur de polarisation $P_c(W, \theta)$ de la corrélation bêta-gamma polarisé circulairement, mesuré par ALEXANDER et STEFFEN¹³⁾ pour Sb^{124} et par BERTHIER¹⁴⁾ pour Eu^{152} .

Pour chacune des mesures ci-dessus, les valeurs des paramètres \bar{Y}_k , \bar{x}_k et \bar{u}_k rendant minimum l'expression

$$Q^2(Y_k, x_k, u_k) = \sum_i g_i [f_i^k - f^k(W_i, \theta_i)]^2$$

ont été calculées par la calculatrice électronique ERMETH. Dans l'expression de Q^2 , k désigne le type de la mesure ($k = 1, 2, 3$); $f^k(W, \theta)$ symbolise les fonctions théoriques définies au chapitre II, formules 6a) à 8c); f_i^k est la valeur expérimentale de f^k , mesurée pour une énergie W_i ou sous un angle θ_i ; g_i est le carré de l'inverse de l'erreur de f_i^k .

Une moyenne des \bar{Y}_k , \bar{x}_k , \bar{u}_k , pondérée par la valeur minimum de Q_k^2 , a été ensuite calculée pour chaque isotope étudié. Le tableau 7 donne les résultats du calcul et leurs erreurs.

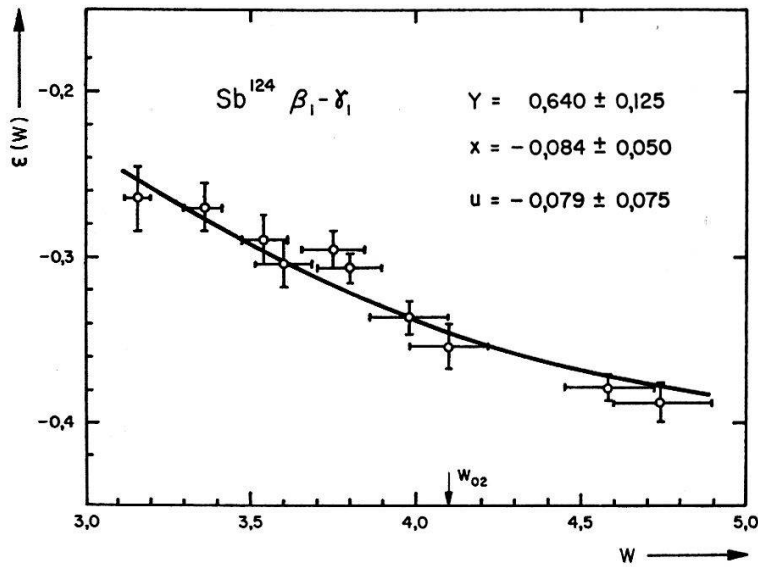
Tableau 7
Paramètres nucléaires

	Sb^{124}	Eu^{152}	Eu^{154}
Y	$0,640 \pm 0,125$	$0,744 \pm 0,160$	$0,900 \pm 0,150$
x	$- 0,084 \pm 0,050$	$0,161 \pm 0,086$	$- 0,035 \pm 0,105$
u	$- 0,079 \pm 0,075$	$0,034 \pm 0,059$	$0,190 \pm 0,110$

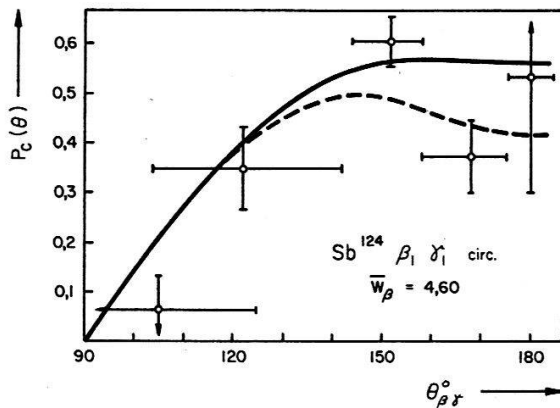
Les résultats indiquent clairement que, dans les trois cas étudiés, nous sommes en présence de l'effet d'une règle de sélection. Un tel effet se caractérise par ⁹⁾:

$$|z| \sim |Y| > |x| \sim |u|.$$

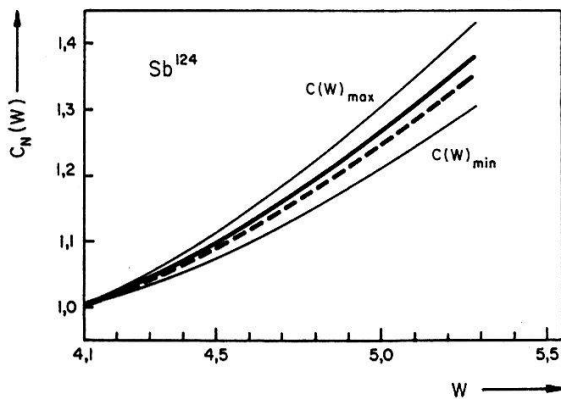
Les figures 8 à 10 représentent les valeurs mesurées de $\varepsilon(W)$, $C_n(W)$ et $P_c(W, \theta)$ ainsi que les courbes théoriques correspondant aux paramètres nucléaires indiqués dans le tableau 7.



a) Coefficient d'anisotropie $\varepsilon(W)$ de la corrélation directionnelle en fonction de l'énergie W du bêta



b) Facteur de polarisation $P_c(\theta)$ en fonction de l'angle d'émission $\theta_{\beta\gamma}$

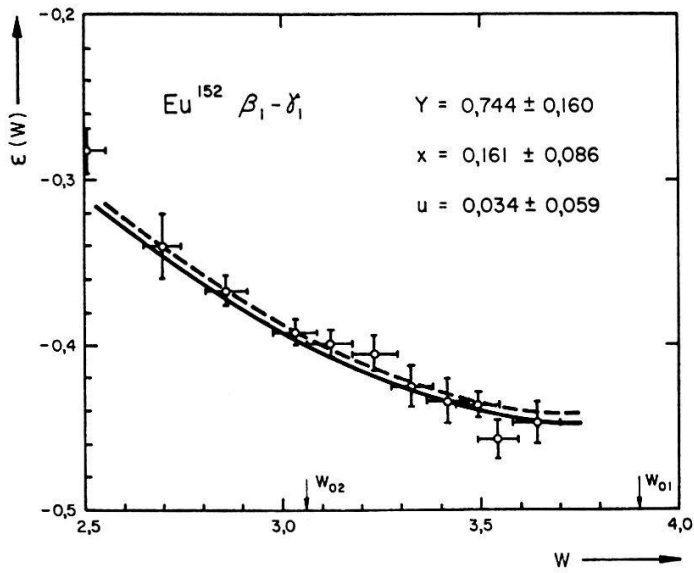


c) Facteur de forme du spectre β_1 en fonction de W

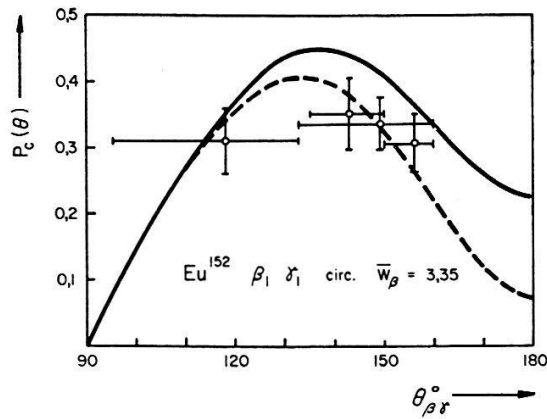
Les courbes pointillées correspondent à la valeur minimum de Q^2 , les courbes pleines aux paramètres indiqués sur la figura a). Les courbes $C(W)_{max}$ et $C(W)_{min}$ indiquent les valeurs limites des mesures de LANGER et SMITH

Fig. 8

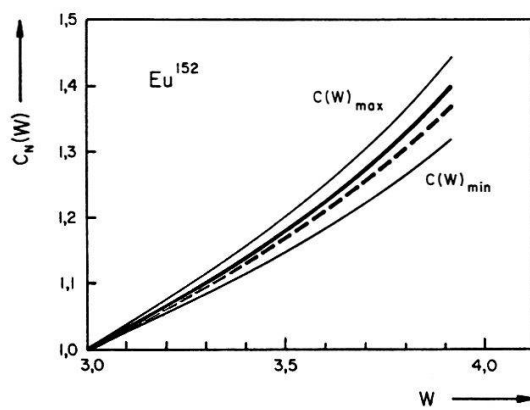
Corrélation 2,31 MeV $\beta_1 - 0,603$ MeV γ_1 de Sb^{124}



a) Coefficient d'anisotropie $\epsilon(W)$ de la corrélation directionnelle en fonction de l'énergie W du bêta



b) Facteur de polarisation $P_c(\theta)$ en fonction de l'angle d'émission $\theta_{\beta\gamma}$ ¹⁴⁾

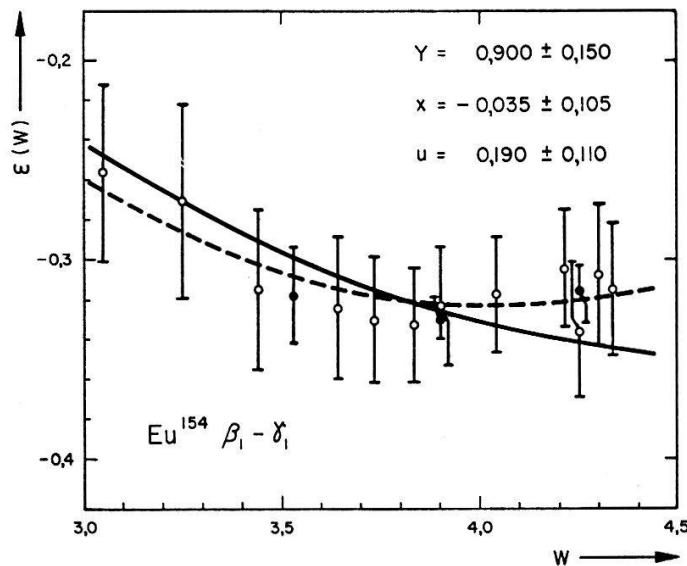


c) Facteur de forme du spectre β_1 en fonction de W ²⁷⁾

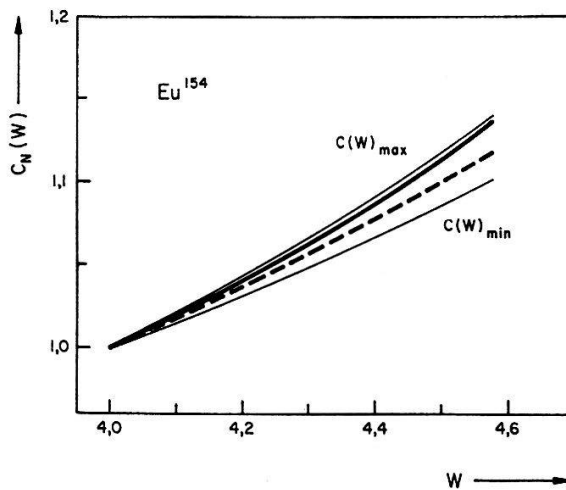
Les courbes pointilles correspondent à la valeur minimum de Q^2 , les courbes pleines aux paramètres indiqués sur la figure a). Les courbes $C(W)_{max}$ et $C(W)_{min}$ indiquent les valeurs limites des mesures de LANGER et SMITH

Fig. 9

Corrélation 1,48 MeV β_1 —0,344 MeV γ_1 de Eu^{152}



a) Coefficient d'anisotropie de la corrélation directionnelle en fonction de l'énergie W du bêta



b) Facteur de forme du spectre β_1 en fonction de W ²⁷⁾

Les courbes pointillées correspondent à la valeur minimum de Q^2 , les courbes pleines aux paramètres indiqués sur la figure a). Les courbes $C(W)_{max}$ et $C(W)_{min}$ indiquent les valeurs limites des mesures de LANGER et SMITH

Fig. 10

Corrélation 1,84 MeV β_1 - 0,123 MeV γ_1 de Eu^{154}

L'élément de matrice de normalisation $\eta = C_A \int B_{ij}$, défini au chapitre II, se calcule directement à partir de la relation:

$$\eta^2 = \pi^3 \ln 2 \cdot (f_c t)^{-1}$$

dans laquelle $(f_c t)$ est la valeur ft corrigée en fonction de la forme non statistique du spectre. C'est une fonction de Y , x et u ⁹⁾. Le tableau 8 donne la valeur des éléments de matrice nucléaires contribuant aux transitions bêta étudiées. Les éléments de matrice qui ont la dimension d'une longueur sont rapportés au rayon nucléaire R

($R = 1,2 A^{1/3} f$). Le système d'unités choisi est tel que $\hbar = m = c = 1$. [Unité de temps: $\hbar/m c^2 = 1,29 \cdot 10^{-21}$ sec; unité de longueur = $\hbar/m c =$ longueur d'onde de Compton de l'électron = $3,86 \cdot 10^{-11}$ cm.] Les constantes de couplage de l'hamiltonien d'interaction introduites dans le calcul sont:

$$C_V = [1,42 \pm 0,01] \cdot 10^{-49} \text{ erg cm}^3 = [3,01 \pm 0,02] \cdot 10^{-12} \frac{\hbar^3}{m^2 c}$$

et

$$C_A = [-1,19 \pm 0,03] C_V \quad (7)^8).$$

Tableau 8
Eléments de matrice nucléaires

	Sb ¹²⁴	Eu ¹⁵²	Eu ¹⁵⁴
$\log f_c t$	$10,46 \pm 0,24$	$11,98 \pm 0,25$	$12,73 \pm 0,23$
$\int \frac{B_{ij}}{R}$	$\pm [1,76 \pm 0,22] \cdot 10^{-2}$	$\pm [2,86 \pm 0,36] \cdot 10^{-3}$	$\pm [1,20 \pm 0,14] \cdot 10^{-3}$
$\int \frac{\mathbf{r}}{R}$	$\mp [1,70 \pm 1,10] \cdot 10^{-3}$	$\pm [5,50 \pm 3,00] \cdot 10^{-4}$	$\mp [0,50 \mp 1,50] \cdot 10^{-4}$
$\int \frac{i \boldsymbol{\sigma} \times \mathbf{r}}{R}$	$\mp [1,40 \pm 1,40] \cdot 10^{-3}$	$\pm [0,97 \mp 1,70] \cdot 10^{-4}$	$\pm [2,30 \pm 1,40] \cdot 10^{-4}$
$\int i \boldsymbol{\alpha}$	$\pm [1,43 \pm 0,77] \cdot 10^{-4}$	$\pm [1,97 \pm 0,82] \cdot 10^{-4}$	$\pm [0,73 \pm 0,50] \cdot 10^{-4}$

V. Discussion et conclusion

1. Ordre de grandeur des éléments de matrice nucléaires

L'élément de matrice $\int B_{ij}$ prédomine dans les trois transitions bêta étudiées. Sa valeur est cependant réduite par rapport à celle de $\int B_{ij}$ d'une transition interdite unique. Le $\log f t$ d'une telle transition ($\log f t \approx 8,5$) correspond en effet à $\int B_{ij}/R \cong 0,2$. Les facteurs de réduction de l'élément de matrice $\int B_{ij}$ sont de l'ordre de 10, 70 et 160 pour Sb¹²⁴, Eu¹⁵² et Eu¹⁵⁴ respectivement.

Dans les transitions interdites du premier ordre non-unique et non-favorisées, l'élément de matrice standard rapporté au rayon nucléaire R est de l'ordre de l'unité ($\log f t \cong 7$). Les valeurs expérimentales données dans le tableau 8 montrent que, par rapport aux transitions interdites « ordinaires », les éléments de matrice $\int \mathbf{r}$ et $\int i \boldsymbol{\sigma} \times \mathbf{r}$ sont réduits d'un facteur > 400 , > 1200 , > 2700 , tandis que pour l'élément de matrice relativiste $\int i \boldsymbol{\alpha}$, les rapports de réduction sont de l'ordre de 120, 100 et 250 pour Sb¹²⁴, Eu¹⁵² et Eu¹⁵⁴ respectivement.

La prédominance relative de l'élément de matrice $\int B_{ij}$ par rapport aux éléments de matrice d'ordre tensoriel $\lambda = 1$ est la caractéristique de l'effet d'une règle

de sélection, auquel la déviation de l'approximation ξ et le ralentissement des transitions bêta envisagées doivent être attribués.

2. Différentes règles de sélection envisagées

Dans le cas de Sb^{124} , les résultats expérimentaux peuvent s'expliquer par la règle de sélection « j ». La parité négative de l'état fondamental de Sb^{124} est due vraisemblablement à l'orbite $h\ 11/2^-$ du neutron impair. Le proton créé après la désintégration bêta peut prendre place sur les orbites $g\ 7/2^+$, $d\ 5/2^+$, $d\ 3/2^+$ ou $s\ 1/2^+$, si l'on n'admet aucun mélange de configurations hors des couches principales¹³). La variation du moment angulaire provoquée par la transition bêta est alors au moins égale à 2, ce qui implique l'interdiction des éléments de matrice d'ordre $\lambda = 1$, tout en n'excluant pas la réduction de l'élément $\int B_{ij}$ ($\lambda = 2$) en fonction d'un mélange de configurations à l'intérieur de la couche principale.

Dans le cas de la transition $\text{Eu}^{154} - \beta_1 - \text{Gd}^{154}$ où les deux noyaux sont déformés, la composante intrinsèque du moment angulaire (K) varie de 3. La règle de sélection « K » peut être invoquée pour expliquer les résultats expérimentaux. Le degré d'interdiction des éléments de matrice d'ordre $\lambda = 1$ serait alors supérieur à celui de l'élément de matrice $\int B_{ij}$, ce qui est expérimentalement vérifié. L'étude de la transition β_3 (cf. fig. 7), caractérisée par $\Delta K = 1$ et pour laquelle les éléments de matrice d'ordre $\lambda = 1$ ne seraient pas interdits, ne permet pas de conclusion précise. Cependant, la faible anisotropie de la corrélation $\beta_3 - \gamma_3$ au voisinage de l'énergie maximum de la transition bêta et les résultats préliminaires de la corrélation $\beta_3 - \gamma_3$ polarisé circulairement³⁰) ne semblent pas suggérer une prédominance relative de l'élément de matrice $\int B_{ij}$.

Aucune règle de sélection particulière n'a retenu notre attention pour expliquer la prédominance de $\int B_{ij}$ dans la transition β_1 de l' Eu^{152} (cf. fig. 5). Le noyau Gd^{152} étant sphérique, la règle de sélection « K » n'est pas applicable; les valeurs expérimentales des éléments de matrice des transitions β_1 de l' Eu^{152} et de l' Eu^{154} sont cependant très semblables. Mentionnons toutefois que la valeur ft anormalement élevée de la transition $\beta_1 - \text{Eu}^{152}$, donc la réduction *in globo* des éléments de matrice nucléaires, peut s'expliquer comme suit: les fonctions d'onde des états fondamentaux de l' Eu^{152} et du Gd^{152} se recouvrent approximativement (mis à part la déformation de l' Eu^{152}). La partie intrinsèque de la fonction d'onde du premier niveau excité du Gd^{152} ($2^+ 344\ \text{keV}$) est la même que la fonction d'onde du niveau fondamental; en revanche sa partie collective fait que ces deux derniers états sont quasi-orthogonaux. Il en résulte que les fonctions d'onde du noyau avant et après la désintégration β_1 ne se recouvrent pas, ce qui a pour effet de ralentir considérablement la transition.

3. Conclusion

Ce travail a permis de montrer qu'il est possible de déterminer expérimentalement les éléments de matrice nucléaires de l'hamiltonien d'interaction, dans le cas des transitions bêta interdites du premier ordre avec $\Delta I = 1$ et qui ne répondent pas à l'approximation « ξ ». Cette possibilité renforce l'intérêt de l'étude des transitions bêta en tant que moyen d'investigation direct de la structure du noyau.

Cependant, dans les trois cas étudiés, l'indétermination sur les éléments de matrice $\int \mathbf{r}$, $\int i \boldsymbol{\sigma} \times \mathbf{r}$ et $\int i \boldsymbol{\alpha}$ est considérable. En réalité, les grandeurs significatives résultant de notre étude sont :

$$Y = \left[-C_V \int i \boldsymbol{\alpha} + \xi C_V \int \mathbf{r} - \xi C_A \int i \boldsymbol{\sigma} \times \mathbf{r} \right] \cdot \frac{1}{\eta}$$

et

$$\eta = C_A \int B_{ij}.$$

Les paramètres nucléaires x et u fixent avant tout un ordre de grandeur, car les trois cas étudiés sont à la limite de l'«approximation B_{ij} modifiée» dans laquelle on pose $x = u = 0$. Des mesures considérablement plus précises sur la dépendance angulaire et énergétique des paramètres des différentes corrélations bêta-gamma seraient souhaitables; elles sont difficilement abordables en raison de leur durée.

Signalons que l'hypothèse du courant vectoriel conservé permet d'établir une relation entre les éléments de matrice $\int \mathbf{r}$ et $\int i \boldsymbol{\alpha}$, et par conséquent de réduire le nombre des paramètres libres³¹⁾. Les éléments de matrice calculés dans ce travail ne sont pas incompatibles avec cette relation. On obtient en effet :

Tableau 9

Comparaison entre les valeurs théoriques et expérimentales du rapport :

$$A = \frac{\int i \boldsymbol{\alpha}}{\int \frac{\mathbf{r}}{R}}$$

Isotope	Eu ¹⁵²	Eu ¹⁵⁴	Sb ¹²⁴
A_{th}	0,58	0,60	0,50
A_{exp}	0,36 ± 0,30	- 1,5 ± 4,5	- 0,1 ± 0,5

En introduisant la relation de FUJITA³¹⁾ dans le calcul des éléments de matrice, il serait possible d'améliorer la précision sur la détermination des paramètres nucléaires x et u , et de tester au moyen des corrélations angulaires bêta-gamma l'hypothèse du courant vectoriel conservé. Seuls des résultats de mesure plus précis légitimeraient cette façon de procéder.

Nous tenons à remercier vivement M. le Professeur P. SCHERRER et M. le Professeur J. P. BLASER du soutien qu'ils ont accordé à ce travail et de l'intérêt constant qu'ils ont manifesté. Nous sommes tout particulièrement reconnaissants envers MM. DEBRUNNER, BERTHIER, PERDRISAT et M. le Professeur K. ALDER pour leur collaboration, leurs conseils et pour d'enrichissantes discussions. Notre gratitude va également à MM. LAMBERT, HESS, PONCINI et BAKKEN pour leur assistance dans les questions d'ordre expérimental et à M. WALDVOGEL du groupe de calcul de l'ERMETH, pour la programmation de nos calculs.

Bibliographie

- 1) T. D. LEE et C. N. YANG, *Phys. Rev.* **104**, 254 (1956).
- 2) C. S. WU, E. CUMBLER, R. W. HAYWARD, D. D. HOPPES et R. P. HUDSON, *Phys. Rev.* **105**, 1413 (1957).
- 3) M. GOLDHABER, *Phys. Rev.* **109**, 1015 (1958).
- 4) W. B. HERRMANNSFELD, R. L. BURMAN, P. STAEHELIN, J. S. ALLEN et T. H. BRAID, *Phys. Rev. Letters* **1**, 61 (1958).
W. B. HERRMANNSFELD, D. R. MAXON, P. STAEHELIN et J. S. ALLEN, *Phys. Rev.* **107**, 641 (1957).
- 5) M. T. BURGY, V. E. KROHN, T. B. NOVEY, C. R. RINGO et V. L. TELEGGI, *Phys. Rev.* **110** 1214 (1958); *Phys. Rev. Letters* **1**, 324 (1958).
- 6) A. N. SOSNOVSHII, P. E. SPIVAK, A. PROKOF'EV, I. E. KUTILOV et Y. DOBRYNIN, *JETP* **35**, 739 (1959).
- 7) D. L. HENDRIE et J. B. GERHARDT, *Phys. Rev.* **121**, 846 (1961).
- 8) R. K. BARDIN, C. A. BARNES, W. A. FOWLER et P. A. SEEGER, *Phys. Rev. Letters* **5**, 323 (1960).
- 9) T. KOTANI, *Phys. Rev.* **114**, 795 (1959).
- 10) J. W. SUNIER, P. DEBRUNNER et P. SCHERRER, *Nucl. Phys.* **19**, 62 (1960).
- 11) P. DEBRUNNER, M. LAMBERT, A. PONCINI et J. W. SUNIER, *Helv. Phys. Acta* **33**, 985 (1960).
- 12) J. W. SUNIER, *Helv. Phys. Acta* **34**, 477 (1961).
- 13) P. ALEXANDER et R. M. STEFFEN, *Phys. Rev.* **124**, 150 (1961).
- 14) J. BERTHIER, Thèse de doctorat n° 4671, Université de Paris (1962).
- 15) R. M. STEFFEN, *Phys. Rev. Letters* **4**, 290 (1960).
- 16) H. DULANEY JR., C. H. BRADEN et L. D. WYLY, *Phys. Rev.* **117**, 1092 (1960).
- 17) S. K. BHATTACHERJEE et S. K. MITRA, *Nuovo Cimento* **10**, 175 (1960).
- 18) H. J. FISCHBECK et R. G. WILKINSON, *Phys. Rev.* **120**, 1762 (1960).
- 19) J. S. LAWSON JR. et H. FRAUENFELDER, *Phys. Rev.* **91**, 649 (1953).
- 20) T. KOTANI et M. ROSS, *Phys. Rev.* **113**, 622 (1959).
- 21) H. PAUL, *Phys. Rev.* **121**, 1175 (1961).
- 22) T. LINDQUIST et I. MARKLUND, *Nucl. Phys.* **4**, 189 (1957).
- 23) R. HESS, Travail de diplôme EPF (non publié) (1960).
- 24) P. DEBRUNNER et W. KUNDIG, *Helv. Phys. Acta* **33**, 395 (1960).
- 25) S. OFER, *Nucl. Phys.* **4**, 477 (1957).
- 26) R. STIENING et M. DEUTSCH, *Phys. Rev.* **121**, 1484 (1961).
- 27) L. M. LANGER et D. R. SMITH, *Phys. Rev.* **119**, 1308 (1960).
- 28) K. S. R. SASTRY, R. F. PETRY et R. G. WILKINSON, *Phys. Rev.* **123**, 615 (1961).
- 29) L. D. WYLY, E. T. PATRONIS, H. DULANEY et C. H. BRADEN, *Phys. Rev.* **124**, 841 (1961).
- 30) R. HESS et J. W. SUNIER (en préparation).
- 31) J. FUJITA, *Phys. Rev.* **126**, 202 (1962).