

Zeitschrift:	Helvetica Physica Acta
Band:	46 (1973)
Heft:	1
Artikel:	Etude de l'interaction hyperfine de ^{166}Er dilué dans des cristaux des éthylsulfates de lanthane et d'yttrium par la méthode des corrélations directionnelles
Autor:	Dirren, Henri
DOI:	https://doi.org/10.5169/seals-114471

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften auf E-Periodica. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen sowie auf Social Media-Kanälen oder Webseiten ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. [Mehr erfahren](#)

Conditions d'utilisation

L'ETH Library est le fournisseur des revues numérisées. Elle ne détient aucun droit d'auteur sur les revues et n'est pas responsable de leur contenu. En règle générale, les droits sont détenus par les éditeurs ou les détenteurs de droits externes. La reproduction d'images dans des publications imprimées ou en ligne ainsi que sur des canaux de médias sociaux ou des sites web n'est autorisée qu'avec l'accord préalable des détenteurs des droits. [En savoir plus](#)

Terms of use

The ETH Library is the provider of the digitised journals. It does not own any copyrights to the journals and is not responsible for their content. The rights usually lie with the publishers or the external rights holders. Publishing images in print and online publications, as well as on social media channels or websites, is only permitted with the prior consent of the rights holders. [Find out more](#)

Download PDF: 15.01.2026

ETH-Bibliothek Zürich, E-Periodica, <https://www.e-periodica.ch>

Etude de l'interaction hyperfine de ^{166}Er dilué dans des cristaux des éthylsulfates de lanthane et d'yttrium par la méthode des corrélations directionnelles $\gamma\gamma$

par Henri Dirren

Laboratoire de Physique des Hautes Energies, EPF-Z, Zürich

(21. VIII. 72)

Summary. The hyperfine interaction (hfi) of $^{166}\text{Er}^{3+}$ diluted in single crystals of Lanthanum and Yttrium ethylsulphates (La-ES and Y-ES) was investigated using the perturbed directional correlation technique. The 1380–81 keV $\gamma\gamma$ cascade in ^{166}Er following the β^- decay of ^{166}Ho was studied for two different orientations of the crystalline axis, at 5.5 °K and 300 °K, and as a function of an external magnetic field. The correlation function shows a strong temperature dependence and a relatively small dependence on the orientation of the crystalline axis. The coincidence rate as a function of the external field applied parallel to the axis of the crystal and perpendicular to the detector plane does not show the large resonance which is expected for the static hfi of the ground state of Er^{3+} in La-ES. An effect of only about 2.3% is observed.

The theoretical aspect of the problem, both the hfi and its influence on the directional correlation, has been studied in detail, firstly for a Kramers doublet (with Er^{3+} in La-ES as an example), and secondly for the ground state of Ho^{3+} in Y-ES (non-Kramers doublet). In the first case, the theory of Leisi and of Leisi and Deck for a Kramers doublet was applied to the Er^{3+} ground state. The study of the second case represents the first calculation of the influence of the hfi of a non-Kramers doublet, which is described by the following spin-Hamiltonian:

$$K = A I_z J_z + P [I_z^2 - \frac{1}{3}I(I+1)] + \Delta_x J_x + \Delta_y J_y + g_z \mu_B B_z J_z.$$

Different properties of the correlation function are demonstrated for this type of interaction.

The experimental results are compared with the predictions of different models; they are compatible with the predictions of the free-ion model. Such a hfi is probably due to recoil effects following the emission of the β^- and of the first γ radiation of the cascade.

I. Introduction

L'interaction hyperfine d'un ion paramagnétique, c'est-à-dire le couplage des champs électromagnétiques créés par les couches électroniques avec les moments nucléaires, entraîne en général une importante perturbation de la corrélation directionnelle d'une cascade $\gamma\gamma$. Cette interaction peut être décrite par un hamiltonien de spin dont les constantes de couplage sont des fonctions des états électroniques occupés. Lorsque l'ion considéré est dilué dans un cristal, ces états sont déterminés par la symétrie ponctuelle du champ cristallin. A basse température, l'environnement du noyau peut être considéré comme stationnaire et la connaissance de l'hamiltonien de spin et de ses constantes de couplage permet d'obtenir des informations sur les moments des niveaux nucléaires excités par l'étude de la perturbation de la corrélation directionnelle. Le couplage du noyau avec son environnement peut être influencé à l'aide d'un

champ magnétique extérieur appliqué convenablement et certains phénomènes de 'résonance' du taux de coïncidences en fonction du champ peuvent être alors prédis.

Dans ce travail, nous avons étudié la corrélation directionnelle de la cascade $\gamma\gamma$ de 1380–81 keV dans $^{166}\text{Er}^{3+}$ suivant la désintégration de $^{166}\text{Ho}^{3+}$ dilué dans les éthylsulfates de lanthane (La-ES) et d'yttrium (Y-ES). La perturbation de la corrélation a été étudiée en fonction de la température, de l'orientation de l'axe de symétrie du cristal, avec des échantillons préparés selon différents procédés. La bonne connaissance de l'interaction hyperfine des terres rares dans les éthylsulfates a déterminé notre choix de ces cristaux.

Le calcul de l'interaction hyperfine des ions $^{166}\text{Er}^{3+}$ dans La-ES et $^{166}\text{Ho}^{3+}$ dans Y-ES et de son influence sur la corrélation directionnelle de la cascade décrite ci-dessus fait l'objet du chapitre II. Le dispositif expérimental (cristaux, détecteurs, électronique et cryostat) est décrit au chapitre III. Les mesures de la corrélation directionnelle avec et sans champ extérieur, leur dépouillement et leurs résultats sont présentés au chapitre IV. Les discussions de différents modèles et l'interprétation constituent le dernier chapitre.

II. Interaction Hyperfine et Corrélations $\gamma\gamma$ Perturbées

A) *Interaction hyperfine*

Les électrons de la couche interne $4f$, qui n'est que partiellement occupée dans les terres rares, sont responsables des propriétés magnétiques des ions de cette famille. Si ces derniers sont placés dans un champ cristallin, l'interaction hyperfine, résultant du couplage du noyau (moment magnétique μ , moment quadrupolaire Q) avec son environnement paramagnétique est fortement modifié. En effet, le champ cristallin se couple avec le mouvement orbital des électrons et lève partiellement ou complètement la dégénérescence des niveaux de l'ion libre et le nouveau spectre d'énergie dépend de la symétrie de ce champ. Nous restreindrons nos considérations à des champs de symétrie essentiellement axiale; c'est le cas qui se présente dans les cristaux des éthylsulfates de lanthane (La-ES) et d'yttrium (Y-ES) qui nous intéressent plus particulièrement et dans lesquels les ions des terres rares occupent une place de symétrie C_{3h} .

L'interaction hyperfine dans les ions des terres rares a été étudiée de manière approfondie par des mesures de résonance paramagnétique, en particulier dans les éthylsulfates. Elliott et Stevens [1], ainsi que Baker et Bleaney [2] ont développé une théorie pour interpréter ces résultats.

L'interaction hyperfine et la présence de champs extérieurs peuvent être décrites par un hamiltonien de spin. Pour le développement de cet hamiltonien et l'étude de ses valeurs propres, il est utile de traiter séparément les ions dont le nombre d'électrons $4f$ est impair (type Kramers) et les ions dont ce nombre est pair (type non-Kramers). Nous ne détaillerons pas ici ce développement; nous nous contenterons de rappeler les résultats des références [1] et [2] et de présenter nos calculs pour les cas de $^{166}\text{Er}^{3+}$ (type Kramers) et de $^{166}\text{Ho}^{3+}$ (type non-Kramers), dilués dans des monocristaux respectivement de La-ES et d'Y-ES.

1) *Ions du type Kramers.* Kramers [3] a montré qu'une interaction purement electrostatique ne peut lever complètement la dégénérescence des niveaux d'énergie d'un système dont le nombre d'électrons est impair. Il s'en suit que pour les ions des terres rares dont le spin électronique est demi-entier, le champ cristallin lève la dégénérescence de l'état ionique fondamental en laissant chaque nouvel état au moins

doublement dégénéré. L'hamiltonien de spin pour les doublets des ions du type Kramers (à l'exception de Gd^{3+}) a la forme suivante [1]:

$$K = AI_z J_z + B(I_x J_x + I_y J_y) + P[I_z^2 - \frac{1}{3}I(I+1)] + g_{\parallel} \mu_B B_z J_z + g_{\perp} \mu_B (B_x J_x + B_y J_y) \quad (1)$$

$$J = \frac{1}{2}.$$

Dans cette expression, l'axe des z est choisi identique à l'axe de symétrie du cristal. I est l'opérateur de spin nucléaire, J l'opérateur du spin électronique effectif. Les deux premiers termes décrivent l'interaction hyperfine magnétique, les constantes de couplage A et B étant proportionnelles au moment magnétique du noyau. Le troisième terme résulte de l'interaction du moment quadrupolaire électrique nucléaire avec le gradient du champ électrique dû aux électrons $4f$ (l'interaction directe avec le gradient du champ cristallin est négligeable [1]). P est proportionnel au moment quadrupolaire du noyau. Les deux derniers termes, enfin, décrivent l'interaction du moment magnétique électronique effectif avec un champ magnétique extérieur, supposé assez faible pour que son interaction avec le moment magnétique du noyau soit négligeable. g_{\parallel} et g_{\perp} sont les composantes du tenseur (symétrique) de couplage g suivant les axes principaux, g_{\parallel} étant la composante parallèle à l'axe du cristal.

Les vecteurs propres $|b\rangle$ de l'hamiltonien K peuvent être développés en états propres du moment cinétique $|mn\rangle$, où m et n sont les nombres quantiques des opérateurs I_z et J_z , projections de I et de J sur l'axe des z :

$$|b\rangle = \sum_{m, n} |mn\rangle \langle mn|b\rangle. \quad (2)$$

Si nous admettons que le champ magnétique extérieur est parallèle à l'axe de symétrie du cristal, les vecteurs $|b\rangle$ sont également vecteurs propres de l'opérateur $F_z = I_z + J_z$, puisque dans ce cas F_z commute avec K . Ils peuvent être classifiés selon les valeurs de M , nombre quantique de l'opérateur F_z . Puisque nous considérons des doublets ($J = 1/2$), n ne prend que les deux valeurs $\pm 1/2$ et à chaque valeur de M correspondent deux valeurs propres et deux vecteurs propres, notés $E_{M(\pm)}$ et $|M(\pm)\rangle$, sauf pour les valeurs extrêmes $M = \pm(I + 1/2)$, auxquelles ne correspondent qu'une seule énergie et qu'un seul vecteur propre, notés $E_{\pm(I+1/2)}$ et $|\pm(I + 1/2)\rangle$. Leisi [4] a calculé les valeurs propres de K et les coefficients non nuls du développement (2):

$$E_{M(\pm)} = M^2 P \pm \frac{1}{2}\{[M(A - 2P) + g_{\parallel} \mu_B B_z]^2 + B^2[(I + \frac{1}{2})^2 - M^2]\}^{1/2} \quad \text{pour: } M \neq \pm(I + \frac{1}{2}) \quad (3)$$

$$E_{\pm(I+1/2)} = (I + \frac{1}{2})^2 P + \frac{1}{2}(I + \frac{1}{2})(A - 2P) \pm \frac{1}{2}g_{\parallel} \mu_B B_z \quad \text{pour: } M = \pm(I + \frac{1}{2}).$$

Les coefficients $\langle mn|b(M)\rangle$ non nuls sont:

$$\left. \begin{aligned} \langle M \pm \frac{1}{2}, \mp \frac{1}{2} | M(\pm) \rangle &= \sqrt{\frac{1 - u_M}{2}} \\ \langle M \mp \frac{1}{2}, \pm \frac{1}{2} | M(\pm) \rangle &= \pm \sqrt{\frac{1 + u_M}{2}} \end{aligned} \right\} \text{pour } M \neq \pm(I + \frac{1}{2}) \quad (4)$$

$$\langle \pm I, \pm \frac{1}{2} | \pm(I + \frac{1}{2}) \rangle = \pm 1 \quad \text{pour } M = \pm(I + \frac{1}{2})$$

avec:

$$u_M = \frac{M(A - 2P) + g_{\parallel} \mu_B B_z}{\{(M(A - 2P) + g_{\parallel} \mu_B B_z)^2 + B^2[(I + \frac{1}{2})^2 - M^2]\}^{1/2}}.$$

Nous nous intéressons ici à l'interaction hyperfine du premier état nucléaire excité (81 keV, $I^\pi = 2^+$) de $^{166}\text{Er}^{3+}$ dans un monocrystal de La-ES, en supposant que seul le doublet fondamental de l'ion soit occupé. Les mesures de résonance paramagnétique de Bogle et al. [5], Bleaney et al. [6] et leur interprétation par Elliott et al. [7] nous livrent les résultats suivants pour $^{167}\text{Er}^{3+}$ dans La-ES: $g_{\parallel} = 1,47(3)$, $g_{\perp} = 8,85(20)$, $|A| = 0,0052(1) \text{ cm}^{-1}$, $|B| = 0,0314(1) \text{ cm}^{-1}$ et $|P| = 0,0030(3) \text{ cm}^{-1}$. Le noyau de ^{167}Er (stable) est caractérisé par un spin $I = 7/2$, un moment magnétique $\mu = -0,50(12) \text{ mn}$ et un moment quadrupolaire $Q = +10(2) \text{ b}$ [7], alors que l'état de 81 keV dans ^{166}Er est caractérisé par $I = 2$, $\mu = +0,62(6) \text{ mn}$ et $Q = -2,0(3) \text{ b}$ [8]. Avec ces valeurs, nous obtenons les constantes de couplage suivantes pour l'état 2^+ de $^{166}\text{Er}^{3+}$ dans La-ES:

$$\begin{aligned} A &= +0,0102 \text{ cm}^{-1} \\ |B| &= 0,0613 \text{ cm}^{-1} \\ P &= -0,0013 \text{ cm}^{-1} \end{aligned} \tag{5}$$

A l'aide de ces constantes, il est maintenant possible de calculer les niveaux d'énergie définis par les équations (3), en fonction d'un champ magnétique extérieur appliqué parallèlement à l'axe de symétrie du cristal. La figure 1 présente le schéma d'énergie ainsi obtenu.

2) *Ions du type non-Kramers.* Pour certains ions dont le nombre d'électrons $4f$ est pair et dont l'environnement présente une symétrie axiale au moins trigonale, la dégénérence des niveaux d'énergie n'est levée que partiellement. Les doublets qui en résultent se distinguent des doublets de Kramers vus plus haut du fait que leur dégénérence peut être levée par une diminution de la symétrie du champ cristallin (effet Jahn-Teller). Baker et Bleaney [2] ont montré que pour ces doublets du type non-Kramers des ions de Pr, Pm, Tb, Ho et Tm dilués dans des cristaux de La-ES et d'Y-ES, l'hamiltonien de spin prend la forme suivante, en présence d'un champ magnétique extérieur appliqué parallèlement à l'axe de symétrie du cristal:

$$K = AI_z J_z + P[I_z^2 - \frac{1}{3}I(I+1)] + \Delta_x J_x + \Delta_y J_y + g_z \mu_B B_z J_z. \tag{6}$$

Comme précédemment, l'interaction directe du champ magnétique extérieur avec le noyau est supposée négligeable. Le terme $K' = \Delta_x J_x + \Delta_y J_y$ a été introduit par Baker et Bleaney [2] pour expliquer les spectres de résonance paramagnétique observés. Δ_x et Δ_y n'ont pas de valeur bien déterminée, mais présentent plutôt une répartition de valeurs qui reflète les distorsions locales de la symétrie du cristal (effet Jahn-Teller). Il est utile de remarquer ici que J_z et F_z ne commutent pas avec K , alors que $[I_z, K] = 0$; chaque état propre peut donc être caractérisé par une valeur de m , nombre quantique de I_z .

Nous allons étudier plus en détail l'hypothèse selon laquelle, pendant la durée de vie de l'état 2^+ excité dans $^{166}\text{Er}^{3+}$ dilué dans un cristal d'Y-ES, l'environnement électronique se trouve encore dans l'état fondamental de l'ion Ho^{3+} . Cet état est un doublet du type non-Kramers, accompagné d'un état singulet à environ 6 cm^{-1} . Nous supposons ici que seul le doublet soit occupé. Nous pouvons utiliser les résultats des

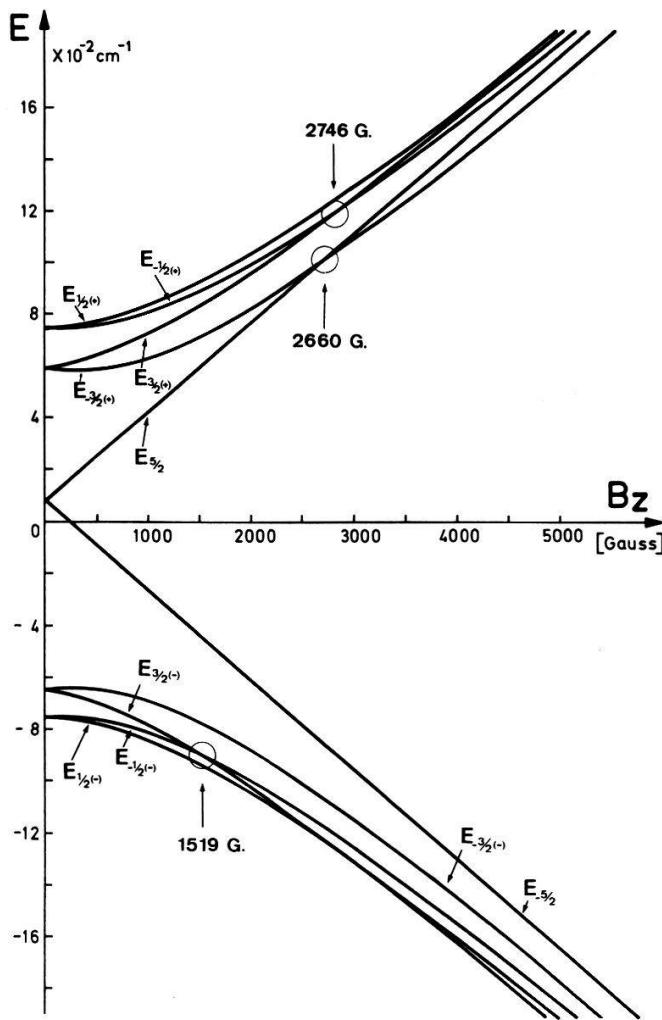


Figure 1

Interaction hyperfine de l'ion Er^{3+} dans La-ES: spectre d'énergie en fonction d'un champ magnétique extérieur parallèle à l'axe de symétrie du cristal. Le noyau occupe l'état excité 2^+ de 81 keV dans ^{166}Er .

mesures de résonance paramagnétique de $^{165}\text{Ho}^{3+}$ dans Y-ES, effectuées par Baker et Bleaney [9], pour calculer les constantes de couplage de l'hamiltonien de spin (6) dans le cas qui nous intéresse. Nous obtenons:

$$|A| \cong 0,103 \text{ cm}^{-1}$$

$$|P| \cong 0 \text{ cm}^{-1} \quad (7)$$

$$\Delta = \sqrt{\Delta_x^2 + \Delta_y^2} \cong 0,065(15) \text{ cm}^{-1}$$

Les équations (3), (4) et (5) de la référence [10] donnent des solutions exactes dans notre cas, puisque m est un bon nombre quantique, et nous permettent d'obtenir les deux fonctions et les deux valeurs propres du système correspondant à chaque valeur de m :

$$\begin{aligned} \psi_1(m) &= \frac{1}{\sqrt{1 + |R|^2}} (R\phi_1 + \phi_2) \\ \psi_2(m) &= \frac{1}{\sqrt{1 + |R|^2}} (\phi_1 - R^* \phi_2) \end{aligned} \quad (8)$$

où ϕ_1 et ϕ_2 sont des vecteurs propres du moment cinétique :

$$\phi_1 = |Im\frac{1}{2}\frac{1}{2}\rangle$$

$$\phi_2 = |Im \frac{1}{2} - \frac{1}{2}\rangle$$

et:

$$R = \frac{\Delta_x - i\Delta_y}{|\Delta|^2} [\sqrt{(Am + g_z \mu_B B_z)^2 + |\Delta|^2} + (Am + g_z \mu_B B_z)]. \quad (9)$$

Les énergies sont données par la relation :

$$E_{1,2} = \pm \frac{1}{2} \sqrt{(Am + g_z \mu_B B_z)^2 + |\Delta|^2}. \quad (10)$$

La figure 2 représente les valeurs propres obtenues en fonction du champ magnétique extérieur. Nous voyons que l'introduction du terme K' entraîne un mélange des états ϕ_1 et ϕ_2 au voisinage du croisement des niveaux d'énergie du système sans K' . Les niveaux $E_{1,2}$ (avec K') ne se croisent plus; ils se repoussent à cet endroit. Leur distance y est égale à Δ .

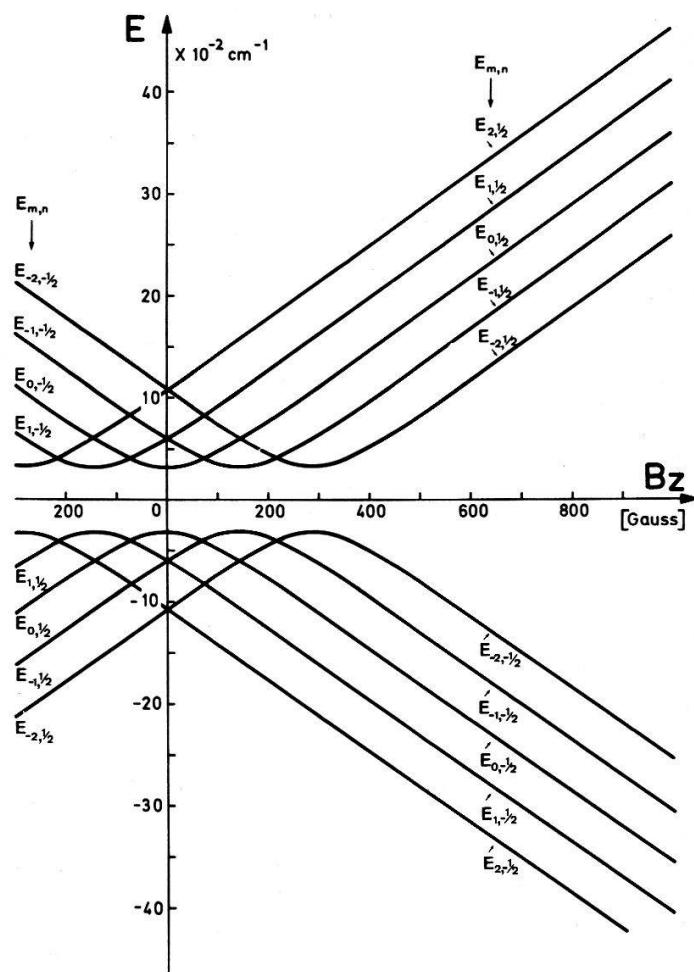


Figure 2

Figure 2
Interaction hyperfine de l'ion Ho^{3+} dans Y-ES: spectre d'énergie en fonction d'un champ magnétique extérieur parallèle à l'axe symétrie du cristal. Le noyau occupe l'état excité 2^+ de 81 keV dans ^{166}Er .

B) Fonctions de corrélations perturbées

1) *Cas général. Interférences et résonances.* En l'absence de toute perturbation extérieure, la fonction de corrélation directionnelle d'une cascade $\gamma\gamma$, c'est-à-dire la probabilité de détecter le deuxième γ d'une cascade dans une direction $\vec{\Omega}_2$ quand le premier est détecté dans la direction $\vec{\Omega}_1$, prend la forme:

$$W(\vartheta) = \sum_k A_k P_k(\cos \vartheta) \quad (11)$$

où ϑ est l'angle entre les directions d'émission, P_k le polynôme de Legendre d'ordre k , A_k une constante dépendant des spins des niveaux et du mélange de multipolarité des radiations considérées.

Si le noyau est influencé par son environnement électronique, le niveau nucléaire intermédiaire présente une certaine structure, introduite par le couplage hyperfin, et la cascade conduit en général le noyau d'un état initial à un état final via plusieurs sous-états intermédiaires possibles. La fonction de corrélation directionnelle peut être ainsi fortement modifiée. Nous allons étudier tout d'abord l'influence d'une perturbation quelconque, pour nous concentrer ensuite sur la perturbation dans les ions paramagnétiques des terres rares dilués dans des cristaux diamagnétiques. Comme précédemment, les ions des types Kramers et non-Kramers seront traités séparément, les états propres du système dans l'état intermédiaire, qui interviennent dans le calcul de la fonction de corrélation, étant caractérisés par des nombres quantiques différents suivant le type d'ion considéré. La théorie présentée ici est restreinte aux interactions stationnaires et aux corrélations intégrées dans le temps, c'est-à-dire aux cascades où la durée de vie de l'état intermédiaire est beaucoup plus courte que la résolution en temps du système de détection ; son développement est tiré essentiellement des travaux de Leisi et al. [11], [12] et surtout [4]. Pour une perturbation stationnaire, la fonction de corrélation a la forme suivante (équation 8 de la référence [11]):

$$W(\vec{\Omega}_1 \vec{\Omega}_2) = \sum_b \mathcal{F}_{bb} + 2 \sum_{(b, b')} |\mathcal{F}_{bb'}| \frac{\cos \phi_{bb'} - \left(\frac{E_b - E_{b'}}{\Gamma} \right) \sin \phi_{bb'}}{1 + \left(\frac{E_b - E_{b'}}{\Gamma} \right)^2} \quad (12)$$

où $\Gamma \equiv \hbar/\tau$ est la largeur naturelle du niveau intermédiaire et $\phi_{bb'}$ est la phase de l'amplitude d'interférence $\mathcal{F}_{bb'}$ de la paire de niveaux (b, b') . Cette dernière est définie par l'expression :

$$\mathcal{F}_{bb'} = \sum_{a, c, \sigma_1 \sigma_2} \langle c \vec{\Omega}_2 \sigma_2 | H' | b \rangle^* \langle b \vec{\Omega}_1 \sigma_1 | H' | a \rangle^* \times \langle c \vec{\Omega}_2 \sigma_2 | H' | b' \rangle \langle b' \vec{\Omega}_1 \sigma_1 | H' | a \rangle. \quad (13)$$

Dans cette équation, les quatre éléments de matrice représentent des amplitudes de transition. Par exemple, $\langle b' \vec{\Omega}_1 \sigma_1 | H' | a \rangle$ est l'amplitude de la transition d'un état initial $|a\rangle$ à un état intermédiaire $|b'\rangle$, avec émission dans la direction $\vec{\Omega}_1$ d'un γ de polarisation circulaire σ_1 , alors que $\langle c \vec{\Omega}_2 \sigma_2 | H' | b' \rangle$ donne l'amplitude de la transition conduisant le noyau de l'état (stationnaire) $|b'\rangle$ à un état final $|c\rangle$, avec émission dans la direction $\vec{\Omega}_2$ d'un γ de polarisation circulaire σ_2 . H' décrit l'interaction du noyau avec le champ radiatif. Sous sa forme (12), la fonction de corrélation est scindée en

deux parties: un terme direct et un terme d'interférence. Ce dernier doit son nom aux phénomènes d'interférence qui apparaissent lorsque la distance $|E_b - E_{b'}|$ de deux niveaux $|b\rangle$ et $|b'\rangle$ de l'état intermédiaire est de l'ordre de grandeur ou est inférieure à la largeur naturelle Γ , les quatre amplitudes de transition d'un état $|a\rangle$ à un état $|c\rangle$ via $|b\rangle$ ou $|b'\rangle$ étant toutes différentes de zéro; dans ce cas, il est impossible de déterminer par lequel des deux niveaux passe la cascade. Il n'est pas toujours nécessaire de calculer toute l'expression (13) pour déterminer si deux états $|b\rangle$ et $|b'\rangle$ qui remplissent la condition

$$|E_b - E_{b'}| \lesssim \Gamma \quad (14)$$

peuvent interférer ou non. Certaines règles de sélection, dépendant du problème considéré, permettent de prédire pour quelles paires (b, b') l'amplitude d'interférence $\mathcal{F}_{bb'}$ est différente de zéro. Nous énumérons ces règles dans les cas particuliers traités plus loin.

L'existence de ces effets d'interférence explique l'apparition de phénomènes de 'résonance' dans le taux de coïncidences de certaines cascades $\gamma\gamma$. Ceci est évident à la vue du dénominateur de la fonction de corrélation (12). S'il nous est possible, à l'aide d'un champ magnétique par exemple, de faire varier la distance $|E_b - E_{b'}|$ de deux niveaux $|b\rangle$ et $|b'\rangle$ pouvant interférer, nous observons une variation plus ou moins rapide de la fonction $W(\vec{\Omega}_1 \vec{\Omega}_2)$, à angles fixes, dans la région où la relation (14) est vérifiée.

Les amplitudes d'interférence $\mathcal{F}_{bb'}$ peuvent être exprimées en fonction des propriétés des états $|b\rangle$ et $|b'\rangle$ [4], [11]:

$$\mathcal{F}_{bb'} = 4\pi \sum_{k_1 k_2 \mu_1 \mu_2} A_{k_1}(1) \cdot A_{k_2}(2) \cdot \mathcal{S}_{bb'}(k_1 \mu_1) \cdot \mathcal{S}_{bb'}^*(k_2 \mu_2) \cdot Y_{k_1 \mu_1}(\vartheta_1 \varphi_1) \cdot Y_{k_2 \mu_2}^*(\vartheta_2 \varphi_2). \quad (15)$$

L'indice 1 se rapporte au premier γ , l'indice 2 au second. Lorsque $k_1 = k_2$, les coefficients $A_{k_i}(i)$ sont liés aux coefficients de la fonction de corrélation non perturbée (équation (11)) par la relation: $A_k(1) \cdot A_k(2) = A_k$. Les $Y_{k_i \mu_i}(\vartheta_i \varphi_i)$ sont des fonctions sphériques. En développant les états intermédiaires selon (2), nous avons:

$$\mathcal{S}_{bb'} = (2J + 1)^{-1/2} \sum_{m, m', n} (-1)^{I+m} \langle mn | b \rangle \langle m' n | b' \rangle^* \begin{pmatrix} IIk \\ -mm' \mu \end{pmatrix}. \quad (16)$$

Les amplitudes définies par les équations (15) et (16) sont normalisées conformément à la référence [11], de telle manière que la fonction de corrélation perturbée (12) prenne la forme (11) lorsque la perturbation disparaît.

2) *Perturbation dans un ion paramagnétique du type Kramers.* Nous avons vu précédemment que, pour la plupart des ions des terres rares du type Kramers placés dans un champ cristallin de symétrie axiale, l'hamiltonien de spin K prend la forme (1). De plus, si le champ magnétique extérieur est appliqué parallèlement à l'axe de symétrie, l'opérateur $F_z = I_z + J_z$ commute avec K et les états propres du système peuvent être classifiés selon les valeurs du nombre quantique M . L'équation (16) peut alors être mise sous la forme:

$$\begin{aligned} \mathcal{S}_{bb'}(k\mu) &\equiv \mathcal{S}_{b(M) b'(M')}(k\mu) = (2J + 1)^{-1/2} \sum_n (-1)^{I+m} \langle mn | b(M) \rangle \\ &\times \langle m' n | b'(M') \rangle^* \begin{pmatrix} IIk \\ -mm' \mu \end{pmatrix} \delta_{m, M-n} \delta_{m', M'-n} \delta_{\mu, M-M'}. \end{aligned} \quad (17)$$

Nous voyons que μ doit remplir la condition:

$$\mu = M - M' \quad (18)$$

En introduisant les relations:

$$Y_{k\mu}(\vartheta, \varphi) \equiv (4\pi)^{-1/2} \cdot a_{k\mu}(\vartheta) \cdot e^{i\mu\varphi} \quad (19)$$

et

$$Y_{k0}(\vartheta, \varphi) \equiv \left(\frac{2k+1}{4\pi} \right)^{1/2} \cdot P_k(\cos \vartheta) \quad (20)$$

dans l'équation (15), nous obtenons la fonction de corrélation directionnelle suivante:

$$W(\vartheta_1, \vartheta_2, \phi) = \sum_{k_1 k_2} \tilde{G}_{k_1 k_2} \cdot A_{k_1}(1) \cdot A_{k_2}(2) \cdot P_{k_1}(\cos \vartheta_1) \cdot P_{k_2}(\cos \vartheta_2) \\ + \sum_{b(M), b'(M')} \sum_{k_1 k_2} h_{k_1 k_2}^{bb'} \cdot A_{k_1}(1) \cdot A_{k_2}(2) \cdot a_{k_1 \mu}(\vartheta_1) \cdot a_{k_2 \mu}(\vartheta_2) \\ \cdot \frac{\cos \mu\phi - \left(\frac{E_b - E_{b'}}{\Gamma} \right) \sin \mu\phi}{1 + \left(\frac{E_b - E_{b'}}{\Gamma} \right)^2}. \quad (21)$$

Dans cette expression, nous avons tenu compte du fait que les coefficients $\langle mn|b\rangle$ sont réels et nous avons utilisé les définitions:

$$\phi \equiv \varphi_1 - \varphi_2 \\ \tilde{G}_{k_1 k_2} \equiv \sqrt{(2k_1 + 1)(2k_2 + 1)} \sum_{b(M)} \mathcal{S}_{bb}(k_1 0) \mathcal{S}_{bb}(k_2 0) \quad (22)$$

$$h_{k_1 k_2}^{bb'} \equiv 2\mathcal{S}_{bb'}(k_1, M - M') \cdot \mathcal{S}_{bb'}(k_2, M - M'). \quad (23)$$

Pour la détermination des paires (b, b') contribuant au terme d'interférence de la fonction (21), les règles de sélection suivantes peuvent être appliquées [11]:

- 1) Si la relation $[J_z, K] = 0$ est vérifiée, les états $|b\rangle$ dans le développement (2) sont caractérisés par une seule valeur de n . Deux états propres $|b\rangle$ et $|b'\rangle$ ne peuvent pas interférer si $n \neq n'$. Pour les ions considérés ici, un tel découplage de l'environnement du noyau apparaît lorsque $B = 0$ ou en présence d'un champ magnétique extérieur très fort (domaine de Paschen-Back).
- 2) Dans un système dont le nombre total de particules, nucléons et électrons, est impair et en l'absence de champ magnétique extérieur, les états de même énergie $|b\rangle$ et $|\tilde{b}\rangle = T|b\rangle$ (T est l'opérateur d'inversion du temps) ne peuvent interférer. Dans le cas où F_z commute avec K , cette règle s'applique aux paires $(|+M(\pm)\rangle, |-M(\pm)\rangle)$.
- 3) Deux états $|b(M)\rangle$ et $|b'(M')\rangle$ ne peuvent interférer si la relation suivante est vérifiée:

$$|M - M'| > \min(k_{1 \max}, k_{2 \max}). \quad (24)$$

- 4) Dans le cas spécial où $\vartheta_1 = \vartheta_2 = \pi/2$, les deux états $|b(M)\rangle$ et $|b'(M')\rangle$ ne peuvent interférer si :

$$|M - M'| \neq \text{entier pair.} \quad (25)$$

La forme générale (21) permet une déduction rapide des fonctions de corrélation pour les deux géométries qui nous intéressent. Dans le cas de l'axe de symétrie perpendiculaire au plan des détecteurs, nous avons $\vartheta_1 = \vartheta_2 = \pi/2$. La fonction de corrélation garde la forme générale (21). A la limite de forte perturbation, qui peut être caractérisée par :

$$|E_b - E_{b'}| \gg \Gamma \quad (26)$$

le terme d'interférence devient négligeable et la corrélation est isotrope si les états propres de K susceptibles d'interférer ne sont pas dégénérés et vérifient la relation (26). C'est le cas qui devrait se présenter pour la cascade de 1380–81 keV ($0^+ - 2^+ - 0^+$) de $^{166}\text{Er}^{3+}$ dans La–ES à champ nul (voir la figure 1). La relation (26) y est assez bien vérifiée ($\Gamma = 0,2 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$), les paires dégénérées ne pouvant interférer d'après la règle de sélection 2.

La seconde géométrie intéressante est celle où l'un des deux γ détectés est émis parallèlement à l'axe de symétrie du cristal. Supposons que le premier soit ainsi émis; l'expression (19) donne alors :

$$Y_{k_1 \mu_1}(0, \varphi_1) = a_{k_1 \mu_1}(0) \cdot e^{i\mu \varphi_1} = \left(\frac{2k_1 + 1}{4\pi} \right)^{1/2} \cdot \delta_{\mu 0}$$

et la fonction (21) prend la forme :

$$W(\vartheta_2) = \sum_{k_1 k_2} \left[\tilde{G}_{k_1 k_2} + \sum_{\substack{(bb') \\ \mu=0}} h_{k_1 k_2}^{bb'} \right] \cdot A_{k_1}(1) \cdot A_{k_2}(2) \cdot P_{k_2}(\cos \vartheta_2) \quad (27)$$

que nous pouvons simplifier en introduisant des facteurs d'atténuation G_k et en tenant compte du fait que : $A_k(1) \cdot A_k(2) = A_k$:

$$W(\vartheta) = \sum_k G_k \cdot A_k \cdot P_k(\cos \vartheta). \quad (28)$$

Les facteurs G_k ($k = 2, 4$) ont été calculés pour une séquence de spins 0–2–0, à la limite de forte perturbation, et sont représentés à la figure 3, en fonction du rapport $(A - 2P)/B$ des constantes de couplage hyperfin. La disparition de l'angle ϕ dans l'équation (28) indique que seuls les états caractérisés par la même valeur de M ($\mu = 0$) peuvent interférer; ceci est dû à la conservation du moment cinétique exigée le long de l'axe de symétrie (et d'émission du premier γ). S'il y a de plus découplage du spin électronique, la corrélation n'est plus perturbée. Un tel découplage apparaît en présence d'un champ magnétique très fort ou si la condition $B \approx 0$ est remplie (ceci explique que les facteurs G_k de la figure 3 tendent vers 1 lorsque $(A - 2P)/B \gg 1$).

Nous avons vu que la variation rapide du terme d'interférence de la fonction de corrélation (21) par l'intermédiaire de la différence d'énergie $E_b - E_{b'}$ dans la région où la relation (13) est vérifiée introduit des phénomènes de résonance. Dans le cas de l'émission d'un γ parallèle à l'axe de symétrie du cristal, seules les paires (b, b') avec $\mu = 0$ contribuent au terme d'interférence. Leur contribution ne peut être toutefois

que faible, puisque des états de même symétrie ($M = M'$) se repoussent toujours. Cette géométrie n'est donc pas favorable à l'observation de résonances¹⁾.

Si la corrélation est étudiée dans un plan perpendiculaire à l'axe de symétrie, des résonances sont en principe observables partout où une paire (b, b') vérifie la relation (14) en respectant les règles de sélection adéquates. Nous ne considérerons que les systèmes dont le nombre total de particules est impair. Cette restriction impose qu'autour du champ zéro les états $|b(+M)\rangle$ et $|b'(-M)\rangle$ n'interfèrent pas en vertu de la règle de sélection 2. Le même résultat est d'ailleurs imposé par la règle 4 pour la présente géométrie. Seules les paires (b, b') avec $\mu = 0, 2, 4$ peuvent interférer dans cette région, donc contribuer à une résonance, si la relation (14) y est vérifiée. En étudiant le spectre d'énergie du système, donné par les équations (3), nous constatons que pour certaines valeurs discrètes du champ magnétique il y a croisement (dégénérescence) de niveaux; ceux-ci interfèrent si les règles de sélection 3 et 4 sont respectées. La forme des résonances qui en résultent est déterminée par le terme d'interférence de

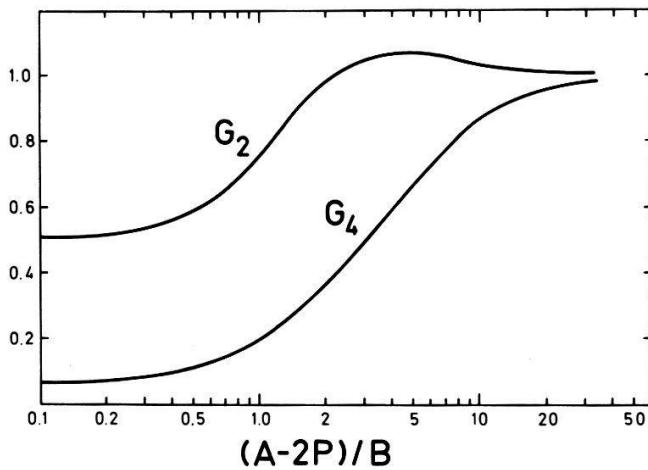


Figure 3

Facteurs d'atténuation G_2 et G_4 pour un ion du type Kramers et une cascade avec une séquence de spins 0–2–0, à la limite de forte perturbation, en fonction du rapport $(A-2P)/B$. L'axe du cristal est parallèle à l'axe de symétrie d'un des détecteurs.

l'équation (21). Autour de ces valeurs critiques du champ et à la limite de forte perturbation, toutes les interférences disparaissent, sauf celles dues aux états qui se croisent. L'équation (21) prend la forme:

$$W(\phi) = Q_0 + \sum_{bb'} Q_{\mu}^{bb'} \cdot \frac{\cos \mu\phi - \left(\frac{E_b - E_{b'}}{\Gamma} \right) \sin \mu\phi}{1 + \left(\frac{E_b - E_{b'}}{\Gamma} \right)^2} \cdot \delta_{\mu, M-M'}. \quad (29)$$

Les fonctions $Q_{\mu}^{bb'}$ qui déterminent la hauteur de la résonance ne dépendent que faiblement du champ magnétique; nous pouvons donc utiliser l'approximation:

$$Q_{\mu}^{bb'} = \sum_{k_1 k_2} h_{k_1 k_2}^R \cdot A_{k_1}(1) \cdot A_{k_2}(2) \cdot a_{k_1 \mu} \left(\frac{\pi}{2} \right) \cdot a_{k_2 \mu} \left(\frac{\pi}{2} \right). \quad (30)$$

¹⁾ Il faut noter que les amplitudes $\mathcal{F}_{bb'}$, dépendent du champ extérieur par l'intermédiaire des fonctions $\mathcal{S}_{bb'}$. Cette dépendance ne provoque toutefois qu'une variation très lente qui n'est pas assimilable à une résonance dans le domaine de champ étudié.

Les grandeurs $h_{k_1 k_2}^R$ sont définies par l'équation (23) et évaluées à la résonance. Elles ont été étudiées en détail dans certains cas particuliers et les résultats sont présentés à la référence [4]. Pour $^{166}\text{Er}^{3+}$ dans La-ES, la figure 1 indique trois résonances entre 0 Gauss et 5000 Gauss; la première, à 1519 Gauss, est due à la paire $(-1/2(-), +3/2(-))$, la deuxième, à 2660 Gauss, est due à la paire $(-3/2(+), +5/2(+))$, la troisième, due à la paire $(-1/2(+), +3/2(+))$, se situant à 2746 Gauss. La figure 1 nous montre également qu'aucune paire pouvant interférer ne vérifie la relation (14) autour du champ nul; aucune résonance n'est donc attendue dans cette région.

3) *Perturbation dans un ion paramagnétique du type non-Kramers.* Pour les ions de ce type dont l'état fondamental est un doublet, l'hamiltonien de spin est de la forme (6). Les états propres du système sont caractérisés par les valeurs du nombre quantique m de l'opérateur I_z , qui commute avec K . Pour calculer les fonctions de corrélation directionnelle correspondant aux deux géométries expérimentales, il faut retourner à la forme générale (12), en introduisant dans les grandeurs $\mathcal{S}_{bb'}$ les états $|b(m)\rangle$ propres à ce problème.

Considérons tout d'abord le cas où les deux γ sont détectés dans un plan perpendiculaire à l'axe de symétrie du cristal. Le terme direct de l'équation (12) se révèle alors indépendant du champ magnétique extérieur, appliqué parallèlement à cet axe. Pour le terme d'interférence, deux règles de sélection peuvent être appliquées: deux états $|b(m)\rangle$ et $|b'(m')\rangle$ ne peuvent interférer si l'une des relations suivantes est vérifiée:

$$1) \quad |m - m'| > \min(k_{1 \max}, k_{2 \max}) \quad (31)$$

$$2) \quad |m - m'| = |\mu| \neq \text{entier pair.} \quad (32)$$

La démonstration de ces règles est analogue à celle des règles correspondantes (24) et (25), valables pour les ions du type Kramers. Notons que la première est valable pour tous les problèmes caractérisés par $[I_z, K] = 0$ et quelle que soit l'orientation de l'axe cristallin, alors que la deuxième est spécifique à la géométrie avec $\vartheta_1 = \vartheta_2 = \pi/2$. Les niveaux avec $m = m'$ ne peuvent toutefois jamais interférer, car les grandeurs $\mathcal{S}_{b(m)b'(m')}$, indépendantes de l'orientation, sont nulles lorsque $\mu = 0$; ceci découle de l'hypothèse que l'environnement électronique n'est pas affecté par les transitions nucléaires. Notons enfin que lors de la sommation des différentes contributions, les termes en $\sin \mu \phi$ s'annulent; la fonction de corrélation prend donc la forme:

$$W\left(\frac{\pi}{2}, \frac{\pi}{2}, \phi\right) = c_0 + c_2(B_z) \cos 2\phi + c_4(B_z) \cos 4\phi \quad (33)$$

qui peut être elle-même développée en polynômes de Legendre avec des facteurs d'atténuation décrivant la perturbation. Dans le cas particulier de l'ion $^{166}\text{Ho}^{3+}$, seules les paires $(m, m') = (+1, -1)$ et $(+2, -2)$ interfèrent. La fonction (33) prend donc la forme:

$$W\left(\frac{\pi}{2}, \frac{\pi}{2}, \phi\right) = \epsilon_0 + \frac{\epsilon_2(B_z)}{1 + \left(\frac{\Delta E_{1, -1}}{\Gamma}\right)^2} \cos 2\phi + \frac{\epsilon_4(B_z)}{1 + \left(\frac{\Delta E_{2, -2}}{\Gamma}\right)^2} \cos 4\phi. \quad (34)$$

Les facteurs $\epsilon_k^{mm'}$ varient lentement avec le champ magnétique extérieur B_z . Par contre, les rapports $\Delta E_{mm'}/\Gamma$ croissent rapidement avec B_z . La corrélation présente donc une étroite résonance autour de 0 Gauss et devient rapidement isotrope lorsque

B_z croît. A champ nul, les facteurs d'atténuation prennent les valeurs $G_2 = 0,223$ et $G_4 = 0,037$. Une remarque importante s'impose à propos de ces résultats. Ils ont été obtenus en supposant que l'effet Jahn-Teller se laisse décrire par une valeur bien déterminée de Δ . En fait, nous devrions utiliser une répartition de valeurs de Δ [2]. L'influence d'une telle répartition sur la hauteur et la largeur de la résonance peut être évaluée en calculant les coefficients de l'équation (34) pour une certaine répartition de Δ : les différences d'énergie $\Delta E_{mm'}$ se laissent calculer à l'aide de la formule (10), alors que les coefficients $\epsilon_k^{mm'}$ sont donnés par l'expression:

$$\epsilon_k^{mm'}(B_z) = \alpha_k^{mm'} \cdot \left| \frac{1 + R_m^* R_{m'}}{\sqrt{1 + |R_m|^2} \cdot \sqrt{1 + |R_{m'}|^2}} \right|^2 \quad (35)$$

où les $\alpha_k^{mm'}$ sont des coefficients ne dépendant pas de l'environnement électronique (donc de Δ) et les grandeurs R_m sont données par l'équation (9).

Si l'un des deux γ observés est émis parallèlement à l'axe de symétrie du cristal, la corrélation directionnelle n'est pas perturbée. Ceci se démontre facilement, d'une part en exigeant la conservation du moment cinétique le long de cet axe, d'autre part en tenant compte que $[I_z, K] = 0$ et que les paires avec $|m - m'| = |\mu| = 0$ n'interfèrent pas.

III. Dispositif Expérimental

1) Choix du cristal et de l'isotope

Les buts de ce travail, l'étude des effets de température et d'orientation sur une fonction de corrélation et la recherche de résonances, ont déterminé les critères d'ordres atomique et nucléaire du choix du cristal et de l'isotope. Il faut noter tout d'abord qu'il est nécessaire de connaître les constantes de couplage de l'hamiltonien de spin, ce qui restreint le choix des cristaux utilisables à ceux qui ont été l'objet d'études approfondies de résonance paramagnétique. Notre choix s'est porté sur les éthyl-sulfates des terres rares, dont la structure cristalline est connue et qui sont faciles à tirer d'une solution acqueuse. De plus, une théorie satisfaisante permet d'expliquer

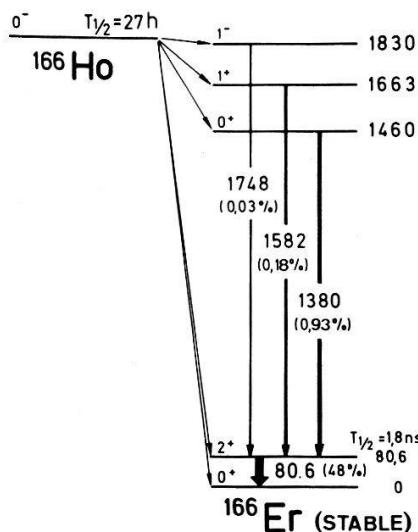


Figure 4
Schéma de désintégration simplifié de ^{166}Ho . Les énergies sont données en keV.

les résultats obtenus avec ces cristaux. Les autres conditions sont: pour l'environnement électronique, un rapport $B/A > 1$, ce qui laisse espérer des effets de résonance importants [12]: pour le noyau, une durée de vie du noyau-mère confortable, une cascade bien isolée et simple quant au mélange de multipolarités, de telle sorte que la fonction de corrélation non perturbée soit exactement connue, une durée de vie du niveau nucléaire intermédiaire adéquate (quelques nanosecondes) et enfin une grande anisotropie de la corrélation. ^{166}Er , avec sa cascade $\gamma\gamma$ de 1380–81 keV faisant suite à la désintégration de ^{166}Ho , remplit toutes ces conditions, à une exception près: ^{166}Ho a une période de 27 h, ce qui complique la préparation des cristaux.

Un schéma de désintégration simplifié de ^{166}Ho est présenté à la figure 4. Le rapport d'embranchement de la première transition de 1380 keV s'élève à 0,93% et le coefficient de conversion interne de la deuxième transition de 81 keV s'élève à environ 7. Le taux de coïncidences est donc faible, ce qui nécessite une haute activité spécifique. La séquence de spins $0^+ - 2^+ - 0^+$ de la cascade nous met en présence de deux radiations E2 pures. Nous pouvons calculer exactement les coefficients et l'anisotropie de la fonction de corrélation non perturbée, qui est de la forme (11), et nous obtenons:

$$\begin{aligned} A_2 &= 0,357 \\ A_4 &= 1,143 \\ A &= \frac{W(180^\circ) - W(90^\circ)}{W(90^\circ)} = +100\%. \end{aligned} \tag{36}$$

La seule cascade parasite dont la contribution n'est pas complètement négligeable est celle de 1582–81 keV qui interfère par sa répartition Compton avec la cascade qui nous intéresse. Sa contribution ne représente toutefois qu'environ 3,5% du total des coïncidences dans la fenêtre d'énergie sélectionnée sur le pic photoélectrique de 1380 keV et elle se laisse facilement corriger.

2) Appareillage de mesure

Pour les mesures de la corrélation directionnelle, nous avons utilisé deux scintillateurs NaI(Tl) de $3'' \times 3''$, en montage Integral Line de Harschaw. Leur résolution en énergie est de 7,7% pour la ligne de ^{137}Cs . Pour les mesures de résonances, le fort champ de fuite de l'aimant a nécessité l'emploi de deux détecteurs avec un guide de lumière de $2'' \times 12''$ et un scintillateur NaI(Tl) de $2'' \times 2''$ pour le γ de 1380 keV et de $2'' \times 1/4''$ pour le γ de 81 keV. Une coupe du système de détection, donnée à la figure 5, présente l'agencement du cryostat et des détecteurs ($3'' \times 3''$), les cinq angles de mesure et les absorbeurs utilisés (les mêmes pour les deux types de mesure).

Le schéma de l'électronique utilisée pour l'étude de la corrélation directionnelle est indiqué à la figure 6. Il s'agit d'un double système conventionnel rapide-lent, avec une voie pour les coïncidences totales et une deuxième pour les coïncidences fortuites (ou, pour les premières mesures, d'un système simple avec une seule voie rapide). Un analyseur de 400 canaux Intertechnique SA 40B et un enregistreur à bande magnétique stockent les spectres de coïncidences; le contenu des échelles, la durée des mesures et la position du détecteur mobile sont imprimés sur un téléscripteur. Une commande automatique contrôle le début et la fin des mesures à chaque angle par présélection du temps ou du contenu d'une échelle, le déplacement du détecteur et l'enregistrement des résultats.

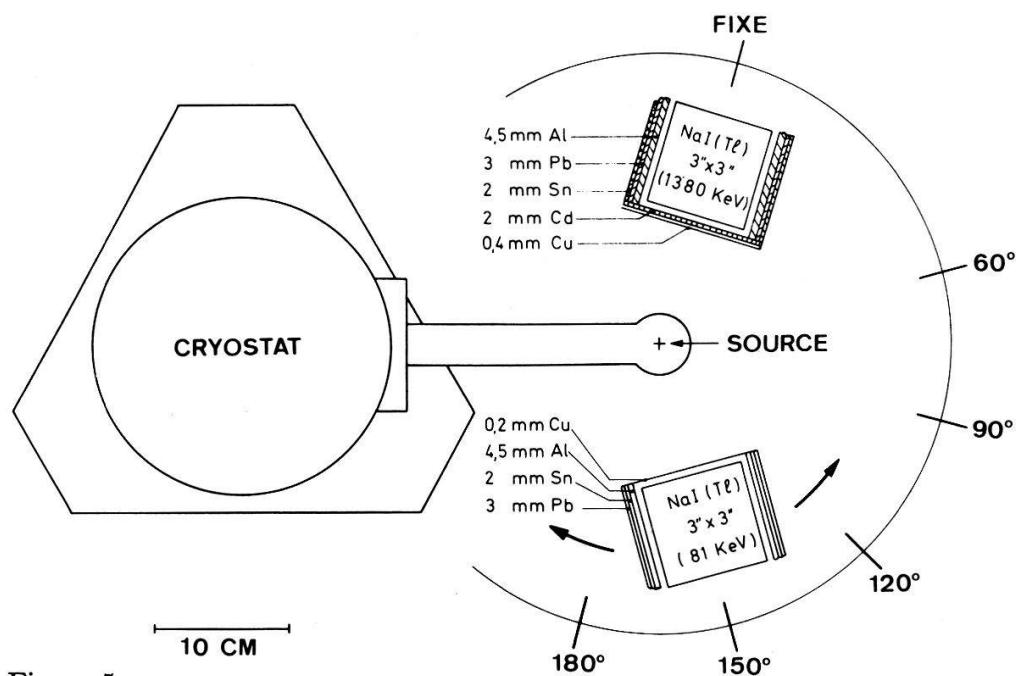


Figure 5
Coupe du système de détection utilisé pour les mesures de la corrélation directionnelle.

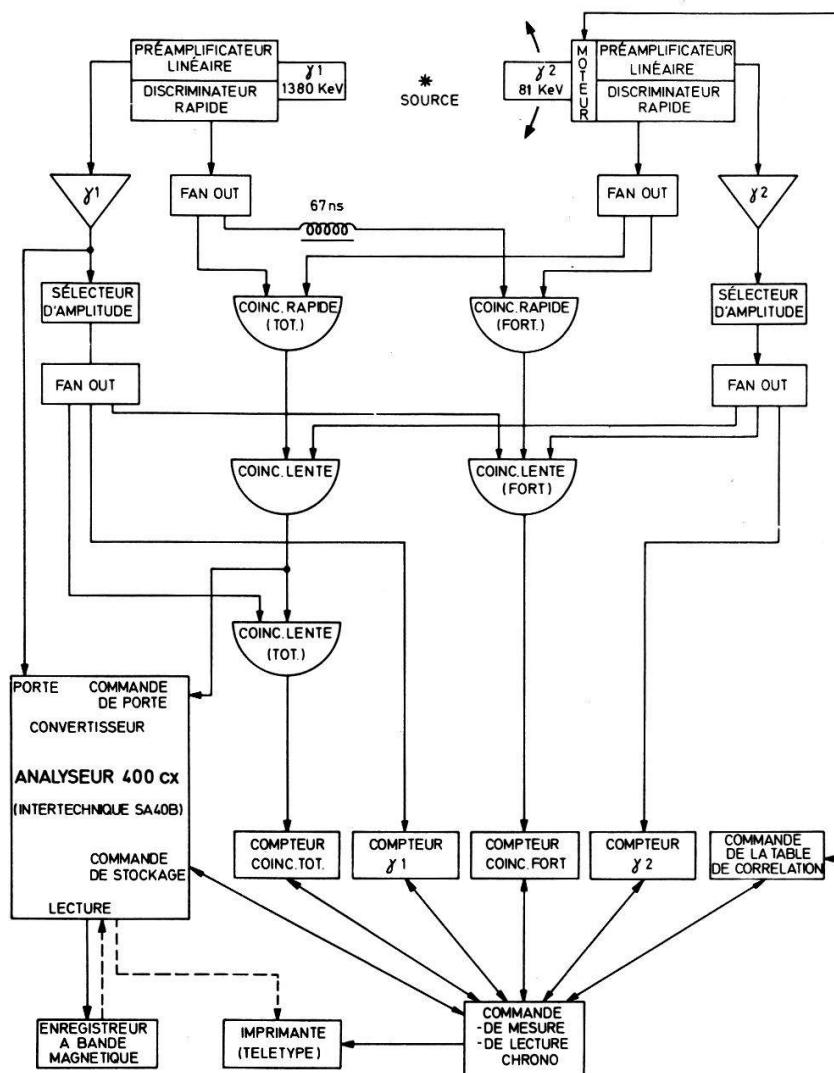


Figure 6
Schéma de l'électronique à double voie utilisée pour les mesures de la corrélation directionnelle.

Pour les recherches de résonances, nous avons utilisé un aimant à noyau de fer doux alimenté par un circuit asservi produisant un champ magnétique en dent de scie. Il est ainsi possible de balayer automatiquement un domaine intéressant. Un signal analogique proportionnel à la valeur instantanée du champ magnétique et les im-

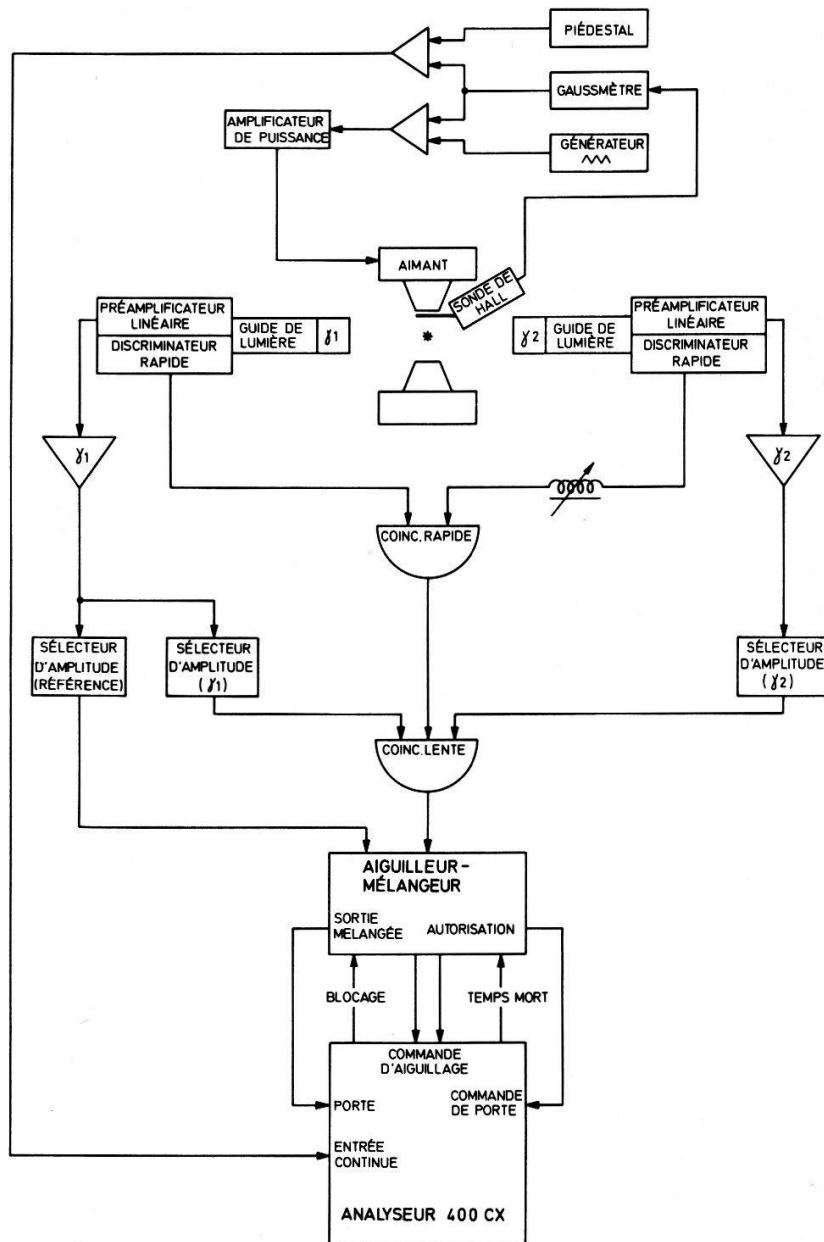


Figure 7
Schéma de l'électronique utilisée pour les mesures avec champ magnétique. Les unités d'enregistrement et de lecture sont identiques à celles de la figure 6.

pulsions de coïncidences sont dirigés vers l'analyseur multicanal travaillant en multiéchantillonnage (voir la figure 7). Nous obtenons ainsi directement les spectres de coïncidences en fonction du champ magnétique. Un spectre de référence, obtenu à l'aide du signal analogique du champ et des impulsions d'une fenêtre placée sur une partie horizontale du spectre d'un des détecteurs, permet de corriger les résultats pour les déviations dues à la nonlinéarité de la variation du champ.

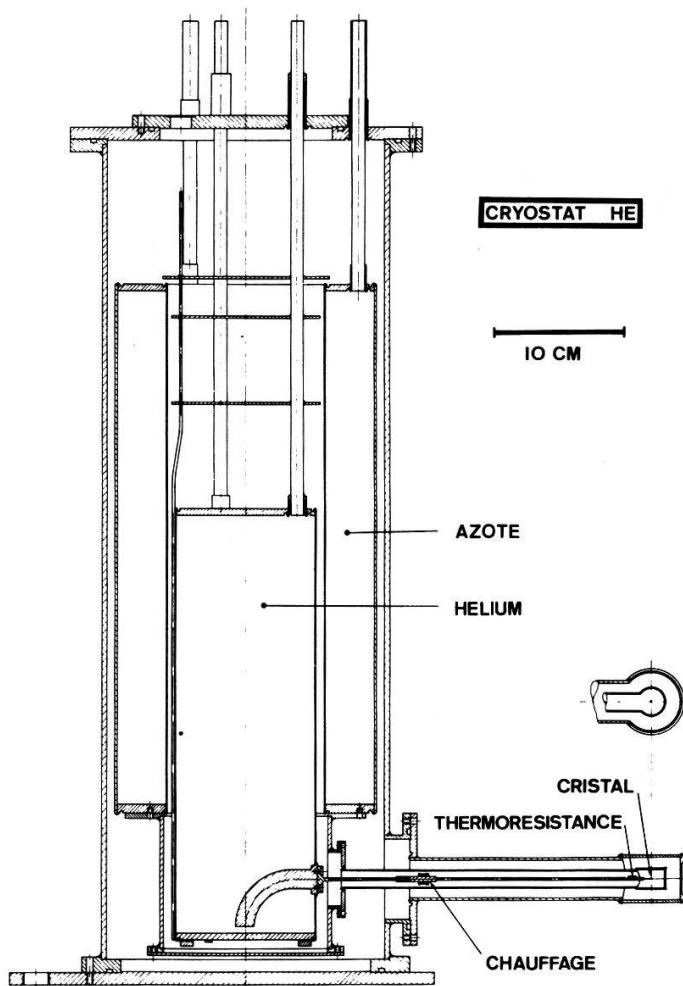


Figure 8
Cryostat à hélium liquide, en acier inoxydable.

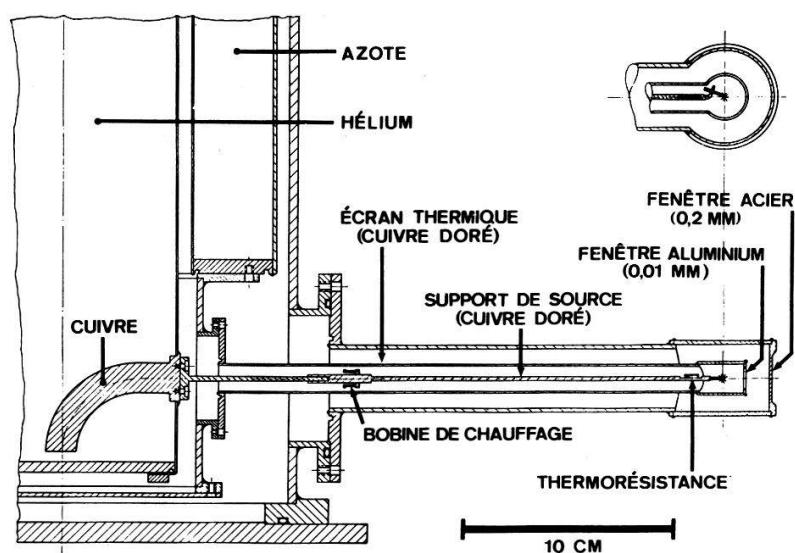


Figure 9
Cryostat à hélium liquide: détail du support de source.

La nécessité de maintenir l'environnement électronique dans un état stationnaire, tel que seul l'état fondamental de l'ion soit essentiellement occupé à l'équilibre thermique, exige que nous refroidissions les cristaux à des températures proches de celle de l'hélium liquide. Un cryostat en acier inoxydable a été construit dans les ateliers de l'Institut; une coupe en est donnée à la figure 8. Des problèmes de géométrie dûs à l'aimant ont exigé une construction latérale du porte-source; une coupe détaillée est présentée à la figure 9. La température est contrôlée derrière le cristal à l'aide d'une résistance au carbone; à l'emplacement même du cristal, elle s'élève à $(5,5 \pm 0,5)$ °K pour la plupart des mesures. La consommation d'hélium est très faible, environ 0,5 litre par jour.

3) Structure et préparation des cristaux

Les éthylsulfates des terres rares, de formule chimique $M(\text{C}_2\text{H}_5\text{SO}_4)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ (M représente l'ion des terres rares), cristallisent dans le système hexagonal. Leur structure cristalline a été étudiée tout d'abord par Ketelaar [13], puis plus en détail par Fitzwater et Rundle [14]. La maille élémentaire contient deux molécules, les deux ions des terres rares occupant les places équivalentes $1/3, 2/3, 1/4$ et $2/3, 1/3, 3/4$. L'environnement cristallin produit une symétrie C_{3h} en ces points. Les ions Ho^{3+} étudiés dans ce travail ont été dilués dans des cristaux de La-ES et d'Y-ES, afin de réduire l'interaction spin-spin et d'augmenter les temps de relaxation correspondants. Les rapports molaires Ho:La et Ho:Y varient entre 0,5% et 2%.

Le tirage des cristaux et la cour aux dames ont deux exigences communes: le temps et la patience. Comme avec les dames, le résultat est à prendre comme il se présente: parfois maigre, souvent imprévu, toujours indépendant de la volonté de l'expérimentateur. Ces considérations générales mises à part, la préparation de monocristaux de La-ES et d'Y-ES ne présente pas de difficultés majeures dans des conditions normales. La courte période de ^{166}Ho ($T_{1/2} = 27$ h) a toutefois compliqué la situation. Il n'est pas possible d'irradier des cristaux finis, d'une part parce que les éthylsulfates sont très instables et ne sont pas à même de supporter les températures des réacteurs durant l'irradiation, d'autre part parce que nous pouvons nous attendre à d'importants dommages dûs aux radiations et à une activité parasite notable. ^{165}Ho a donc été irradié sous forme d'oxyde au réacteur BR2 de Mol, en Belgique (flux: $2 \cdot 10^{14}$ neutrons/cm² sec), et au réacteur Saphir de Würenlingen (flux: $4 \cdot 10^{13}$ neutrons/cm² sec). Des cristaux de chlorure d'holmium hydraté ont également été irradiés au Saphir. Les échantillons de mesure ont été préparés selon cinq procédés différents. Nous allons décrire tout d'abord les quatre premières méthodes, basées sur la croissance en solution acqueuse.

Procédé 1: ^{165}Ho est irradié sous forme d'oxyde (à Mol) ou de chlorure (à Würenlingen) pendant trois jours. L'activité est récupérée par dissolution dans de l'acide chlorhydrique concentré, séchée et dissoute dans de l'eau distillée, séchée à nouveau, ceci plusieurs fois afin d'éliminer tout reste d'acide. Le chlorure cristallisé est ensuite ajouté à une solution saturée de La-ES.

Procédé 2: Le chlorure d'Ho radioactif est préparé comme indiqué ci-dessus, puis mélangé à la quantité équivalente de Na-ES en solution alcoolique. Le chlorure de Na précipite. Après filtrage, la solution restante est séchée et l'Ho-ES ainsi récupéré est ajouté à une solution saturée de La-ES.

Procédé 3) : Ce procédé est identique au précédent, avec toutefois une solution saturée d'Y-ES pour le tirage.

Procédé 4) : L'oxyde d'Ho irradié est transformé en sulfate. Ce dernier, en solution acqueuse, est ajouté à la quantité équivalente de Ba-ES. Le précipité de sulfate de Ba est éliminé par filtration. Après séchage, l'Ho-ES est ajouté à une solution saturée d'Y-ES.

Pour ces quatre procédés, les hautes activités initiales (environ 2 Ci), alliées aux inconvénients des échantillons en poudre, compliquent les manipulations précédant le tirage. De plus, la nécessité de travailler avec de faibles quantités de produits, imposée par la haute activité spécifique, rend difficile le contrôle du déroulement des réactions chimiques.

Le tirage proprement dit est effectué comme suit : avant l'adjonction de l'activité, la solution de tirage (0,3 à 0,6 cm³ de La-ES ou d'Y-ES), saturée à 20°C, est chauffée à 30–33°C afin de faciliter la dissolution du sel radioactif qui sera ajouté par la suite. Une fois l'activité dissoute, nous y introduisons un petit cristal-amorce. Nous avons essayé deux sortes d'amorces préparées par sursaturation d'une solution acqueuse : d'une part des cristaux libres que nous laissons croître au fond du récipient, d'autre part des cristaux ayant poussé sur un cheveu. Seuls ces derniers sont utilisés pour les mesures, car ils donnent de meilleurs échantillons. Ils sont préparés de la façon suivante : un cheveu long et droit d'une demoiselle si possible charmante (cette préparation date de l'époque où seules les filles portaient des cheveux longs) est introduit dans un capillaire, une de ses extrémités plongeant dans une solution concentrée ; en contrôlant la saturation, il est possible d'obtenir de petites amorces sur le cheveu. La croissance ultérieure d'une telle amorce dans la solution radioactive s'effectue à la température ambiante, dans un dessicateur en présence de P₂O₅.

Avec cette méthode de tirage sur un cheveu, les cristaux croissent librement au milieu de la solution et sont ainsi moins sensibles aux sursaturations, fréquentes en présence d'aussi faibles volumes de solution ; la plupart se présentent sous la forme de prismes hexagonaux très réguliers, avec de belles faces naturelles. Leur clarté et leur grosseur dépendent fortement de la rapidité et de la durée de la croissance. Notons encore que lorsque l'activité de la solution de tirage est très élevée, nous observons une dégradation de la solution après 2–3 heures, avec formation de bulles gazeuses et augmentation de l'acidité, le cristal cessant alors de croître. Ce dernier sort en général un peu trouble de cette aventure, mais sa structure macroscopique et ses faces naturelles sont tout à fait normales.

Procédé 5) : ¹⁶⁵Ho est irradié sous forme de chlorure. Sa récupération est semblable à celle du procédé 1). Le chlorure cristallisé est ensuite mélangé à 100–150 microlitres de La-ES saturé. Quelques gouttelettes de quelques microlitres de cette solution sont déposées successivement sur une face naturelle d'un cristal de La-ES, laissées pendant 20–30 secondes, puis enlevées, la surface étant chaque fois nettoyée. Des activités d'environ 300 µCi sont ainsi obtenues. Les cristaux de base sont choisis pour leur clarté et pour la qualité de leurs faces naturelles et sont préparés à partir de gros cristaux de La-ES qui sont découpés pour obtenir des échantillons de 30–50 mm³ avec au moins trois faces naturelles, dont deux pour l'orientation optique et une de 6–10 mm² pour le dépôt de l'activité. La préparation des sources selon ce procédé est simple et permet d'obtenir les échantillons de mesure quelques heures déjà après la

réception de l'activité. Il faut soigneusement éviter la formation de polycristaux sur la face naturelle; un contrôle au microscope s'impose.

Après avoir été soigneusement nettoyés avec de l'ouate imbibée de chloroforme, les cristaux sont montés avec l'axe de symétrie perpendiculaire au plan des détecteurs ou parallèle à l'axe de symétrie du détecteur fixe. Dans les mesures correspondant au procédé 5), la face contenant l'activité est toujours perpendiculaire au plan des détecteurs et au plan frontal du détecteur des hautes énergies (fixe) et fait face au détecteur mobile. Ainsi, les γ de 1380 keV détectés sont émis à peu près parallèlement à une chaîne d'ions de La, ce qui devrait entraîner une réduction des effets de recul. Un goniomètre permet l'orientation optique des cristaux qui sont ensuite collés sur le porte-source avec de la technovite. La précision de l'orientation est d'environ 1° dans le cas de l'axe de symétrie perpendiculaire au plan des détecteurs et d'environ 2° dans l'autre cas. Après le collage, le cristal est recouvert d'une petite cloche de quartz, d'épaisseur de paroi de 0,2 mm, elle-même collée au support de source. Ceci permet d'éviter une déshydratation du cristal dans le laps de temps séparant l'enclenchement des pompes à vide du refroidissement.

IV. Mesures

A) Corrélation directionnelle $\gamma\gamma$

1) *Technique de mesure.* La corrélation directionnelle de la cascade $\gamma\gamma$ $0^+-2^+-0^+$ de 1380–81 keV dans $^{166}\text{Er}-\text{La}(\text{Y})-\text{ES}$ a été étudiée avec l'appareillage décrit au chapitre précédent, à basse température ($(5,5 \pm 0,5)^\circ\text{K}$) et à la température ambiante (environ 300°K). Le système de détection de la figure 5 a été utilisé pour toutes ces mesures, les détecteurs étant montés à $100 \pm 0,5$ mm de l'axe de la table. La fonction de corrélation a été observée aux cinq angles suivants, dans l'ordre: 180° , 150° , 120° , 90° et 60° , par mesures de 10 minutes. Cette courte durée de mesure à chaque position permet de répartir sur plusieurs cycles les variations lentes éventuelles de l'électronique. Le dispositif d'enregistrement des données variant légèrement suivant les méthodes de préparation, nous décrirons tout d'abord les expériences correspondant aux quatre premiers procédés (type I), basés sur la croissance d'amorces en solution acqueuse. L'électronique ne comprend ici qu'une voie rapide avec une résolution en temps de $2\tau = 35$ nsec. Chaque mesure (de quelques heures) des coïncidences totales est précédée et suivie d'une mesure plus courte des coïncidences fortuites qui sont obtenues en retardant la sortie rapide d'un des détecteurs. La durée de cette dernière mesure dépend du rapport des fortuites aux totales. Le γ de 1380 keV est observé par le détecteur mobile. Vu la haute énergie de la radiation et les faibles dimensions des échantillons (quelques mm^3), l'absorption dans la source est ainsi indépendante de la position angulaire. Pour les mesures correspondant au procédé 5) (type II), nous avons utilisé le dispositif électronique de la figure 6. Une des deux voies analyse les coïncidences totales, l'autre les coïncidences fortuites, les deux voies rapides étant caractérisées par la même résolution en temps de $2\tau = 35$ nsec. Le γ de 1380 keV est observé ici par le détecteur fixe pour la raison exposée sous III.3.

Les spectres directs des deux détecteurs, ainsi que les fenêtres d'énergie sur les pics photoélectriques, sont présentés à la figure 10. Au cours des mesures de la corrélation, les spectres de coïncidences totales ou fortuites du détecteur des hautes énergies sont analysés par l'analyseur sur 200 canaux et stockés sur bande magnétique.

2) *Dépouillement.* Les spectres de coïncidences totales de haute énergie, correspondant à des périodes de mesure de 6 à 8 heures, sont additionnés par angle, après contrôle visuel de la hauteur et de la position du pic de 1380 keV de chacun d'entre eux. Après la sommation, le pic est intégré dans une fenêtre correspondant à celle du monocanal (voir la figure 10). Les spectres de coïncidences fortuites sont traités de la même manière. Les événements sélectionnés par la fenêtre du détecteur mobile (1380 keV ou 81 keV) sont également sommés par angle et les résultats sont utilisés pour normaliser les taux de coïncidences respectifs, afin d'éliminer les effets de la décroissance de

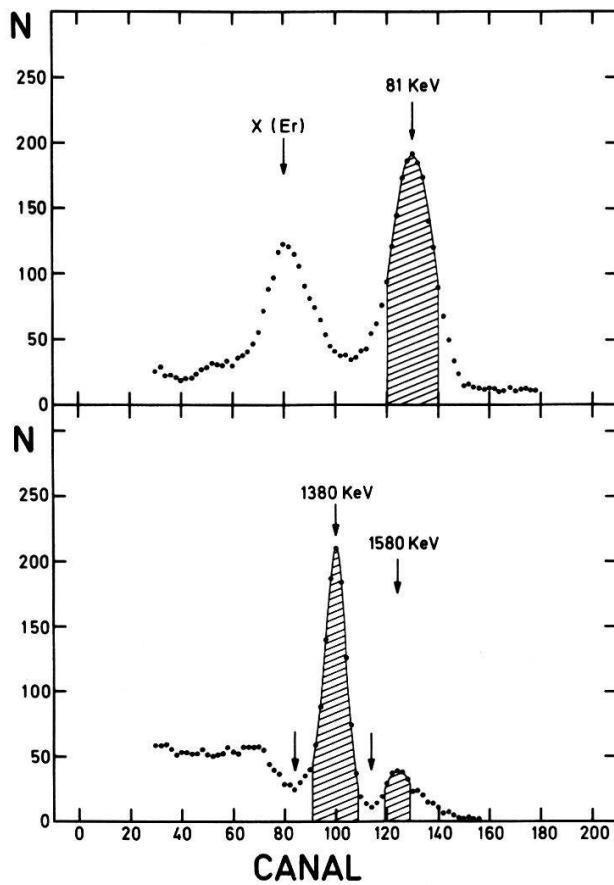


Figure 10
Spectres directs et fenêtres d'énergie des deux détecteurs NaI(Tl) de $3'' \times 3''$ utilisés pour les mesures de la corrélation directionnelle.

l'activité et d'un léger décentrage de la source; dans le cas des mesures du type II, une telle normalisation élimine également les effets de l'absorption des γ de 81 keV à 180° , cette dernière étant négligeable pour les autres positions.

La contribution des coïncidences fortuites est soustraite directement après la sommation des spectres lorsque les coïncidences totales et les fortuites ont été mesurées simultanément. Si les mesures de ces dernières encadrent celle des coïncidences totales, une interpolation linéaire de leur taux se révèle suffisante pour la correction. La contribution de la répartition Compton de la ligne de 1582 keV dans la fenêtre du pic de 1380 keV est évaluée en utilisant les profils des lignes de 1380 keV dans ^{92}Y et de 1580 keV dans ^{142}Nd [15], le rapport de leurs hauteurs respectives étant fixé par les rapports d'embranchement des lignes correspondantes dans ^{166}Er . Nous obtenons

ainsi une contribution de $(3,5 \pm 0,3)\%$. Les taux de coïncidences de la cascade de 1582–81 keV sont déterminés comme ci-dessus, en intégrant la ligne de 1582 keV dans la fenêtre définie à la figure 10.

Un programme d'ordinateur adapte aux points expérimentaux une fonction de corrélation de la forme :

$$W(\vartheta) = A_0[1 + A_2 \cdot G_2 \cdot Q_2 \cdot P_2(\cos \vartheta) + A_4 \cdot G_4 \cdot Q_4 \cdot P_4(\cos \vartheta)] \quad (37)$$

où Q_2 et Q_4 sont les facteurs de correction d'angle solide fini, calculés par Yates [16]; les autres grandeurs ont été définies plus haut. Pour notre géométrie, nous avons $Q_2 = 0,848$, $Q_4 = 0,566$ et $Q_2 = 0,851$, $Q_4 = 0,568$ pour les cascades de 1380–81 keV et de 1582–81 keV respectivement.

Pour évaluer une éventuelle influence de la largeur de la fenêtre d'intégration du pic de 1380 keV, nous avons étudié la corrélation en intégrant les spectres de vallée à vallée autour de ce pic (voir les flèches dans la figure 10), en tenant compte de l'augmentation de la contribution de la cascade de 1582–81 keV, qui passe de $(3,5 \pm 0,3)\%$ à environ 6,5%. Aucun changement de la fonction de corrélation n'est décelable.

L'influence de la diffusion Compton des γ dans la source et dans son voisinage (support de source, cloche de quartz, écran thermique relié au réservoir d'azote liquide et manteau extérieur du cryostat), qui entraîne une atténuation de la corrélation, a été étudiée avec un soin particulier et s'est révélée négligeable. L'absorption dans les cristaux préparés selon les procédés 1) à 4), dont la répartition interne de l'activité est à peu près homogène, peut introduire une anisotropie parasite. Une évaluation de cet effet nous a montré qu'il ne joue aucun rôle pour d'aussi petits cristaux. Dans le cas des mesures du type II, la face contenant l'activité a été placée de telle manière que seuls les γ de 81 keV détectés à 180° soient partiellement absorbés. La correction apportée par la normalisation décrite plus haut est suffisante pour éliminer cet effet.

3) Résultats. L'adaptation de la fonction de corrélation (37) aux points expérimentaux nous livre les facteurs d'atténuation G_k des cascades de 1380–81 keV et de 1582–81 keV. Après soustraction de la contribution de cette dernière, nous obtenons les facteurs d'atténuation de la première cascade, présentés dans la table I. Les résultats y sont classés selon le procédé de préparation des cristaux, en fonction de la température et de l'orientation de l'axe de symétrie. Une partie de ces résultats ont déjà fait l'objet de publications [17], [18], [19]. Nous observons les caractéristiques suivantes :

- 1) Les facteurs d'atténuation montrent une faible dépendance de l'orientation et une forte dépendance de la température. En utilisant la moyenne de toutes les mesures de la table I, nous obtenons la dépendance de l'orientation suivante, à basse température :

$$G_2(\leftrightarrow) - G_2(\uparrow\downarrow) = 0,14 \pm 0,03 \quad (38)$$

$$G_4(\leftrightarrow) - G_4(\uparrow\downarrow) = 0,013 \pm 0,015.$$

- 2) Les facteurs d'atténuation correspondant aux chimies 1 à 4 sont compatibles entre eux.
- 3) Les moyennes des résultats des mesures du type I sont identiques aux résultats correspondants de mesures du type II. Ceci permet d'écartier l'hypothèse de dommages dûs aux radiations pendant la croissance des cristaux et montre que la direction d'émission du γ de 1380 keV par rapport aux chaînes d'ions de La ou d'Y ne semble jouer aucun rôle.

Table I

Valeurs expérimentales des facteurs d'atténuation à champ magnétique nul, en fonction de la température et de l'orientation de l'axe de symétrie du cristal, pour cinq méthodes de préparation des échantillons. Cascade de 1380–81 keV

Méthode de préparation des cristaux*)	Orientation du cristal**)	Température [°K]	G_2	G_4
Chimie 1	\uparrow	7 \pm 1	0,185 \pm 0,056	0,078 \pm 0,030
		300	0,471 \pm 0,084	0,703 \pm 0,047
Chimie 2	\leftrightarrow	5,5 \pm 0,5	0,218 \pm 0,053	0,146 \pm 0,030
		300	0,646 \pm 0,057	0,530 \pm 0,031
Chimie 3	\leftrightarrow	5,5 \pm 0,5	0,342 \pm 0,045	0,176 \pm 0,023
		300	0,591 \pm 0,076	0,592 \pm 0,041
Chimie 4	\leftrightarrow	5,5 \pm 0,5	0,280 \pm 0,064	0,118 \pm 0,028
		300	0,577 \pm 0,056	0,572 \pm 0,030
	\uparrow	5,5 \pm 0,5	0,126 \pm 0,048	0,120 \pm 0,025
		300	0,541 \pm 0,050	0,564 \pm 0,027
Valeurs moyennes Chimies 1–4	\uparrow	6 \pm 1	0,151 \pm 0,036	0,103 \pm 0,019
		300	0,522 \pm 0,043	0,598 \pm 0,023
Déposition sur une face naturelle	\uparrow	5,5 \pm 0,5	0,156 \pm 0,027	0,125 \pm 0,014
		5,5 \pm 0,5	0,294 \pm 0,029	0,110 \pm 0,015
Moyennes de toutes les valeurs	\uparrow	5,5 \pm 0,5	0,154 \pm 0,021	0,117 \pm 0,011
		5,5 \pm 0,5	0,291 \pm 0,021	0,130 \pm 0,011

*) Chimie 1: oxyde Ho \rightarrow chlorure Ho + La–ES

Chimie 2: oxyde Ho \rightarrow chlorure Ho \rightarrow Ho–ES + La–ES

Chimie 3: oxyde Ho \rightarrow chlorure Ho \rightarrow Ho–ES + Y–ES

Chimie 4: oxyde Ho \rightarrow sulfate Ho \rightarrow Ho–ES + Y–ES

**) \uparrow : axe de symétrie perpendiculaire au plan des détecteurs,

\leftrightarrow : axe de symétrie parallèle à l'axe d'un des détecteurs.

B) Mesures avec champ magnétique extérieur

Le comportement du taux de coïncidences de la cascade de 1380–81 keV à 180°, observé perpendiculairement à l'axe de symétrie et en présence d'un champ magnétique extérieur parallèle à cet axe, a été étudié dans deux domaines; le premier s'étend d'environ 1 kGauss à environ 4,3 kGauss, le deuxième se situe de part et d'autre du champ zéro jusqu'à environ \pm 700 Gauss. Nous avons ainsi une plage d'observation assez large. Dans le deuxième domaine, $W(90^\circ)$ a été en général également étudiée, ce qui nous permet d'obtenir l'anisotropie de la corrélation en fonction du champ. Cette étude a été effectuée à basse température [(5,5 \pm 0,5) °K] avec des cristaux préparés selon les procédés 1) à 4) pour l'observation de $W(180^\circ)$ et selon les procédés 2) et 3) pour l'observation de l'anisotropie. Le schéma de l'électronique est présenté à la figure 7. Les γ de 81 keV sont observés par le détecteur de 2" \times 1/4" et les γ de 1380 keV par celui de 2" \times 2". Pour quelques unes des toutes premières mesures, des paires de détecteurs (2" \times 1/4", 3" \times 3") et (2" \times 2", 3" \times 3") ont également été employées. La résolution en énergie des détecteurs avec guide de lumière est de 12% pour la ligne de ^{137}Cs . La résolution en temps de la voie rapide (unique) est choisie entre 25 nsec et

35 nsec. La distance du plan frontal des détecteurs à l'axe de la table de corrélation est adaptée à chaque cas en fonction de l'activité de la source.

Le spectre de coïncidences à 180° et le spectre de référence sont dirigés simultanément vers l'analyseur et sont enregistrés en fonction du champ magnétique dans deux

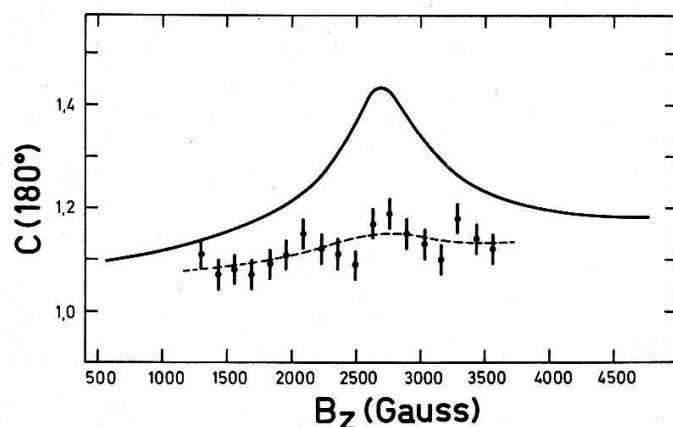


Figure 11

Mesure-type du taux de coïncidences à 180° en fonction d'un champ magnétique extérieur parallèle à l'axe de symétrie du cristal et perpendiculaire au plan des détecteurs. La courbe théorique est donnée par l'équation (21) et ramenée aux conditions d'angle solide de la mesure; elle est normalisée sur la valeur expérimentale à 0 Gauss.

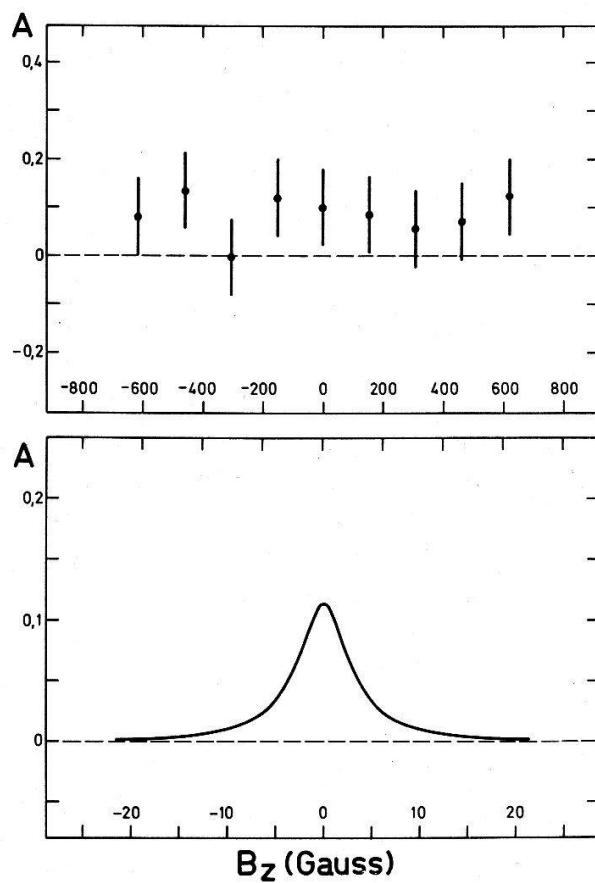


Figure 12

Mesure-type de l'anisotropie autour de 0 Gauss en fonction d'un champ magnétique extérieur parallèle à l'axe de symétrie du cristal et perpendiculaire au plan des détecteurs. La résonance théorique présentée correspond aux prévisions du modèle de l'ion Ho^{3+} dans Y-ES et est ramenée aux conditions d'angle solide de la mesure. Noter la différence des échelles du champ magnétique.

sous-groupes de mémoire de 200 canaux chacun. Ils sont transférés sur bande magnétique après une période de mesure de 200 minutes. Lors de l'étude de l'anisotropie, cette période est ramenée à 20 minutes pour chaque position angulaire. Si le taux des coïncidences fortuites est supérieur à 15%, chaque groupe d'environ 400 minutes de mesure est encadré par des mesures des coïncidences fortuites, dont la contribution est sous-traite après interpolation linéaire de leur taux. Les spectres de coïncidences et de référence sont ensuite sommés, après contrôle visuel de chacun d'entre eux, puis la somme des premiers est normalisée par la somme des seconds. Nous éliminons ainsi les effets dûs à la nonlinéarité du champ. Il n'a pas été tenu compte de la contribution de la cascade de 1582–81 keV, celle-ci ne pouvant en aucun cas masquer ou déformer sensiblement une résonance.

Les figures 11 et 12 présentent deux résultats typiques de ces investigations: la fonction $W(180^\circ)$ dans le domaine de 1200 Gauss à 4300 Gauss (figure 11) et l'anisotropie dans le domaine de ± 700 Gauss (figure 12). Pour le premier domaine, la courbe théorique de la figure 11 est donnée par la fonction $W(\pi/2, \pi/2, 180^\circ)$ de l'équation (21) (ion Er^{3+}), les fonctions $a_{k\mu}(\pi/2)$ ayant été corrigées pour l'angle solide fini, afin de permettre une comparaison directe avec les courbes expérimentales. La hauteur théorique de la résonance est ainsi $h \approx 28\%$ (pour l'angle solide nul, la hauteur est $h \approx 46\%$). Six mesures, dont une seule est représentée à la figure 11, ont été dépouillées. Pour simplifier, nous avons adapté aux points expérimentaux une droite et une gaussienne superposées, à la place de la fonction (21). Sous réserve de cette simplification, nous obtenons pour la hauteur expérimentale moyenne de la résonance: $h = (2,3 \pm 0,9)\%$. À champ faible, la fonction de corrélation $W(\pi/2, \pi/2, 180^\circ)$ de l'équation (21) appliquée au cas de l'ion $^{166}\text{Er}^{3+}$ dans La-ES se réduit à peu près au terme direct, l'anisotropie résiduelle à 0 Gauss étant d'environ 0,5%. La figure 12 présente le comportement expérimental de l'anisotropie autour de 0 Gauss, ainsi que l'étroite résonance théorique attendue dans le cas de l'ion $^{166}\text{Ho}^{3+}$ dans Y-ES et corrigée pour l'angle solide fini.

C) Mesures de résonance de spin dans Ho^{3+} dilué dans des monocristaux des éthylsulfates de La et d'Y

Des mesures de résonance paramagnétique ont été effectuées sur des échantillons préparés selon les procédés 1)–3) avec modulations électrique (Stark) et magnétique (Zeeman) [20], [21] et sur des échantillons préparés selon le procédé 4) avec modulation magnétique [22]. Pour les trois premiers procédés, la faible intensité des signaux obtenus avec modulation électrique semble indiquer que la majorité des ions Ho^{3+} occupe des centres d'inversion, ce qui ne correspond pas à la place normale des ions La^{3+} et Y^{3+} dans les éthylsulfates [20]. Les échantillons préparés selon le procédé 4) livrent des spectres normaux.

L'influence de l'interaction hyperfine sur la corrélation directionnelle est sensiblement la même quel que soit le procédé de préparation. Il faut noter que nous observons cette influence dans la période très courte (~ 2 nsec) qui suit la désintégration β^- . Ceci ne correspond pas aux conditions d'observation des mesures de résonance paramagnétique, où l'environnement électronique est couplé à un noyau stable et n'est pas perturbé par les effets de la désintégration nucléaire. La divergence entre les deux séries de mesures de résonance paramagnétique n'est donc pas significative dans notre cas.

V. Discussions et Interprétation

Dans le but d'interpréter les résultats décrits au chapitre précédent, nous considérerons tout d'abord différents modèles, en nous concentrant sur leurs prévisions concernant la perturbation de la corrélation directionnelle et son comportement en fonction du champ magnétique extérieur. Les quatre premiers modèles, relatifs à des interactions hyperfines stationnaires, concernent plus particulièrement les mesures à basse température; le dernier décrit une interaction dépendante du temps. Nous comparerons ensuite ces différentes prévisions aux résultats expérimentaux pour en tirer une interprétation.

1) Doublet fondamental de l'ion $^{166}\text{Er}^{3+}$ dans La-ES

Nous supposons ici que l'ion Er^{3+} occupe son doublet fondamental (du type Kramers), l'axe de symétrie du cristal étant perpendiculaire au plan des détecteurs. Nous avons vu sous II.B.2 que, dans ce cas, la condition de forte perturbation (27) est assez bien vérifiée pour les paires de niveaux aptes à interférer. La contribution du terme d'interférence de la fonction de corrélation (21) est faible; la corrélation directionnelle est pratiquement isotrope. Pour la deuxième géométrie, avec l'axe du cristal parallèle à l'axe de symétrie d'un des détecteurs, la fonction de corrélation se réduit à la forme (28) avec les facteurs d'atténuation G_k représentés à la figure 3. Pour l'état 2^+ de 81 keV dans $^{166}\text{Er}^{3+}$ -ES, nous avons vu que $(A - 2P)/B = 0,209$ (équations (5)), d'où les facteurs d'atténuation théoriques: $G_2 = 0,52$ et $G_4 = 0,07$.

La corrélation directionnelle théorique en fonction d'un champ magnétique extérieur parallèle à l'axe de symétrie du cristal et perpendiculaire au plan des détecteurs présente une résonance très marquée aux environs de 2700 Gauss. Sa hauteur, de 46% pour un angle solide idéal, se ramène à 28% après correction de l'angle solide expérimental (figure 11). Ramenée aux conditions expérimentales des mesures autour de 0 Gauss, la contribution résiduelle de cette résonance aux champs faibles entraîne une variation de l'anisotropie de la corrélation comprise entre environ 0,5% à 0 Gauss et environ 1% à 600 Gauss.

2) Doublet fondamental de l'ion $^{166}\text{Ho}^{3+}$ dans Y-ES

La durée de réorganisation des couches électroniques suivant l'émission β^- est mal connue, particulièrement dans les isolateurs à basse température. Nous considérons donc ici le cas où l'ion occupe l'état fondamental de Ho^{3+} (doublet du type non-Kramers) pendant la durée de vie de l'état nucléaire intermédiaire. Lorsque l'axe du cristal est perpendiculaire au plan des détecteurs, la fonction de corrélation peut être développée en polynômes de Legendre. L'influence de la perturbation est exprimée par les facteurs d'atténuation: $G_2 = 0,223$ et $G_4 = 0,037$. Lorsqu'un des deux γ observés est émis parallèlement à l'axe du cristal, nous avons vu sous II.B.3 que la corrélation directionnelle n'est pas perturbée, ce qui entraîne $G_k \equiv 1$. Ceci reste valable si nous admettons qu'une partie des ions occupe l'état singulet de $\sim 6 \text{ cm}^{-1}$, pour lequel $G_k \equiv 1$, puisque l'interaction hyperfine est nulle pour cet état. Pour la première géométrie, cette occupation partielle entraîne des facteurs d'atténuation supérieurs à ceux décrits ci-dessus.

Le comportement théorique de l'anisotropie en fonction d'un champ magnétique extérieur parallèle à l'axe du cristal et perpendiculaire au plan des détecteurs est présenté à la figure 12. Une résonance très étroite, de 15% pour l'angle solide idéal et pour une valeur bien déterminée de Δ (au lieu d'une répartition), est attendue autour de 0 Gauss, l'anisotropie devenant négligeable pour $B_z \gtrsim 20$ Gauss. La hauteur se réduit à 11,4% après correction de l'angle solide fini.

3) Interaction hyperfine stationnaire de l'ion $^{166}\text{Er}^{3+}$ libre

L'influence du champ cristallin sur les ions des terres rares est relativement faible, les électrons $4f$ étant partiellement protégés par les couches électroniques extérieures. Une diminution accidentelle de ce champ peut donc nous amener dans le cas d'un ion libre. L'interaction hyperfine stationnaire est alors décrite par l'hamiltonien de spin suivant:

$$K = a\vec{I}\vec{J} + b \frac{3(\vec{I}\vec{J})^2 + \frac{3}{2}(\vec{I}\vec{J}) - I(I+1)J(J+1)}{2I(2I-1)J(2J-1)} + g_J \mu_B B_z J_z. \quad (39)$$

Les grandeurs intervenant dans cette expression ont leur signification habituelle. Le premier terme décrit l'interaction magnétique, le deuxième l'interaction quadrupolaire et le troisième le couplage avec un champ magnétique extérieur parallèle à l'axe de quantification z du système de référence. Nous avons calculé les constantes de couplage a et b de l'ion $^{166}\text{Er}^{3+}$ libre ($J = 15/2$) à partir des résultats des mesures effectuées par Goodman et al. [23] sur le niveau fondamental isoélectrique $^4\text{I}_{15/2}$ de l'atome neutre ^{165}Ho (11 électrons $4f$), en tenant compte de la différence des moments magnétiques et quadrupolaires des deux noyaux [8], [23] et en négligeant la faible dépendance de a et b du nombre atomique Z . Nous obtenons ainsi:

$$\begin{aligned} a &\approx 7,1 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1} \\ b &\approx 46,5 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}. \end{aligned} \quad (40)$$

L'opérateur $\vec{F} = \vec{I} + \vec{J}$ commute avec K en l'absence de champ magnétique extérieur. Les niveaux d'énergie sont caractérisés par les valeurs F du spin total. Dans le cas de l'ion $^{166}\text{Er}^{3+}$, nous avons $|E_F - E_{F'}| \gg \Gamma$ pour toutes les paires (F, F') . La perturbation est donc décrite par les valeurs 'hard core' des facteurs d'atténuation:

$$G_k = (2J+1)^{-1} \sum_F (2F+1)^2 \begin{Bmatrix} F & F & k \\ I & I & J \end{Bmatrix}^2. \quad (41)$$

Nous obtenons ainsi:

$$G_2 = 0,209 \quad \text{et} \quad G_4 = 0,116. \quad (42)$$

Selon ce modèle, l'anisotropie de la corrélation directionnelle présente une résonance autour de 0 Gauss [24], dont la hauteur, ramenée aux conditions expérimentales, s'élève à 14,7% et dont la largeur totale à mi-hauteur est donnée approximativement par la relation :

$$\Delta B_z = \frac{\Gamma}{\mu_B \langle |g_F| \rangle} \approx \frac{\Gamma}{\mu_B g_J} = 36 \text{ Gauss}. \quad (43)$$

Cette anisotropie s'annule très rapidement lorsque le champ magnétique croît.

4) Interaction magnétique stationnaire avec couplage classique dans une source polycristalline

L'interaction hyperfine d'un ion du type Kramers dans un champ cristallin de symétrie axiale et d'anisotropie maximum ($A \gg B$ dans l'hamiltonien (1)) correspond au couplage classique du spin nucléaire avec un champ magnétique extérieur et est décrit par un hamiltonien du type:

$$K = AI_z J_z + g_z \mu_B B_z J_z, \quad (44)$$

le premier terme décrivant l'interaction hyperfine, le deuxième le couplage avec le champ extérieur appliqué parallèlement à l'axe de symétrie z . L'influence d'une telle interaction sur la fonction de corrélation d'une cascade ' $\gamma\gamma$ ' dans le cas d'une source polycristalline a été étudiée par Matthias et al. [25]. Ces auteurs ont montré que la fonction de corrélation se réduit à un développement en polynômes de Legendre dont les facteurs d'atténuation tendent, à la limite de forte perturbation, vers les valeurs 'hard core':

$$G_k = \frac{1}{2k+1}. \quad (45)$$

Ces valeurs sont proches de celles du modèle précédent. Le comportement de la fonction de corrélation en présence d'un champ magnétique extérieur appliqué perpendiculairement au plan des détecteurs est toutefois différent dans ce modèle: aucune résonance n'est attendue autour de 0 Gauss. Les spins nucléaire et électronique sont découplés; l'influence du champ extérieur sur la corrélation directionnelle reste faible entre ± 700 Gauss. Dans ce domaine, l'anisotropie doit donc être constante. Sa valeur, calculée à l'aide des facteurs d'atténuation (45) et ramenée à la géométrie expérimentale, s'élève à 14,1%.

5) Interaction hyperfine dépendante du temps de l'ion $^{166}\text{Er}^{3+}$ libre

Nous pouvons généraliser le modèle 3 de l'ion libre aux hautes températures en tenant compte des phénomènes de relaxation. L'influence d'une telle interaction sur une corrélation directionnelle a été étudiée par Scherer [26] et par Blume [27] dans un modèle développé pour une source gazeuse. Dans ce cas, la relaxation est provoquée par les chocs entre atomes et est décrite par une seule grandeur, τ_c , qui représente l'intervalle de temps moyen entre deux collisions. Il est supposé de plus que la probabilité d'occupation soit la même pour chacun des $2J+1$ états $|n_J\rangle$ après la réorientation du spin électronique \vec{J} par les chocs. Dans le cas d'un cristal, cette dernière supposition, ainsi que la description de la relaxation par une seule grandeur, ne sont pas exactes, ce qui limite la validité des résultats.

Les facteurs d'atténuation prédis par ce modèle sont donnés par les équations suivantes [27]:

$$G_k = \left\{ \frac{1}{\sum_{F,F'} \frac{c_{FF'}^k}{1 + \frac{\tau_n}{\tau_c} + i \frac{E_F - E_{F'}}{\hbar} \tau_n}} - \frac{\tau_n}{\tau_c} \right\}^{-1} \quad (46)$$

avec:

$$c_{FF'}^k \equiv \frac{(2F+1)(2F'+1)}{2J+1} \begin{Bmatrix} F & F' & k \\ I & I & J \end{Bmatrix}^2. \quad (47)$$

Gygax [28] a montré que l'équation (46) se réduit à:

$$G_k = (1 + \lambda_k^* \tau_c \tau_n)^{-1} \quad (48)$$

si les conditions suivantes sont simultanément vérifiées:

$$\left(\frac{\tau_c}{\tau_{int}} \right)^4 \ll 1 \quad \text{et} \quad \tau_c \ll \tau_n \quad (49)$$

τ_n est la durée de vie de l'état nucléaire intermédiaire; le temps τ_{int} caractérise la grandeur de l'interaction et peut être défini par:

$$\tau_{int} \approx \frac{\hbar}{\sqrt{\langle |E_F - E_{F'}|^2 \rangle}} \quad (50)$$

où $\sqrt{\langle |E_F - E_{F'}|^2 \rangle}$ est une valeur moyenne appropriée de la séparation des niveaux due à l'interaction. λ_k^* est donné par l'équation:

$$\lambda_k^* = \sum_{F, F'} c_{FF'}^k \left(\frac{E_F - E_{F'}}{\hbar} \right)^2. \quad (51)$$

Cette grandeur est une caractéristique de l'interaction considérée et ne dépend pas des temps de relaxation, donc de la température²⁾.

A l'aide des constantes de couplage hyperfin du modèle 3, nous obtenons $\tau_{int} \approx 10^{-10}$ sec. Les facteurs G_k expérimentaux à 300°K donnent, avec la formule (48), $\tau_c \approx 10^{-12}$ sec, ce qui correspond aux temps de relaxation habituels dans les cristaux à cette température. Les relations (49) sont donc certainement vérifiées. Le rapport λ_4^*/λ_2^* se laisse calculer à l'aide des équations (47) et (51), ce qui nous donne, pour l'ion $^{166}\text{Er}^{3+}$ soumis à l'interaction (39) sans champ extérieur et avec relaxation:

$$\left(\frac{\lambda_4^*}{\lambda_2^*} \right)_{^{166}\text{Er}^{3+}} = 3,2. \quad (52)$$

La valeur expérimentale obtenue à l'aide des moyennes des facteurs G_k à 300°K (table I) est la suivante:

$$\left(\frac{\lambda_4^*}{\lambda_2^*} \right)_{300^\circ\text{K}} \sim 0,8. \quad (53)$$

Ce rapport est différent du résultat théorique et semble favoriser l'hypothèse d'une interaction essentiellement quadrupolaire. Ceci est toutefois à considérer avec circonspection, vu les importantes réserves énoncées plus haut quant à la validité du modèle pour un cristal.

²⁾ Pour une interaction hyperfine purement magnétique ou purement quadrupolaire, les rapports λ_4^*/λ_2^* tendent vers les rapports correspondants λ_4/λ_2 d'Abragam et Pound [29]:

$$\left(\frac{\lambda_4^*}{\lambda_2^*} \right)_{\text{magn.}} = 3,33 \quad \text{et} \quad \left(\frac{\lambda_4^*}{\lambda_2^*} \right)_{\text{quadr.}} = 0,59.$$

Interprétation

Les prévisions théoriques des modèles discutés ci-dessus et les résultats expérimentaux sont comparés dans la table II.

Il ressort clairement que, pour la majorité des noyaux observés, l'interaction hyperfine ne correspond pas à celle du doublet fondamental de l'ion $^{166}\text{Er}^{3+}$ dans La-ES; de plus, lorsqu'un des γ observés est émis parallèlement à l'axe de symétrie du cristal, les G_k expérimentaux ne sont compatibles avec aucune valeur du rapport $(A - 2P)/B$. Cette remarque ne s'applique évidemment qu'à un ion du type Kramers. La comparaison des facteurs d'atténuation écarte également le modèle de l'ion $^{166}\text{Ho}^{3+}$ dans Y-ES. Il faut toutefois noter dans ce cas que la faible statistique par point de mesure et la mauvaise résolution du champ magnétique, qui résulte du large domaine étudié et de l'étroitesse de la résonance attendue, ne permettent pas de confirmer ou d'infirmer l'existence d'une résonance autour de 0 Gauss (voir la figure 12).

Comme nous l'avons vu plus haut, les facteurs d'atténuation expérimentaux ne dépendent que faiblement de l'orientation de l'axe cristallin. Leurs valeurs sont assez proches des valeurs 'hard core' des équations (42) et (45). Elles pourraient donc être expliquées par une interaction dont la partie essentielle est du type (39) ou (44). Le comportement expérimental de l'anisotropie autour de 0 Gauss correspond qualitativement à celui prévu par le modèle 4). Il est toutefois difficile de concevoir que, dans les monocristaux étudiés, la plupart des ions observés soient caractérisés par un entourage de symétrie axiale avec $A \gg B$ et orienté au hasard dans l'espace. Même une destruction locale de cet environnement, due par exemple au recul du noyau, ne permet pas d'envisager une pareille situation.

Il nous reste à considérer le modèle d'un ion libre. Nous avons rappelé ci-dessus qu'une interaction hyperfine stationnaire essentiellement isotrope, du type (39) avec $J \gg I$ (c'est le cas de l'ion Er^{3+} libre par exemple), explique grossièrement les facteurs d'atténuation expérimentaux obtenus à 5,5°K. Le comportement de l'anisotropie de la corrélation entre ± 700 Gauss ne présente pas la résonance prévue par ce modèle. Cette divergence est à traiter toutefois avec circonspection car, d'une part, la remarque énoncée plus haut concernant la statistique par point et le domaine de champ étudié s'applique également ici et, d'autre part, une déviation même partielle de l'isotropie de l'interaction peut altérer fortement le comportement de l'anisotropie de la corrélation. Les résultats expérimentaux montrent une remarquable indépendance du mode de préparation des échantillons. Ce fait laisse présumer que l'origine de cette isotropie de l'interaction est extérieure au cristal ou à sa structure locale avant la désintégration. Une explication plausible peut être cherchée dans les effets de recul de l'ion accompagnant les émissions nucléaires. L'énergie de recul moyenne libérée lors de l'émission du β^- s'élève à environ 0,8 eV (l'énergie de recul maximum est de l'ordre de 1,8 eV), alors que celle qui accompagne l'émission du premier γ de la cascade s'élève à 6 eV. Cette libération d'énergie perturbe violemment l'ion et son environnement cristallin. Nous ne disposons pas de valeurs concernant les forces de liaison dans les éthylsulfates; il n'est pas exclu qu'une énergie de 6 eV suffise à briser ces liaisons ou à expulser l'ion de sa place originelle. Dans tous les cas, même s'il n'y a pas de destruction locale, l'ion est certainement violemment excité lors du recul. L'ion Er^{3+} par exemple peut ainsi occuper non seulement les huit doublets de Kramers de son multiplet fondamental $^4\text{I}_{15/2}$, mais également des multiplets d'énergie beaucoup plus élevée. La durée de vie de ces états joue un grand rôle dans la perturbation de la corrélation directionnelle et

Table II
Comparaison des résultats expérimentaux avec les prévisions de différents modèles théoriques

Expérience		Modèles théoriques			
		Er ³⁺ dans La-ES	Ho ³⁺ dans Y-ES	Er ³⁺ libre stationnaire	Poudre $A \gg B, T$
5,5°K	300°K				
$\dagger \downarrow$	G_2	$0,154 \pm 0,021$	$0,552 \pm 0,043$	isotropie	$0,223$
	G_4	$0,117 \pm 0,011$	$0,598 \pm 0,023$		$0,037$
\leftrightarrow	G_2	$0,291 \pm 0,021$	$0,606 \pm 0,035$		$G_2 = 0,209$
	G_4	$0,130 \pm 0,011$	$0,560 \pm 0,018$	$0,52$	$G_4 = 0,116$
				$0,07$	$G_4 = 0,111$
				1	
				1	
λ_4^*/λ_2^*	—	$\sim 0,8 \pm 0,2$	—	—	$3,2$
				—	—
					$3,2$
Hauteur et largeur de la résonance de l'anisotropie autour de 0 Gauss	à 5,5°K, entre ± 700 Gauss $A \sim$ constante	—	—	$\hbar = 11,4\%$ $\Delta B_z \cong 7$ Gauss	$\hbar = 14,7\%$ $\Delta B_z \cong 36$ Gauss
Hauteur de la résonance de W(180°) et champ critique pour $B_z \neq 0$ Gauss	à $5,5^\circ\text{K}$: $\hbar \cong (2,3 \pm 0,9)\%$ à ~ 2700 Gauss	—	—	—	Anisotropie constante $A = 14,1\%$

dépend certainement de la température du cristal. Il est possible également que la durée de réorganisation des couches électroniques faisant suite au changement de charge du noyau ne soit pas négligeable par rapport à la durée de vie de l'état nucléaire intermédiaire, les états excités de l'ion Ho^{3+} entrant ainsi en ligne de compte. Une étude des transitions optiques succédant à ces différentes excitations pourrait donner de très utiles renseignements concernant ces phénomènes, leur durée et leur influence sur la perturbation de la corrélation.

En résumé, nous pensons pouvoir expliquer la perturbation de la corrélation observée par une interaction hyperfine essentiellement isotrope. La nature de cette dernière a probablement son origine dans les effets dûs au recul du noyau. Nous n'avons toutefois pas d'explication précise dans l'état actuel de ces recherches.

Remerciements

Nous tenons à exprimer ici notre vive gratitude envers Monsieur le Professeur J. P. Blaser pour le soutien qu'il a bien voulu accorder à ce travail.

Nous prions Monsieur le Professeur H. J. Leisi d'accepter l'expression de notre plus profonde reconnaissance. Il fut l'instigateur et, par ses nombreux conseils, le guide de ce travail. Sa bienveillance et, the last but not the least, sa foi en la physique nous permirent de le mener à bien.

Nos sincères remerciements vont également à Monsieur T. von Ledebur qui développa l'excellent cryostat à hélium, à Madame R. Keller de l'Institut de Physique de l'état solide de l'EPFZ et à Messieurs P. Wysling et H. R. Bösch de l'Université de Zürich pour leurs mesures de résonance paramagnétique effectuées sur nos échantillons.

Nous ne saurions oublier nos amis du groupe de Spectroscopie Nucléaire, et tout particulièrement Messieurs J. Brunner, F. Gygax, F. C. Röhmer, W. Rüegg, W. Schoeps et D. Taqqu, dont la collaboration fut mise souvent à dure épreuve.

Enfin, nous remercions Monsieur le Professeur M. C. Joshi de l'Université et de l'Institut Tata de Bombay de sa collaboration et de ses nombreux conseils durant son séjour à Zürich.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] R. J. ELLIOTT et K. W. H. STEVENS, Proc. Roy. Soc. A218, 553 (1953).
- [2] J. M. BAKER et B. BLEANEY, Proc. Roy. Soc. A245, 156 (1958).
- [3] H. A. KRAMERS, Proc. Acad. Sc. Amsterdam 33, 959 (1930).
- [4] H. J. LEISI, Habilitationsschrift, ETH Zürich, 1967, non publié.
- [5] G. S. BOGLE, H. J. DUFFUS et H. E. D. SCOVIL, Proc. Phys. Soc. A65, 760 (1952).
- [6] B. BLEANEY et H. E. D. SCOVIL, Proc. Phys. Soc. A64, 204 (1951).
- [7] R. J. ELLIOTT et K. W. H. STEVENS, Proc. Roy. Soc. A219, 387 (1953).
- [8] P. KIENLE, Rev. Mod. Phys. 36, 372 (1964).
- [9] J. M. BAKER et B. BLEANEY, Proc. Phys. Soc. A68, 1090 (1955).
- [10] H. J. LEISI, dans *Hyperfine Structure and Nuclear Radiation*, édité par E. MATTHIAS et D. A. SHIRLEY (North-Holland Publishing Co. 1968), p. 397.
- [11] H. J. LEISI, dans *Angular Correlations in Nuclear Disintegration*, édité par H. VAN KRUGTEN et B. VAN NOOIJEN (Rotterdam University Press 1971), p. 375.
- [12] H. J. LEISI et R. T. DECK, Phys. Rev. 129, 2117 (1963) et 131, 2840 (1963).
- [13] J. A. A. KETELAAR, Physica 4, 619 (1937).
- [14] D. R. FITZWATER et R. E. RUNDLE, Z. f. Krist. 112, 362 (1959).
- [15] R. L. HEATH, *Scintillation Spectroscopy*, AEC publ. n° IDO 16880-1 + 2.
- [16] M. J. L. YATES, dans *Alpha-Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy*, édité par K. SIEGBAHN (North-Holland Publishing Co. 1965), p. 1691.

- [17] H. DIRREN, T. VON LEDEBUR et H. J. LEISI, Helv. Phys. Acta **41**, 1287 (1968).
- [18] H. DIRREN et H. J. LEISI, dans *Angular Correlations in Nuclear Disintegration*, édité par H. VAN KRUGTEN et B. VAN NOOIJEN (Rotterdam University Press, 1971), p. 448.
- [19] H. DIRREN et M. C. JOSHI, Helv. Phys. Acta, **45**, 450 (1972).
- [20] P. WYSLING, Thèse de Doctorat, Université de Zürich, 1969, non publiée.
- [21] H. R. BÖSCH, Université de Zürich, communication privée.
- [22] Mme R. KELLER-BAUMANN, EPF Zürich, communication privée.
- [23] L. S. GOODMAN et K. SCHLÜPMANN, Z. f. Phys. **178**, 235 (1964).
- [24] H. J. LEISI, référence [10], p. 384.
- [25] E. MATTHIAS, S. S. ROSENBLUM et D. A. SHIRLEY, Phys. Rev. Letters **14**, 46 (1965).
- [26] C. SCHERER, Nucl. Phys. **A157**, 81 (1970).
- [27] M. BLUME, Nucl. Phys. **A167**, 81 (1971).
- [28] F. N. GYGAX, Thèse de Doctorat, EPF Zürich, 1971, non publiée.
- [29] A. ABRAGAM et R. V. POUND, Phys. Rev. **92**, 943 (1953).