



HAL
open science

Orientation nucléaire par pompage optique des isotopes impairs du mercure

Bernard Cagnac

► **To cite this version:**

Bernard Cagnac. Orientation nucléaire par pompage optique des isotopes impairs du mercure. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris, 1960. Français. NNT: . tel-00011795

HAL Id: tel-00011795

<https://theses.hal.science/tel-00011795>

Submitted on 8 Mar 2006

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSES

présentées

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

Pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences Physiques

par

Bernard CAGNAC

PREMIÈRE THÈSE

ORIENTATION NUCLEAIRE
PAR POMPAGE OPTIQUE
DES ISOTOPES IMPAIRS DU MERCURE

DEUXIÈME THÈSE

PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ

SOUTENUES LE DÉCEMBRE 1960 DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN

MM. Y. ROCARD, Président

A. KASTLER

P. JACQUINOT

J. BROSSEL

} *Examineurs*

THÈSES
présentées

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ

DE PARIS

pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences Physiques

par

Bernard CAGNAC

Première Thèse : ORIENTATION NUCLEAIRE PAR POMPAGE OPTIQUE
DES ISOTOPES IMPAIRS DU MERCURE.

Deuxième Thèse : Propositions données par la Faculté.

Soutenues le Décembre 1960 devant la Commission d'Examen :

JURY : M. Y. ROCARD, Président

MM. A. KASTLER)
P. JACQUINOT) Examineurs
J. BROSSEL)

- TABLE DES MATIERES -

<u>INTRODUCTION</u>	page 1
<u>PREMIER CHAPITRE - Les conditions du pompage optique.</u>	
I - Pompage optique par la raie 2537 \AA .	page 6
II - Les sources lumineuses.	page 9
III - Les expériences de balayage magnétique.	page 11
IV - Le montage expérimental.	page 15
V - Relation entre les signaux détectés et les populations.	page 18
VI - Evaluation de l'efficacité du pompage optique.	page 22
<u>DEUXIEME CHAPITRE - Mesure des moments nucléaires.</u>	
VII - Mesures préliminaires à fréquence fixe.	page 28
VIII - Contrôle du champ directeur H_0 par résonance de protons.	page 29
IX - Les bobines et le champ H_1 de radiofréquence.	page 31
X - Mesures en champ fixe.	page 33
XI - Les moments magnétiques nucléaires.	page 35
<u>TROISIEME CHAPITRE - Les méthodes d'étude de la relaxation.</u>	
XII - Les temps de relaxation et la méthode statique.	page 38
XIII - La méthode dynamique. Observation des transitoires de ^{199}Hg .	page 42
XIV - La méthode de calcul.	page 48
XV - Cas du ^{199}Hg (spin 1/2).	page 51
XVI - Cas du ^{201}Hg en alignement.	page 56
XVII - Cas du ^{201}Hg en orientation.	page 62
<u>QUATRIEME CHAPITRE - Les origines de la relaxation.</u>	
XVIII - Quelques contrôles des mesures de temps de relaxation.	page 64
XIX - Généralités sur les causes de relaxation.	page 70
XX - Les inhomogénéités spatiales.	page 74
XXI - Relaxation de ^{201}Hg .	page 77
XXII - Relaxation de ^{199}Hg .	page 81
<u>CONCLUSION</u>	page 86
<u>ANNEXE I</u>	page 88
<u>ANNEXE II</u>	page 90
<u>BIBLIOGRAPHIE</u>	
<u>FIGURES</u>	

Ce travail a été effectué au laboratoire de physique de l'E.N.S. durant les années 1957- 1960 sous la direction de Messieurs A. KASTLER et J. BROSSEL. Je les prie de trouver ici mes remerciements pour la confiance qu'ils m'ont accordée en me proposant ce sujet de thèse, et pour l'aide constante qu'ils m'ont apportée au cours de son étude.

Je remercie Monsieur Y. ROCARD, directeur du laboratoire, pour les facilités de travail que j'ai trouvées dans sa maison.

Je remercie tous les membres de l'équipe de résonance magnétique pour toutes les occasions où j'ai pu apprécier leur aide et leur amitié, et spécialement J.P. BARRAT et C. COHEN-TANNOUJJI pour les discussions fructueuses que nous avons eues.

Je remercie également les techniciens du laboratoire, dont les services aimables et compétents ont grandement facilité ma tâche.

Ce travail eût été impossible sans les échantillons enrichis d'isotopes de mercure qui nous ont été fournis par le service de séparation isotopique du Commissariat à l'Energie Atomique. Qu'il en soit ici remercié.

ORIENTATION NUCLEAIRE PAR POMPAGE OPTIQUE DES ISOTOPES

IMPAIRS DU MERCURE.

INTRODUCTION

Le travail présenté ici est une application de la méthode de pompage optique suggérée par Kastler en 1950 (1). Cette méthode permet d'étendre aux états fondamentaux des atomes, par orientation de leurs moments magnétiques, la méthode de double résonance de Brossel et Kastler (2), appliquée d'abord aux états excités par Brossel (3). La première application du pompage optique fut réalisée en 1952 au laboratoire de l'Ecole Normale Supérieure sur le cas du sodium (4). Elle se répandit ensuite dans de nombreux laboratoires étrangers où elle s'enrichit de nombreuses variantes (5). Mais elle n'avait été appliquée jusqu'ici qu'à des atomes alcalins, dont l'état fondamental est paramagnétique. Nous décrivons ici sa première application au cas d'atomes dont l'état fondamental est diamagnétique, mais qui possèdent un paramagnétisme nucléaire ($J = 0; F = I$); nous avons choisi comme exemple les isotopes impairs du mercure, ^{199}Hg de spin nucléaire $I = 1/2$ et ^{201}Hg de spin nucléaire $I = 3/2$ (état fondamental 6^1S_0). La méthode permet d'obtenir dans ce cas une orientation purement nucléaire.

La méthode de pompage optique a été souvent décrite (1)(6) : on irradie une vapeur dans la direction du champ magnétique directeur H_0 avec sa raie de résonance polarisée circulairement, σ^+ par exemple; les atomes du sous-niveau Zeeman m_F de l'état fonda-

mental passent au sous-niveau $m'_F = m_F + 1$ de l'état excité; en retombant spontanément à l'état fondamental, ils se répartissent entre les sous-niveaux m_F , $m_F + 1$, $m_F + 2$. Une part du moment angulaire des photons excitateurs se trouve ainsi transférée aux atomes; ceux-ci deviennent plus nombreux dans les sous-niveaux de grande valeur de m_F , c'est-à-dire que leurs moments magnétiques se trouvent partiellement orientés. Dans le cas où il y a plus de deux sous-niveaux ($F \gg 1$), l'irradiation en lumière naturelle suivant la direction du champ H_0 (lumière G) peut conduire, selon les probabilités de transition optique, à vider symétriquement les sous-niveaux de faible valeur absolue $|m_F|$ au profit des sous-niveaux de grande valeur absolue $|m_F|$, c'est-à-dire que les moments magnétiques se trouvent partiellement alignés (7).

On peut obtenir ainsi de grandes différences de populations entre les sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental, alors que, à l'équilibre thermique, la loi de Boltzmann conduit à des populations sensiblement égales (l'énergie Zeeman est négligeable devant kT). Les phénomènes de relaxation tendent évidemment à rétablir cet équilibre thermique, par désorientation des atomes, avec une constante de temps égale au temps de relaxation longitudinale T_1 ; et les différences de populations effectivement atteintes à l'état stationnaire résultent de la compétition entre ces phénomènes de relaxation et le pompage optique. Pour qu'elles soient importantes, il faut que le cycle de pompage se reproduise à des intervalles de temps assez courts, comparés à T_1 ; le temps moyen T_p séparant l'absorption de deux photons par le même atome (inversement proportionnel à l'intensité lumineuse) doit être du même ordre de grandeur ou plus court que T_1 (8).

L'irradiation lumineuse, qui sert à réaliser le pompage optique, joue également un second rôle, en permettant la détection des variations de populations. Le taux de polarisation (ou l'intensité) de la lumière de résonance optique réémise par la vapeur dépend en effet des populations relatives des sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental. Une résonance magnétique à saturation entre deux tels sous-niveaux tend à égaliser leurs populations; et le changement de taux de polarisation (ou d'intensité) de la lumière réémise permet de détecter simultanément cette résonance magnétique et l'orientation préalable de la vapeur.

Dans le cas particulier d'atomes diamagnétiques, le temps T_1 est un temps de relaxation nucléaire, qui doit être beaucoup plus long que les temps de relaxation électronique. On devait donc s'attendre à ce que l'orientation nucléaire fût plus facile à obtenir que l'orientation électronique. C'est la raison pour laquelle la méthode de pompage optique fut essayée pour la première fois par Brossel et Bitter (3)(9) précisément sur le mercure (isotope ^{199}Hg); mais en fait, cette expérience fut un échec, et elle fut suivie d'autres essais négatifs (10), alors qu'on réussissait à observer successivement l'orientation des vapeurs de tous les métaux alcalins (11). On était conduit à penser que la cause de ces échecs tenait au manque d'intensité de la source lumineuse pompante sur la raie 2537 \AA utilisée (T_p trop long).

Notre premier travail a été la mise au point de lampes à mercure émettant sur cette raie une forte intensité. Les résultats positifs ont immédiatement suivi, permettant d'observer dès 1958 l'alignement nucléaire de ^{201}Hg (12), puis l'orientation nucléaire de ^{201}Hg et ^{199}Hg (13). Nous décrivons d'abord dans le premier chapitre les caractéristiques de ces sources lumineuses, et les

conditions exactes dans lesquelles nous opérons le pompage optique; nous y calculons ensuite les signaux que notre méthode de détection permet de mesurer en fonction des variations des populations des sous-niveaux Zeeman, et les maxima que l'on peut attendre en fonction du rapport T_1/T_p pour ces variations de populations.

Dans le deuxième chapitre, nous décrivons comment les courbes de résonance magnétique nucléaire observées nous ont permis la mesure précise des moments magnétiques nucléaires de ^{201}Hg et ^{199}Hg ; et comment on en déduit l'existence d'anomalies de structure hyperfine importantes dans les niveaux 6^3P_1 et 6^3P_2 . Les taux d'orientation ou d'alignement mesurés ainsi que les largeurs de raie nous donnent déjà un ordre de grandeur des temps de relaxation, beaucoup plus longs pour ^{199}Hg que pour ^{201}Hg ; mais les études détaillées des formes de raie et de la relaxation sont données dans les chapitres suivants.

Dans le troisième chapitre, nous décrivons en détail les deux méthodes employées pour l'étude de la relaxation. La première, que nous appelons méthode statique, utilise de façon tout à fait classique les mesures des largeurs des courbes de résonance, et permet une mesure assez précise du temps de relaxation transversale T_2 . La seconde méthode, que nous appelons méthode dynamique, utilise l'observation des transitoires du pompage optique et de la résonance magnétique, et permet la mesure précise des deux temps de relaxation, longitudinale T_1 , et transversale T_2 ; l'utilisation de cette seconde méthode n'est facile que si les temps de relaxation sont assez longs, c'est-à-dire dans le cas de ^{199}Hg . Les formules données avec ces deux méthodes sont justifiées à la fin du troisième chapitre par les calculs détaillés de l'évolution

des populations sous l'action simultanée du champ de radiofréquence et de l'irradiation lumineuse; nous utilisons pour ces calculs le formalisme de la matrice densité.

Nous étudions enfin dans le quatrième chapitre les origines de la relaxation. Nous étudions d'abord le cas de ^{201}Hg qui s'avère le plus simple en première approximation grâce à l'existence d'un mécanisme prédominant lié au moment quadropolaire de ^{201}Hg . Dans le cas de ^{199}Hg , la relaxation est beaucoup plus lente, mais semble due à divers mécanismes dont les effets sont du même ordre de grandeur, et qu'il n'est pas facile de distinguer; cette étude se poursuit actuellement au laboratoire.

P R E M I E R C H A P I T R E

LES CONDITIONS DU POMPAGE OPTIQUE.

I - Pompage optique par la raie 2537 Å.

Le spectre du mercure comporte deux raies de résonance situées dans l'ultraviolet; elles relient directement l'état fondamental 6^1S_0 aux états excités 6^1P_1 (raie 1850 Å) et 6^3P_1 (raie 2537 Å). La raie 1850 Å est fortement absorbée par tous les matériaux couramment employés dans le proche ultraviolet, en particulier en ce qui concerne l'optique de polarisation; elle ne peut au surplus se propager que dans une atmosphère d'azote car elle est absorbée par l'oxygène de l'air, qu'elle transforme en ozone par réaction photochimique. C'est la raison pour laquelle nous avons choisi, comme dans les précédentes tentatives d'utiliser la raie 2537 Å.

On peut ici faire une remarque : le temps moyen T_p entre l'absorption de deux photons est inversement proportionnel à la probabilité d'absorption d'Einstein, et se trouve être, toutes choses égales d'ailleurs, proportionnel à la durée de vie de l'état excité (14). Or le niveau excité 6^3P_1 de la raie 2537 Å a une durée de vie relativement longue de $1,2 \cdot 10^{-7}$ seconde (15). Elle est environ 10 fois plus longue que celle de l'état excité de la raie D du sodium, et 100 fois plus longue que celle de l'état excité 6^1P_1 de la raie 1850 Å (16). On comprend combien il est indispensable d'obtenir de très fortes intensités lumineuses sur la raie 2537 Å pour que le pompage optique soit efficace.

On trouvera sur la figure 1 la structure hyperfine de cette raie d'après les résultats de plusieurs auteurs (17). Nous y avons fait figurer également quelques composantes des deux isomères radioactifs ^{197}Hg de spin 1/2 et $^{197*}\text{Hg}$ de spin 13/2 (18). Dans l'état fondamental 6^1S_0 , le moment cinétique total F est égal au spin

nucléaire I, ce qui conduit pour ^{199}Hg à un niveau $F = I = 1/2$ et pour ^{201}Hg à un niveau $F = I = 3/2$. Dans l'état excité 6^3P_1 nous avons deux niveaux hyperfins $F = 1/2$ et $3/2$ pour ^{199}Hg , et trois niveaux $F = 1/2, 3/2$ et $5/2$ pour ^{201}Hg . C'est pourquoi nous observons dans le spectre de la raie 2537 deux composantes pour ^{199}Hg et trois composantes pour ^{201}Hg ; nous les désignons dans la suite par la valeur de F du niveau correspondant à l'état excité 6^3P_1 . (Rappelons l'équivalence avec les notations de Schüler et Keyston : $199 - 3/2 = A$; $199 - 1/2 = B$; $201 - 5/2 = a$; $201 - 3/2 = b$; $201 - 1/2 = c$).

Les raies des divers isotopes pairs entre elles sont bien résolues; mais on remarque des coïncidences entre certaines raies d'isotopes pairs et certaines composantes des isotopes impairs. La coïncidence est presque parfaite entre la composante $199 - 1/2$ et la raie du ^{204}Hg , et elle peut être utilisée pour l'excitation sélective de la composante $199 - 1/2$ avec une lampe à ^{204}Hg . Les composantes $201 - 5/2$ et $201 - 3/2$ sont seulement voisines des raies respectives du ^{204}Hg et du ^{198}Hg , à des distances de l'ordre de grandeur de la largeur Doppler. Ces voisinages nous suggèrent l'emploi de lampes à isotopes pairs séparés, ^{204}Hg et ^{198}Hg , permettant d'obtenir un pompage optique plus efficace sur ^{201}Hg grâce à l'un ou l'autre des deux processus suivants :

a) Si la largeur Doppler de la raie d'émission de la lampe est assez fine, il doit suffire d'appliquer à la lampe un champ magnétique pas trop élevé pour séparer en fréquence les deux composantes σ^+ et σ^- et amener une seule d'entre elles à coïncider avec la composante voisine de ^{201}Hg . Cette méthode de balayage magnétique (décrite au paragraphe III) permettrait

d'orienter ^{201}Hg en irradiation σ^+ ou σ^- sans utiliser de polariseur, c'est-à-dire avec un gain d'un facteur 10 environ sur l'intensité lumineuse.

b) Si la largeur Doppler de la raie d'émission est au contraire assez large, on doit, sans champ magnétique appliqué à la lampe, exciter avec un bon rendement la composante voisine de ^{201}Hg . Cela permettrait d'obtenir un alignement efficace de ^{201}Hg par excitation sélective en lumière naturelle de la composante $201 - 5/2$ ou $201 - 3/2$, c'est-à-dire en éliminant la composante $201 - 1/2$ qui a une action opposée aux deux autres (elle tend au contraire à vider les sous-niveaux $m_I = \pm 3/2$ au profit des sous-niveaux $m_I = \pm 1/2$ (cf paragraphe VI et tableau II).

Dans le champ magnétique directeur H_0 , on observe la décomposition Zeeman des niveaux précédemment cités; les séparations dans l'état fondamental des 2 sous-niveaux m_I de ^{199}Hg et des 4 sous-niveaux m_I de ^{201}Hg sont dues aux moments magnétiques nucléaires de ces isotopes, et sont très petites par rapport aux séparations des sous-niveaux m_F de l'état excité. La décomposition qui en résulte pour la raie 2537 \AA est schématisée par les diagrammes de la figure 1. Les flèches verticales représentent les transitions $\Delta m_F = 0$ en lumière de polarisation π , rectiligne parallèle à H_0 ; les flèches inclinées vers le haut et la droite représentent les transitions $\Delta m_F = +1$ en polarisation σ^+ , circulaire dans le sens du courant magnétisant; les flèches inclinées vers le haut et la gauche représentent les transitions $\Delta m_F = -1$ en polarisation σ^- , circulaire de sens opposé. Les nombres figurant sur les flèches sont les probabilités de transition optique calculées à l'aide des formules de Hill et Inglis (19).

Ces diagrammes permettent de se représenter de façon plus imagée l'action du pompage optique décrite dans l'introduction : en orientation, l'irradiation σ^+ , par exemple, utilise les transitions $\Delta m_F = +1$ représentées par les flèches inclinées vers le haut et la droite; en alignement, l'irradiation en lumière σ utilise les flèches inclinées dans les deux sens, à l'exclusion des flèches verticales. Les effets de ces deux processus seront calculés en détail dans le paragraphe VI.

II - Les sources lumineuses.

Nous avons expliqué au paragraphe précédent l'intérêt qu'il y a à utiliser des lampes à isotopes séparés 204 ou 198. Les échantillons d'isotopes enrichis utilisés étaient d'origine américaine et d'origine française. Ces derniers nous ont été fournis par le service de séparation isotopique du Commissariat à l'Energie Atomique, dont le séparateur à double focalisation (20) permet d'obtenir des taux d'enrichissement élevés, dépassant 90^oo.

Les faibles quantités dont nous disposions nous ont conduits à porter notre choix sur des lampes sans électrode pour éviter l'absorption du mercure sur les parties métalliques. Il semble en outre que le mercure disparaît d'autant moins rapidement de la décharge, par adsorption sur les parois, que la fréquence utilisée est plus grande (21). Nous avons utilisé comme source H.F. un magnétron continu délivrant 100 Watts à 2400 Mc/s; il est monté dans un générateur commercial (Microtherm de la Raytheon Manufacturing C^o) dont l'antenne est bien adaptée à l'excitation de nos lampes.

Les lampes sont elles-mêmes en quartz "Ultrasil" (Heraeus). Elles ont la forme de disques plats de 1 à 2 mm d'épaisseur intérieure et de 20 à 40 mm de diamètre. Cette faible épaisseur permet d'éviter l'autoabsorption et le renversement de la partie centrale de la raie 2537 Å; elle permet en outre d'éviter que le volume de vapeur à exciter ne soit trop grand, malgré la grande surface de la lampe. Il est en effet important que la décharge emplisse le volume entier de la lampe pour qu'elle ait un fonctionnement stable; dans le cas contraire, il se produit des oscillations du plasma et la formation de points froids, où le mercure vient se condenser peu à peu, disparaissant ainsi de la décharge.

Les isotopes nous parviennent sous forme d'amalgame; il s'agit le plus souvent de la cible en or telle qu'elle est retirée du spectrographe de masse. L'amalgame est chauffé sous vide à 700 - 800°C de façon à faire distiller le mercure dans la lampe, qui est finalement remplie d'argon à une pression de quelques millimètres. Les premières heures de fonctionnement de la lampe sont toujours délicates quand elle ne contient qu'un milligramme de mercure. On remédie à cet inconvénient par l'opération suivante effectuée sur le banc de pompage avant le remplissage final : étuvage sous vide à 450°C puis fonctionnement de la lampe remplie d'argon pur pendant plusieurs heures. En tout état de cause, il est nécessaire de "former" la lampe dans ses premières heures de fonctionnement; mais ensuite, ce dernier devient très régulier, et une de ces lampes fonctionne encore très bien après deux ans de service intensif (bien que sa brillance ait un peu diminué).

Si la lampe devient trop chaude, la raie 2537 Å émise se renverse par auto-absorption et l'intensité de fluorescence observée dans ces conditions baisse considérablement. Il est nécessaire de

refroidir la lampe sur sa face arrière par un courant d'air, dont on règle le débit de façon à obtenir le signal de résonance optique optimum. Nous travaillons couramment avec une puissance H.F. d'environ 80 Watts et un débit d'air assez fort, parce que ces conditions semblent assurer une meilleure stabilité; mais on peut tirer de la lampe une intensité lumineuse aussi importante avec une puissance H.F. de 40 Watts seulement et un débit d'air plus faible. Le magnétron étant très sensible aux variations de la tension d'alimentation et de l'impédance de charge H.F., nous avons adjoint à son alimentation un dispositif stabilisateur de courant. Ce sont cependant les instabilités de l'intensité lumineuse qui ont limité en règle générale la précision de nos mesures.

III - Les expériences de balayage magnétique.

Nous avons déjà signalé au paragraphe I l'intérêt qu'il y aurait à pouvoir irradier la vapeur en lumière polarisée circulairement σ^+ ou σ^- sans utiliser de polariseurs, parce que nous ne disposons dans l'ultra-violet que de prismes de Glazebrook ou de Nicol, dont l'absorption et la faible ouverture réduisent l'intensité lumineuse par un facteur d'environ 10. Nous avons essayé à cet usage la méthode de balayage magnétique, employée déjà par d'autres expérimentateurs (22) : elle consiste à exciter les diverses composantes hyperfines de la raie 2537 Å à l'aide de la composante Zeeman σ^+ (ou σ^-) d'un isotope pair, déplacée en fréquence et séparée de la composante inverse σ^- (ou σ^+), en soumettant à un champ magnétique intense H_g la source lumineuse, remplie de cet isotope pair.

Pour utiliser directement la polarisation circulaire de cette composante déplacée en fréquence, il faut observer la source dans l'axe du champ H_s ; ce dernier ne peut donc être produit, si l'on veut un faisceau lumineux assez ouvert, que par des bobines sans fer. Les seules dont nous disposions permettaient d'obtenir au maximum 1000 Gauss, c'est-à-dire de déplacer les composantes σ^+ ou σ^- au maximum de 2100 Mc/s ou $70 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$. Nos essais de balayage magnétique se trouvaient donc limités aux couples de composantes voisines déjà signalés : 204 et 201 - 5/2, ou 198 et 201 - 3/2. Leurs intervalles ne sont pas connus avec une grande précision, mais seraient de l'ordre de 800 Mc/s et 650 Mc/s respectivement. La largeur Doppler calculée pour la raie 2537 Å dans une vapeur à température ordinaire est de 1000 Mc/s; et si la source lumineuse n'émet pas une raie beaucoup plus large, il est possible que l'on puisse séparer suffisamment les composantes σ^+ et σ^- .

Pour tester le procédé, nous avons utilisé le montage schématisé sur la figure 2. La source à ^{204}Hg ou ^{198}Hg est placée au centre des bobines fournissant le champ H_s ; elle irradie parallèlement à H_s une cellule contenant la vapeur de ^{201}Hg , soumise à un faible champ H_o parallèle à H_s . Un analyseur circulaire (lame quart d'onde suivie d'un Glazebrook) est placé sur le trajet du faisceau d'irradiation; il ne laisse passer que la composante σ^+ (ou la composante σ^-) émise par la lampe, dont la fréquence est augmentée (ou diminuée) proportionnellement à H_s . On mesure avec un photomultiplicateur la lumière de résonance optique I (H_s) réémise par la vapeur à angle droit de l'irradiation. On obtiendra le signal maximum quand la composante sélectionnée à l'irradiation coïncidera en fréquence avec la composante voisine du ^{201}Hg .

(Remarque : La polarisation de la lumière est transformée par l'analyseur et la cellule reçoit de toute façon de la lumière polarisée rectiligne qui est absorbée par la vapeur de ^{201}Hg comme un mélange à parts égales des deux polarisations σ^+ et σ^- ; mais comme les probabilités de transition optique sont symétriques en σ^+ et en σ^- , l'absorption n'est pas modifiée par ce changement de polarisation).

La figure 3 donne les résultats obtenus respectivement avec une lampe à ^{204}Hg et une lampe à ^{198}Hg . En ordonnée sont portées les variations relatives de l'intensité réémise, normée à la valeur 1 en champ H_s nul : $I(H_s)/I(0)$. En abscisse, le champ H_s est porté vers la gauche lorsque l'analyseur sélectionne la composante σ^+ de la lampe; il est porté vers la droite lorsque l'analyseur sélectionne la composante σ^- de la lampe (après rotation de 90° de la lame quart d'onde). Les deux courbes se raccordent en champ nul et donnent une image de la forme de la raie émise par la lampe sur l'échelle des fréquences. (Pour une interprétation exacte, voir annexe I).

Dans chaque cas, sont représentées deux courbes correspondant à des régimes de fonctionnement différents de la lampe. La courbe la plus étroite correspond au refroidissement maximum de la lampe (au-delà la décharge devient instable), lorsque l'intensité $I(0)$ émise est faible. La courbe la plus large correspond à un refroidissement moindre; l'intensité $I(0)$ est dans ce cas deux fois plus élevée, mais elle reste encore très inférieure au maximum d'intensité que l'on peut obtenir en réglant convenablement le refroidissement de la lampe. La précision des mesures est limitée par deux effets : a) l'échantillon de ^{201}Hg utilisé lors de cette expérience n'était enrichi qu'à 70% et contenait encore 1% de ^{204}Hg , 1,5% de ^{198}Hg et 3% de ^{199}Hg , ce qui peut déformer légèrement la courbe tracée. b) le régime de décharge dans la lampe est sensible au

champ H_s ; et les corrections effectuées en conséquence laissent une certaine marge d'erreur.

Voici les conclusions de ces mesures :

- a) Les séparations des composantes 204 et 201 - 5/2 d'une part, 198 et 201 - 3/2 d'autre part sont presque égales et de l'ordre de 550 Mc/s ou $18.10^{-3} \text{ cm}^{-1}$, un peu inférieures aux valeurs généralement admises (17).

- b) La largeur Doppler de la raie d'émission vaut au minimum 1600 Mc/s (cf annexe I) dans les conditions de refroidissement maximum, où la lampe est peu brillante. Elle est très supérieure à cette valeur dans les conditions de refroidissement qui assurent le maximum d'intensité de la lampe.

- c) L'excitation sélective des composantes 201 - 5/2 ou 201 - 3/2 par des lampes à ^{204}Hg ou ^{198}Hg est toujours possible avec un excellent rendement en champ H_s nul.

- d) La séparation magnétique des composantes σ^+ et σ^- sans dispositif de polarisation n'est pas utilisable en pratique. La séparation n'est en effet possible qu'avec une lampe très refroidie, c'est-à-dire au prix d'une perte considérable sur l'intensité lumineuse de la composante utile. Et même dans ce cas, à l'optimum de séparation ($H_s \sim 500$ Gauss), ^{201}Hg absorbe encore 20% de la composante circulaire à éliminer (Le mélange des deux composantes σ^+ et σ^- en quantités inégales rend très délicate l'interprétation précise des courbes de résonance magnétique observées). Nous avons donc renoncé à utiliser le balayage magnétique dans nos études ultérieures sur ^{201}Hg .

- e) Cette méthode de séparation doit au contraire se révéler favorable pour orienter les deux isomères radioactifs ^{197}Hg et $^{197^*}\text{Hg}$, en excitant les composantes 197 - 1/2 et $^{197^*}$ - 15/2 avec une lampe à ^{204}Hg soumise à un champ H_s de 1000 à 1500 Gauss.

IV - Le montage expérimental.

La figure 4 montre le schéma du montage utilisé pour réaliser le pompage optique. Le champ H_0 appliqué à la vapeur étudiée est produit par deux bobines de 72 cm de diamètre moyen placées en position d'Helmholtz. Leur écartement et leur parallélisme sont réglés à l'aide de quatre tiges filetées sur lesquelles elles sont fixées rigidement par des écrous. Ayant réglé le parallélisme des bobines, on peut déplacer une des bobines dans son plan, horizontalement et verticalement, de manière à amener leurs axes à coïncider exactement. Ces réglages sont effectués par approximations successives en contrôlant la valeur du champ magnétique en différents points autour du centre à l'aide d'une résonance de protons; ils permettent d'obtenir une excellente homogénéité (cf paragraphe VIII).

Chaque bobine contient environ 8000 tours et a une résistance un peu supérieure à 500 Ohms. Elles sont alimentées en série par une alimentation à haute stabilité Varian. Le champ produit au centre du système est d'environ 210 Gauss/Ampère, et peut monter à près de 400 Gauss lorsqu'on utilise la puissance maximum de l'alimentation (2000 V, 2 Ampères). Les bobines sont orientées de façon que leur axe coïncide avec la direction de la composante horizontale du champ terrestre; nous avons toujours utilisé des champs H_0 assez forts pour qu'il ne soit pas utile de compenser la composante verticale du champ terrestre.

A l'intérieur de ce système de bobines principal se trouvent encore une paire de bobines de même axe, produisant le champ de balayage alternatif nécessaire à l'observation de la résonance de protons (cf paragraphe VIII), et une paire de bobines d'axe vertical, servant à produire le champ de radiofréquence H_1 (cf paragraphe IX).

Au centre géométrique des bobines est placée la cellule contenant la vapeur de l'isotope étudié. Les cellules sont en quartz "Ultrasil" (Heraeus) et sont de forme cubique; nous utilisons deux dimensions : 2 cm et 4 cm d'arête. Au centre de l'une des six faces est soudé le queusot, tube mince d'environ 30 cm de long, dont l'extrémité est maintenue à température fixe t (-30°C à 0°C), et où se condense la goutte de mercure. Le thermostat est constitué par un vase Dewar traversé par un courant d'air refroidi par barbotage préalable dans l'air liquide; la soupape d'arrivée de cet air est commandée par un thermomètre à contact, par l'intermédiaire d'un relais à thyatron. Nous donnons dans le tableau ci-dessous les valeurs calculées (23) du nombre d'atomes de mercure par cm^3 , N , dans une cellule à température ordinaire en équilibre avec la goutte liquide à température t dans le queusot.

t en $^{\circ}\text{C}$	-35°	-30°	-25°	-20°	-15°	-10°	-5°	0°	$+5^{\circ}$	$+10^{\circ}$
N en 10^{+12} atomes/ cm^3	0,08	0,17	0,34	0,63	1,16	2,09	3,60	6,25	10,0	16,3

L'irradiation lumineuse se fait suivant l'axe du champ H_0 . L'image de la lampe est formée sur la cellule à l'aide de deux lentilles en silice fondue de grande ouverture (focale 20 cm, diamètre 12 cm). On peut ainsi concentrer sur la cellule un flux lumineux important, pour aligner ^{201}Hg . Si l'on cherche à produire une orientation nucléaire, il faut interposer sur le faisceau d'irradiation un prisme polariseur (Glazebrook collé à la glycérine, ou Nicol collé au glucose cristal) suivi d'une lame quart d'onde (lame $(2n + 1) \lambda / 4$ en quartz, taillée par Madame Devaux-Morin). La réduction d'intensité lumineuse qui en résulte, par absorption et réduction de l'ouverture du faisceau, atteint un facteur d'environ 10.

La détection de l'orientation ou de l'alignement peut se faire en mesurant les variations de l'intensité lumineuse transmise à travers la cellule. Mais nous n'avons pas utilisé cette méthode pour les deux raisons suivantes : a) La largeur de la raie émise par la lampe excède de beaucoup la largeur Doppler d'absorption dans la cellule (cf paragraphe III); et il est pratiquement impossible d'éliminer le groupe très intense des raies du mercure au voisinage de 3600 \AA - b) Pour observer une absorption notable, il faut admettre dans la cellule une densité de vapeur relativement forte, ce qui oblige à tenir compte de la loi exponentielle d'absorption. Et les signaux observés ne sont plus linéaires par rapport aux populations des sous-niveaux Zeeman, si leurs variations sont importantes. Notons en outre que la diffusion multiple (15) doit jouer aux fortes densités de vapeur un rôle appréciable dont l'étude reste à faire.

Nous avons donc choisi de travailler à faible densité de la vapeur de mercure dans la cellule de résonance (queusot à $t = -20^{\circ}\text{C}$ ou -30°C), et d'utiliser pour la détection la lumière de résonance optique réémise par la vapeur à angle droit du faisceau d'irradiation. On mesure les variations soit de son intensité soit de son degré de polarisation lorsqu'une résonance magnétique à saturation rétablit entre les sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental l'égalité des populations. Dans le cas de l'excitation sélective de la composante hyperfine $199 - 1/2$ en polarisation σ^+ par une lampe à ^{204}Hg par exemple, on ne met en jeu qu'un seul sous-niveau de l'état excité et la lumière réémise est toujours complètement dépolarisée; la détection se fait en mesurant avec un photomultiplicateur l'intensité de la lumière réémise, qui est proportionnelle à la population du sous-niveau $m_I = -1/2$. Cette méthode de détection est

simple, mais a l'inconvénient d'être très sensible aux fluctuations de la source lumineuse.

Dans les études sur ^{201}Hg excité par des lampes à ^{204}Hg ou ^{198}Hg , nous aurions pu utiliser également cette simple mesure d'intensité. Mais il est préférable de mesurer le degré de polarisation de la lumière réémise par la méthode différentielle classique (3)(4), qui permet d'atténuer les effets des fluctuations de la lampe. Pour cette mesure on utilise deux bancs d'optique identiques perpendiculaires à l'axe d'irradiation de part et d'autre de la cellule : une lentille en silice fondue (non dépolarisante) forme l'image de la cellule sur la cathode d'un photomultiplicateur RCA 1P28, à travers un prisme de Glazebrook. Les deux Glazebrook, de part et d'autre, sont orientés de façon à isoler l'un la vibration π parallèle à H_0 , l'autre la vibration σ^- perpendiculaire à H_0 . Les signaux I_π et I_σ mesurés par les deux photomultiplicateurs sont opposés dans un pont de résistances schématisé sur la figure 4. Si le pont est équilibré pour un certain état des populations dénoté par l'indice zéro, le courant mesuré ensuite dans le galvanomètre est proportionnel à la quantité :

$$(IV-1) \quad P = \frac{I_\pi}{I_{\pi_0}} - \frac{I_\sigma}{I_{\sigma_0}} = \frac{\Delta I_\pi}{I_{\pi_0}} - \frac{\Delta I_\sigma}{I_{\sigma_0}}$$

V - Relation entre les signaux détectés et les populations.

Les signaux fournis par notre méthode de détection (variations de l'intensité ou du degré de polarisation P) sont en relation avec les variations des populations X_m des sous-niveaux Zeeman m de

l'état fondamental sous l'action de la résonance magnétique. Il est important de connaître exactement cette relation pour vérifier l'ampleur de ces effets. Cette relation nous permettra à partir des signaux observés de calculer les variations des populations qui se produisent, lorsque la résonance magnétique à saturation égalise les populations d'équilibre atteintes par le pompage optique.

Cette relation est également nécessaire, en général pour calculer la forme des signaux de résonance magnétique observés à partir des calculs d'évolution des populations sous l'action du champ de radiofréquence (analogues à ceux de la fin du troisième chapitre). Mais ce problème ne se pose pour nous que dans le cas de l'orientation de ^{201}Hg . En effet, dans le cas de l'alignement de ^{201}Hg (grâce à la symétrie entre les sous-niveaux de même valeur absolue $|m|$), et dans le cas de ^{199}Hg les populations ne dépendent que d'une seule variable indépendante; et, si nous travaillons à des densités de vapeur assez faibles, nous savons que les signaux observés sont des fonctions linéaires des populations; les variations des signaux sont donc dans ces deux cas, proportionnelles aux variations de cette unique variable.

Le calcul se fait à partir des probabilités de transition optique. Nous appelons $A_m^{F,m'}$ celle qui correspond à la transition entre le sous-niveau m de l'état fondamental et le sous-niveau (F, m') de l'état excité. Nous les supposons normées en sorte que $\sum_F A_m^{F,m'} = \sum_m A_m^{F,m'} = 1$, c'est-à-dire qu'on les obtient en divisant par 30 les nombres indiqués sur les schémas de la figure 1. Soit $\Phi(\nu) \cdot d\nu$ le nombre de photons par cm^2 et par seconde arrivant sur la cellule avec la polarisation σ^+ et dans la bande de fréquence comprise entre ν et $\nu + d\nu$. Dans les conditions normales d'utilisation, nos lampes émettent des raies beaucoup plus larges

que la raie d'absorption dans la cellule (cf paragraphe III); nous pouvons donc supposer $\Phi(\nu)$ constant sur toute la bande de fréquence où une composante hyperfine donnée présente une absorption notable. Si de plus, le nombre d'atomes de mercure par cm^3 N est suffisamment faible (pour que la loi exponentielle d'absorption soit assimilable à une loi linéaire), on démontre à partir de la théorie du rayonnement d'Einstein (14) que le nombre de photons absorbés en 1 seconde par 1 cm^3 de vapeur dans la transition $m \rightarrow (F, m' = m + 1)$ est :

$$(V-2) \quad \frac{3\lambda^2}{8\pi\tau} \Phi N_m A_m^{F,m+1} = \frac{3\lambda^2}{8\pi\tau} \Phi \frac{N}{2I+1} X_m A_m^{F,m+1}$$

λ est la longueur d'onde de la raie et τ la durée de vie de l'état excité (15); le facteur 3 représente le rapport g_2/g_1 des poids statistiques de l'état excité et de l'état fondamental pour la raie 2537 Å. N_m est le nombre par cm^3 d'atomes occupant le sous-niveau m ; nous appelons populations de ces sous-niveaux les quantités X_m proportionnelles aux nombres N_m , mais indépendantes de la densité de vapeur N , et qui vérifient l'équation de normalisation $\sum_m X_m = 2I + 1$; c'est-à-dire qu'à l'équilibre thermique $X_m = 1$ pour tout m . (Rappelons que les différences d'énergie Zeeman sont négligeables devant kT).

La formule (V-2) nous donne le nombre d'atomes qui ont été portés au sous-niveau $(F, m+1)$ de l'état excité par seconde et par cm^3 de vapeur. Ces atomes sont retombés à l'état fondamental en émettant de la lumière σ^+ , π et σ^- proportionnellement aux quantités $A_m^{F,m+1}$, $A_{m+1}^{F,m+1}$ et $A_{m+2}^{F,m+1}$. En faisant la somme des contributions de tous les sous-niveaux $(F, m+1)$ de l'état excité hyperfin F , on obtient les nombres de photons réémis en 1 seconde par 1 cm^3 de vapeur dans les diverses polarisations (rappelons que nous supposons l'irradiation en σ^+) :

$$I_{\pi} = \frac{3\lambda^2}{8\pi\tau} \Phi \frac{N}{2I+1} \sum_m X_m \cdot A_m^{F,m+1} \cdot A_{m+1}^{F,m+1}$$

(V-3)

$$I_{\sigma} = \frac{I_{\sigma^+} + I_{\sigma^-}}{2} = \frac{3\lambda^2}{8\pi\tau} \Phi \frac{N}{2I+1} \sum_m X_m \cdot A_m^{F,m+1} \frac{A_m^{F,m+1} + A_{m+2}^{F,m+1}}{2}$$

Dans le cas d'une irradiation du type "broad line", c'est-à-dire d'une excitation simultanée des diverses composantes hyperfines avec la même intensité Φ , il suffit d'étendre la sommation de ces formules aux diverses valeurs de F. Dans le cas de l'irradiation σ , en lumière naturelle dans l'axe du champ H_0 , il faut ajouter aux termes donnés en (V-3) les contributions calculées de manière symétrique pour l'irradiation en σ^- .

Les résultats de ces calculs sont donnés à la fin de ce chapitre, dans les tableaux I et II (colonnes 5 à 9) pour les deux cas d'orientation en σ^+ de ^{199}Hg et d'alignement de ^{201}Hg , et dans le tableau III (colonnes 4 et 5) pour le cas d'orientation en σ^+ de ^{201}Hg . A l'intérieur de chacun de ces trois cas, nous calculons séparément, à Φ constant, l'excitation sélective de chaque composante hyperfine et l'excitation "broad line"; les intensités I_{π} et I_{σ} sont données à un facteur de proportionnalité près, qui est le même à l'intérieur de chaque cas. Pour alléger la présentation, nous adoptons pour les populations les notations indiquées sur la figure 1 et qui nous serviront dans les calculs du troisième chapitre :

$$\begin{array}{l} \text{pour } ^{199}\text{Hg} \quad X_{+1/2} = \alpha \quad X_{-1/2} = \beta \\ \text{pour } ^{201}\text{Hg} \quad X_{+3/2} = \alpha \quad X_{+1/2} = \beta \quad X_{-1/2} = \gamma \quad X_{-3/2} = \eta \end{array}$$

Dans le cas d'alignement de ^{201}Hg , la symétrie entre les sous-niveaux $\pm m$ permet de calculer I_{π} et I_{σ} (colonnes 5 et 6 du tableau II) en fonction de 2 variables seulement $\alpha = \eta$ et $\beta = \gamma$. Nous donnons également dans les colonnes 7 et 8 des tableaux I et II les variations relatives de I_{π} et I_{σ} en fonction des variations des populations qui seront provo-

quées par la résonance magnétique : dans le cas d'orientation de ^{199}Hg (tableau I) $\Delta\beta = -\Delta\alpha$; dans le cas d'alignement de ^{201}Hg (tableau II) $\Delta\beta = \Delta\gamma = -\Delta\alpha = -\Delta\eta$.

Pour simplifier le calcul de ces variations, et celui du signal de polarisation $P = \frac{\Delta I_{\pi}}{I_{\pi_0}} - \frac{\Delta I_{\sigma}}{I_{\sigma_0}}$ (colonne 9 des tableaux I et II; colonne 5 du tableau III), nous supposons que l'équilibre du pont (état 0) est réglé à l'équilibre thermique de la vapeur (populations toutes égales). Ceci n'est pas vrai dans la pratique puisque en général nous équilibrons le pont de résistances sur la vapeur orientée et observons le déséquilibre provoqué par la résonance magnétique; mais tant que les variations des populations restent faibles, ce calcul constitue une très bonne approximation.

On vérifie sur ces tableaux que la mesure du taux de polarisation ne peut jamais servir à la détection lorsqu'on excite sélectivement un état excité hyperfin $F = 1/2$. On voit aussi que, dans le cas du ^{201}Hg , une lampe à ^{204}Hg excitant sélectivement le niveau $5/2$ doit fournir tant en orientation qu'en alignement les signaux les plus importants pour la même variation des populations.

VI - Evaluation de l'efficacité du pompage optique.

Nous nous proposons, dans ce paragraphe, d'analyser en détail l'action du pompage optique pour comparer son efficacité dans les différents cas d'excitation optique. A cet effet, nous voulons calculer ici, indépendamment de tout calcul de résonance magnétique, les populations d'équilibre qu'il permet d'atteindre. Nous avons déjà dit dans l'introduction que ces populations d'équilibre résultent de la compétition entre le pompage optique et la relaxation désorientante; elles dépendent du rapport T_1/T_p du temps de relaxation longitudinale T_1 au temps moyen T_p entre l'absorption de deux photons successifs par le même

atome. Si nous calculons les populations en fonction de ce rapport T_1/T_p , nous pourrions inversement calculer le rapport à partir des signaux observés.

Ce temps T_p nécessite une définition plus précise. En effet, dans le cas où l'on excite les atomes sélectivement avec une seule composante hyperfine, la probabilité $1/T_m$ par unité de temps pour que les atomes du sous-niveau m de l'état fondamental absorbent un photon dépend de m . Nous introduisons alors $1/T_p$ comme la moyenne de ces probabilités :

$$(VI-4) \quad \frac{1}{T_p} = \frac{1}{2I + 1} \sum_m \frac{1}{T_m}$$

On obtient $1/T_m$ en divisant par le nombre d'atomes absorbants N_m le nombre de photons absorbés par seconde dans 1 cm^3 de vapeur, soit d'après (V-2) dans le cas d'une irradiation en σ^+ avec une seule composante hyperfine :

$$(VI-5) \quad \frac{1}{T_m} = \frac{3\lambda^2}{8\pi\tau} \Phi A_m^{F,m+1} \quad \text{d'où} \quad \frac{1}{T_p} = \frac{3\lambda^2}{8\pi\tau} \Phi \frac{\sum_m A_m^{F,m+1}}{2I + 1}$$

On en déduit facilement la formule valable dans les cas d'irradiation avec la polarisation σ^- ou avec les deux polarisations simultanées σ^+ et σ^- . Dans le cas de l'excitation " broad line ", il faut dans (VI-5) faire la somme $\sum_F A_m^{F,m+1}$ qui est égale à 1, en sorte que T_m est, dans ce cas, indépendant de m :

$$(VI-6) \quad \frac{1}{T_m} = \frac{1}{T_p} = \frac{3\lambda^2}{8\pi\tau} \Phi \quad (\text{en "broad line"})$$

La probabilité $1/T_p$ ainsi définie est le paramètre important dans le calcul de la résonance magnétique (cf troisième chapitre); mais elle présente l'inconvénient de ne pas représenter de façon univoque l'intensité lumineuse Φ , puisque le coefficient de proportionnalité dépend de la composante hyperfine utilisée. Dans le présent calcul, s'introduit de

manière beaucoup plus naturelle, à la place du paramètre T_1/T_p , un autre paramètre qui représente mieux l'intensité lumineuse :

$$(VI-7) \quad r = \frac{3\lambda^2}{8\pi\tau} \Phi \cdot T_1 \left\{ \begin{array}{l} = \frac{T_1}{T_p} \quad \text{en excitation "broad line"}. \\ = \frac{T_1}{T_p} \cdot \frac{2I + 1}{\sum_m A_m^{F,m+1}} \quad \text{en excitation par une composante séparée.} \end{array} \right.$$

Pour étudier l'action simultanée du pompage et de la relaxation, nous ne pouvons pas utiliser exactement le formalisme introduit par Cohen-Tannoudji (24), du fait que T_m varie avec m . Pour la relaxation, nous supposons comme lui que toutes les populations tendent vers 1 avec la même constante de temps T_1 . Pour le pompage optique, nous faisons le bilan des atomes arrachés à l'état fondamental par les photons orientateurs et des atomes retombant de l'état excité dans les sous-niveaux de l'état fondamental. La durée de vie τ de l'état excité étant beaucoup plus courte que T_p , nous pouvons écrire dans le cas d'irradiation en σ^+ par une seule composante hyperfine :

$$(VI-8) \quad \frac{dX_m}{dt} = \frac{1-X_m}{T_1} - \frac{X_m}{T_m} + \sum_n \frac{3\lambda^2}{8\pi\tau} \Phi \cdot X_n \cdot A_n^{F,n+1} \cdot A_m^{F,n+1}$$

(seuls les termes $n = m, m+1$ et $m+2$ apportent une contribution à la somme \sum).

Dans le cas de l'excitation "broad line" on remplacerait T_m par $T'_m = T'_p$ et on effectuerait dans le terme de droite la sommation sur F en plus de la sommation sur n . Nous cherchons la solution stationnaire de ce système différentiel, ce qui nous conduit au système d'équations linéaires :

$$(VI-9) \quad 0 = 1 - X_m + r \left[-A_m^{F,m+1} \cdot X_m + \sum_n X_n \cdot A_n^{F,n+1} \cdot A_m^{F,n+1} \right]$$

Ce sont les solutions de ce système que nous donnons dans les tableaux I, II (colonnes 2, 3 et 4) et dans le tableau III (colonnes 2 et 3). Les tableaux I et II donnent les résultats dans les cas d'orientation du ^{199}Hg et d'alignement du ^{201}Hg ; nous avons déjà remarqué que dans ces deux cas, les populations ne dépendent que d'une seule variable indépendante, ce qui rend le calcul particulièrement simple. Nous donnons dans une première colonne la valeur de r en fonction de T_1/T_p , dans la deuxième colonne, la valeur exacte en fonction de r des quantités $\alpha - 1 = 1 - \beta$ pour ^{199}Hg , et des quantités $\alpha - 1 = 1 - \beta = \eta - 1 = 1 - \gamma$ dans le cas de l'alignement de ^{201}Hg ; dans les deux colonnes suivantes, nous donnons les valeurs limites vers lesquelles tendent α et β aux fortes intensités lumineuses quand r devient infini. On voit que la composante $201 - 1/2$, utilisée seule, pompe aussi efficacement les atomes que la composante $201 - 5/2$, mais en sens inverse; et on mesure l'intérêt des lampes à isotopes séparés pour réaliser l'alignement de ^{201}Hg . Le tableau III correspond à l'orientation du ^{201}Hg en irradiation σ^+ ; les calculs sont plus compliqués et nous ne donnons pas les solutions exactes, mais seulement les valeurs approchées quand r est faible (colonne 2) et les valeurs limites quand r devient infini (colonne 3). Dans la comparaison des tableaux II et III, en ce qui concerne le ^{201}Hg , on n'oubliera pas que nous avons en alignement des intensités lumineuses 10 fois plus grandes, c'est-à-dire un paramètre r 10 fois plus grand que dans le cas de l'orientation. La comparaison directe entre le cas du ^{199}Hg (tableau I) et le cas du ^{201}Hg (tableaux II et III) n'est pas possible car leurs temps de relaxation T_1 sont très différents.

1	2	4	5	6	7	8	9	
POPULATIONS D'EQUILIBRE (paragraphe VI)		SIGNAUX DEFECTES (paragraphe V)						
r	$\alpha-1 = 1-\beta$ <i>1/2</i>	$\rightarrow \infty$ β	I_{π}	I_{σ}	$\Delta I / I_{\pi 0}$	$\Delta I_{\sigma} / I_{\sigma 0}$	P	
$\frac{3}{2} T_{1p} / T_p$	$+ \frac{0,22r}{1+0,22r}$	0	4 β	9 $\alpha+\beta$	$\Delta\beta$	-0,8 $\Delta\beta$	+1,8 $\Delta\beta$	
$\frac{3}{3} T_{1p} / T_p$	$+ \frac{0,22r}{1+0,22r}$	0	4 β	4 β	$\Delta\beta$	$\Delta\beta$	0	
T_{1p} / T_p	$+ \frac{0,44r}{1+0,44r}$	0	8 β	9 $\alpha+5\beta$	4 β	-0,28 $\Delta\beta$	+1,28 $\Delta\beta$	
EXCITATION								
0,5	5/2 seule (lampe 204)		9.(3 $\alpha+21\beta$)	9.(26 $\alpha+12\beta$)	+0,75 $\Delta\beta$	-0,37 $\Delta\beta$	+1,12 $\Delta\beta$	
0,69	3/2 seule (lampe 198)		4.(3 $\alpha+51\beta$)	4.(21 $\alpha+37\beta$)	+0,823 $\Delta\beta$	+0,276 $\Delta\beta$	+0,55 $\Delta\beta$	
1,5	1/2 seule		25.(3 $\alpha+\beta$)	25.(3 $\alpha+\beta$)	-0,50 $\Delta\beta$	-0,50 $\Delta\beta$	0	
0,84	broad line		114 $\alpha + 338\beta$	393 $\alpha + 281\beta$	-0,50 $\Delta\beta$	-0,17 $\Delta\beta$	+0,67 $\Delta\beta$	

T A B L E A U I - ORIENTATION EN σ^+ DE ^{199}Hg .

T A B L E A U II - ALIGNEMENT DE ^{201}Hg .

1	2	3	4	5
r	POPULATIONS D'EQ (paragraphe)	BRE	SIGNAUX DETECTES (paragraphe V)	
	r → 0	r → ∞	I _π ou I _σ	P = $\frac{\Delta I_{\pi}}{I_{\pi 0}} - \frac{\Delta I_{\sigma}}{I_{\sigma 0}}$
$\frac{T_1}{2 T_p}$	α ≈ 1 + 0,27r β ≈ 1 - 0,03r γ ≈ 1 - 0,15r η ≈ 1 - 0,09r	4 0 0 0	I _π ~ 9. (12β+9γ+3η) I _σ ~ 9. (25 α + 9 β+3γ+η)	-0,66Δα + 0,26Δβ + 0,30Δγ + 0,10Δη
$\frac{T_1}{3 T_p}$	α ≈ 1 + 0,45r β ≈ 1 + 0,01r γ ≈ 1 - 0,22r η ≈ 1 - 0,24r	4 0 0 0	I _π ~ 4. (27β+4γ+3η) I _σ ~ 4. (9β+28γ+21η)	+0,63Δβ - 0,36Δγ - 0,27Δη
$\frac{T_1}{6 T_p}$	α ≈ 1 + 0,08r β ≈ 1 + 0,03r γ ≈ 1 + 0,14r η ≈ 1 - 0,25r	2 2 0 0	I _π = I _σ ~ 25 (γ+3η)	0
$\frac{T_1}{T_p}$	α ≈ 1 + 0,80r β ≈ 1 + 0,01r γ ≈ 1 - 0,23r η ≈ 1 - 0,58r	4 0 0 0	I _π ~ 216β+122γ+114 η I _σ ~ 225α+117β+164γ+168η	-0,333Δα+0,305Δβ+0,025Δγ +0,002Δη

T A B L E A U III - ORIENTATION EN σ⁺ DE 201 Hg.

DEUXIÈME CHAPITRE

MESURE DES MOMENTS NUCLEAIRES.

VII - Mesures préliminaires à fréquence fixe.

La possibilité d'obtenir en alignement des intensités lumineuses pompantes beaucoup plus importantes qu'en orientation nous a conduit à tenter nos premières expériences dans le cas de l'alignement de ^{201}Hg . Nous avons cherché à observer les résonances magnétiques entre les sous-niveaux m_I de l'état fondamental par la méthode classique en balayant le champ directeur H_0 , à fréquence fixe du champ de radiofréquence H_1 . Un système à démultiplication de fréquence, à partir soit d'un quartz à 100 kc/s, soit de la fréquence porteuse du poste de radiodiffusion de Droitwich (200 kc/s, stable à mieux de 10^{-7} près), nous permettait de travailler avec des fréquences très stables à 100, 50, 25, 10 et 5 kc/s. Le champ magnétique était contrôlé par l'intermédiaire du courant magnétisant, mesuré à $0,5 \cdot 10^{-4}$ près à l'aide d'un potentiomètre Leeds-Northrup.

La figure 5 montre un exemple des courbes de résonance ainsi obtenues en portant la quantité $P = \Delta I_\pi / I_{\pi_0} - \Delta I_\sigma / I_{\sigma_0}$ en fonction de H_0 (courant magnétisant); la fréquence était de 10 kc/s; l'illumination se faisait à l'aide d'une lampe à ^{198}Hg . Chaque courbe correspond à une amplitude fixe du champ tournant H_1 , qui est repérée d'après la tension V_1 aux bornes des bobines de radiofréquence; on remarque aux fortes valeurs de H_1 un renversement analogue à celui qu'obtenait Brossel dans l'observation de la résonance magnétique du niveau 6^3P_1 du mercure (3).

Nous avons vérifié que les variations ΔI_π et ΔI_σ ont le bon signe et que leur rapport a bien la valeur théoriquement prévue (cf paragraphe V et tableau II) :

$$\Delta I_{\pi} / I_{\pi_0} \simeq - 2 \Delta I_{\sigma} / I_{\sigma_0} \quad \text{dans l'alignement par } {}^{204}\text{Hg (composante 5/2)}$$

$$\Delta I_{\pi} / I_{\pi_0} \simeq + 3 \Delta I_{\sigma} / I_{\sigma_0} \quad \text{dans l'alignement par } {}^{198}\text{Hg (composante 3/2)}$$

ΔI_{π} est toujours positif puisque les sous-niveaux $\pm 1/2$ partiellement vidés par le pompage se remplissent à résonance ($\Delta \beta > 0$). En utilisant des faisceaux lumineux très ouverts, on a mesuré à saturation de la résonance sur les maxima de la courbe (ils correspondent à l'égalisation des populations des sous-niveaux m_I ; cf troisième chapitre) des valeurs de P atteignant 0,10 avec une lampe à ${}^{198}\text{Hg}$ et 0,18 avec une lampe à ${}^{204}\text{Hg}$. On en déduit que les variations relatives des populations, atteintes par le pompage en alignement sur ${}^{201}\text{Hg}$, dépassent dans les deux cas 16%. (cf paragraphe V et tableau I_r).

On a vérifié que le champ H_0 auquel se produit la résonance est bien proportionnel à la fréquence du champ H_1 à la précision de 1/2000 (Ce contrôle n'était pas possible à la précision de 10^{-4} de nos mesures de courant magnétisant parce que, en dépit de leur refroidissement par eau, les bobines de Helmholtz produisant H_0 chauffent et se dilatent légèrement aux fortes intensités de courant). La valeur absolue du champ était connue avec une précision moindre, d'environ 0,5%. Les résonances étaient observées aux positions prévues (35,6 Gauss à 10 kc/s), résultant des mesures antérieures des moments magnétiques nucléaires du mercure (17)(25). Pour obtenir une précision supérieure, il était nécessaire de mesurer directement le champ magnétique H_0 à l'aide d'une résonance de protons.

VIII - Contrôle du champ directeur H_0 par résonance de protons.

Pour observer la résonance des protons, nous avons choisi la méthode de Purcell avec le pont en double T utilisé par Soutif (26), tant à cause du faible encombrement de la tête de mesure, que de la grande souplesse de cette méthode. La tête de mesure était une simple bobine de fil de Litz de 9 mm de longueur et de 7 mm de diamètre, portée par un système

de 3 crémaillères à angles droits permettant d'explorer le champ magnétique dans un volume assez grand autour du centre des bobines d'Helmholtz. Le générateur était piloté par des quartz aux fréquences de 760.115 c/s, 941.994 c/s et par la suite 800.000 c/s et 1.000.000 c/s.

La fréquence de balayage du champ directeur était choisie de 10 c/s, assez haute pour travailler confortablement, mais assez basse pour pouvoir filtrer les parasites à 50 c/s et pouvoir ne doper que faiblement l'échantillon d'eau remplissant la tête de mesure (solution de nitrate ferrique à Fe/300 par litre, dans laquelle le temps de relaxation (27) est de l'ordre de 0,02 seconde). L'amplitude de balayage était de 10 milliGauss, recouvrant juste la largeur à mi-hauteur de la raie de résonance (~ 40 c/s). On obtenait ainsi aux points où l'homogénéité du champ était assez bonne, un rapport signal/bruit supérieur à 20, permettant le contrôle de la constante du champ à 10^{-6} près.

Nous avons pu vérifier à cette précision la stabilité à court terme de l'alimentation haute tension Varian, qui présente par ailleurs une dérive lente peu gênante.

Pour mesurer l'homogénéité du champ H_0 dans l'espace, nous avons étalonné le dispositif potentiométrique permettant d'imposer à l'alimentation Varian de faibles écarts de courant autour d'une valeur moyenne, et nous lisions ainsi directement l'écart nécessaire pour recentrer le signal de résonance des protons sur l'écran de l'oscillographe après un déplacement de la tête de mesure. En supposant les bobines de champ parfaitement circulaires et indéformables, la carte du champ ainsi tracée dépend théoriquement de 6 paramètres : 1) le paramètre d'équilibrage du nombre d'Ampère-tours des deux bobines (addition d'une forte résistance en parallèle avec l'une d'elles) - 2) les 3 paramètres de distance et de parallélisme des plans moyens de chaque bobine - 3) les 2 paramètres de translation des bobines l'une par rapport à l'autre parallèlement à leur plan moyen, permettant d'assurer la coïncidence de leurs axes. En procédant par approximations successives, nous sommes

arrivés à obtenir une carte de champ très semblable à la meilleure carte de champ théorique (annulant les termes du second ordre; cf annexe II); c'est-à-dire que nous mesurons des écarts relatifs du champ H_0 atteignant au maximum $\pm 3.10^{-6}$ ou $\pm 4.10^{-5}$ respectivement à l'intérieur des cubes de 2 cm d'arête ou 4 cm d'arête, ayant même centre que les bobines de champ, et correspondant aux volumes des cellules à vapeur de mercure utilisées.

IX - Les bobines et le champ H_1 de radiofréquence.

Les fréquences employées pour observer les résonances nucléaires du mercure n'ont jamais atteint 200 kc/s, et nous n'avons jamais eu besoin de puissances importantes. Ceci n'imposait aucune exigence particulière au circuit de radiofréquence constitué de deux bobines minces d'axe vertical, en position d'Helmholtz. Nous nous sommes intéressés cependant à l'homogénéité du champ H_1 dans l'espace. Comme nous opérons à basse fréquence, nous avons pu tester expérimentalement cette homogénéité en mesurant la tension induite aux bornes d'une petite bobine (diamètre extérieur 1 cm, longueur 1 cm, 800 tours de fil de 10/100 mm) d'axe vertical également, et portée par le dispositif de 3 crémaillères à angles droits.

La tension induite dans cette sonde se montait à quelques millièmes seulement de la tension appliquée aux bornes du circuit de radiofréquence; et cependant la tension parasite induite par capacité était réduite à moins de 1^o/o de la tension utile induite par le champ magnétique H_1 grâce aux trois précautions suivantes : a) connexions extrêmement courtes dans la tête de mesure entre la bobine et le câble coaxial la reliant au voltmètre électronique - b) connexion de l'armature externe du coaxial avec le fil venant de la couche externe de la bobine - c) blindage de la bobine par un petit cylindre de laiton, relié à l'armature externe du coaxial, et fendu le long d'une génératrice pour empêcher la fermeture des courants de Foucault. Nous avons également construit une seconde sonde identique à la première, et

observé que son approche au voisinage immédiat de la première sonde perturbe d'environ 1^o/o seulement la tension induite. Comme nous ne nous intéressons qu'aux variations du champ H_1 , nous avons ainsi la certitude de les mesurer effectivement à 0,5^o/o de la valeur de H_1 , limite imposée par la lecture du millivoltmètre électronique.

Ce dispositif nous a permis de reconnaître d'abord que les tôles métalliques placées au voisinage des bobines de radiofréquence n'ont qu'un effet négligeable sur le champ H_1 , dès qu'elles ne sont pas perpendiculaires à l'axe du circuit. Par contre, l'homogénéité de H_1 est très mauvaise si les deux bobines du circuit de radiofréquence ne sont pas enroulées avec une parfaite régularité, assurant leur totale symétrie. Un premier système de bobines de faible diamètre (60 tours de 11 cm de diamètre moyen) était à cet égard déplorable. Nous l'avons remplacé par deux nouvelles bobines soigneusement enroulées comprenant chacune 54 tours de 24 cm de diamètre moyen.

L'inhomogénéité résiduelle au centre de ce nouveau circuit, dans le volume des cellules à vapeur de mercure utilisées, est alors inappréciable avec notre dispositif de mesure. Mais nous pouvons mesurer les variations de H_1 à des distances plus grandes; elles sont sensiblement égales aux variations théoriques; et nous pouvons raisonnablement penser que les variations de H_1 au voisinage du centre sont également du même ordre de grandeur que les variations théoriques (cf annexe II). Cela correspond à une inhomogénéité d'environ 10^{-4} dans un cube de 2 cm d'arête et 10^{-3} dans un cube de 4 cm d'arête.

La réalisation de cette homogénéité dans l'espace s'est révélée inutile en fin de compte, comme nous le verrons par la suite (quatrième chapitre). Il est important par contre de contrôler la stabilité dans le temps du champ H_1 , pendant le tracé de chaque courbe de résonance, et de mesurer son amplitude en valeur relative. Un simple millivoltmètre électronique est utilisé à cet usage; il est branché en permanence à l'entrée du câble coaxial alimentant le circuit de radiofréquence, et mesure à environ 1^o/o près la tension V_1 , proportionnelle à H_1 , tant qu'on reste à fréquence

fixe. Lorsque nous tracerons des courbes à fréquence variable (cf paragraphe suivant), l'excursion de fréquence $\Delta \nu$ sera toujours suffisamment faible ($\Delta \nu / \nu < 10^{-3}$) pour que cela reste vrai.

X - Mesures en champ fixe.

Pour augmenter la précision des déterminations des fréquences de résonance nucléaire du mercure, il était nécessaire de mesurer en permanence le champ magnétique H_0 à l'aide du signal de résonance des protons. La détection radioélectrique utilisée pour celle-ci ne permettant pas de changer facilement sa fréquence, nous étions conduits à travailler à champ fixe et à balayer en fréquence les résonances du mercure.

Ce balayage de fréquence exige qu'on procède à des mesures précises de la fréquence variable. Nous utilisons un fréquencemètre à décades, qui compte le nombre de périodes pendant 10 secondes et peut donc fournir la précision absolue de 0,1 c/s, soit une précision relative de 10^{-6} si la fréquence est de l'ordre de 100 kc/s, pourvu que la base de temps soit définie avec une précision suffisante. Celle-ci est définie à partir d'un quartz thermostaté à 100 kc/s, dont on peut contrôler et corriger la fréquence en permanence par comparaison avec la fréquence étalon de l'émetteur de Droitwich. On mesure et on maintient constant le champ H_0 à 10^{-6} près grâce à la résonance de protons, dont la tête de mesure est placée en un point fixe voisin de la cellule à vapeur de mercure. On a vérifié que le faible champ de balayage à 10 c/s n'apporte aucune perturbation aux signaux de résonance de ^{201}Hg et ^{199}Hg , mesurés au galvanomètre.

Pour alimenter les bobines de radiofréquence, nous disposons d'un classique générateur à self et capacité variable, mais de très bonne qualité, et dont la stabilité en fréquence sur de courts intervalles de temps dépassait largement 10^{-5} , atteignant presque 10^{-6} . C'est avec ce générateur que nous avons tracé toutes les courbes de résonance de ^{201}Hg

tant en alignement (courbes analogues à celle de la figure 5) qu'en orientation; les largeurs de raie sont telles que la stabilité de ce générateur est suffisante.

Dans le cas de la vapeur de ^{201}Hg orientée, les résonances ne présentent pas le renversement central aux fortes valeurs de H_1 ; elles sont en outre plus étroites. La figure 6 montre quelques courbes obtenues par illumination en lumière circulaire avec une lampe à ^{204}Hg (composante 201-5/2). Bien que le processus d'orientation soit plus efficace que celui d'alignement, la réduction de l'intensité lumineuse, résultant de l'interposition du prisme de Nicol et de la lame quart d'onde, conduit à des effets beaucoup moins importants qu'en alignement; on mesure à saturation $P = 0,03$ ce qui correspond à un enrichissement d'environ 3% du niveau 3/2 (cf paragraphe V et tableau III). Le rapport signal/bruit est mauvais, ce qui explique la dispersion des points expérimentaux.

On a observé avec la même lampe à ^{204}Hg l'orientation de ^{199}Hg . Comme nous l'avons déjà signalé (paragraphe IV et V, tableau I), le taux de polarisation de la lumière de résonance optique est constant dans ce cas; et la détection se fait en mesurant son intensité, qui est proportionnelle à la population β du niveau $m_J = -1/2$ (qui est vidé par le pompage en σ^+). A la différence du cas de ^{201}Hg , les courbes de résonance (figure 7) sont beaucoup plus fines et les taux d'orientation beaucoup plus importants : les variations relatives des populations sont de 34% dans le cas de la figure 7; et on a observé plus de 50%. Ces deux effets simultanés montrent que le temps de relaxation de ^{199}Hg est beaucoup plus long que celui de ^{201}Hg ; nous reviendrons sur ce point au quatrième chapitre.

Les courbes de résonance de ^{199}Hg sont même tellement fines qu'il n'est plus possible de les tracer correctement avec le générateur à self et capacité décrit plus haut. Ayant seulement repéré leur position, nous avons fait tailler des quartz aux fréquences nécessaires de 142,62 kc/s

et 178,27 kc/s (correspondant à la résonance de protons à 800 kc/s et 1 Mc/s); ils nous ont servi à piloter un générateur dont la stabilité dépassait ainsi largement 10^{-6} . Les résonances sont alors décrites par ajustement de la fréquence du générateur à l'aide d'un condensateur variable inséré dans le circuit du quartz. C'est dans ces conditions qu'ont été tracées les courbes de la figure 7; les écarts des points expérimentaux mesurent alors la limite de stabilité et de contrôle du champ directeur H_0 . Notons que ce sont des courbes de Lorentz même aux fortes amplitudes du champ de radiofréquence H_1 , puisqu'il n'y a que deux sous-niveaux mis en jeu dans la résonance magnétique; nous le vérifions expérimentalement.

XI - Les moments magnétiques nucléaires.

La stabilité et la finesse des signaux obtenus nous a permis une mesure précise des moments magnétiques nucléaires des isotopes impairs du mercure. Cette mesure était intéressante, car la plupart des valeurs admises jusqu'ici n'étaient calculées qu'à partir de mesures optiques de structures hyperfines (17). Seuls Proctor et Yu (25) avaient fait une mesure directe par résonance magnétique sur une solution de nitrate mercurieux; mais ils n'avaient pu observer que la résonance de ^{199}Hg .

Pour cette mesure, il ne suffit plus de contrôler la constance du champ H_0 , mais il faut comparer les fréquences de résonance du mercure et du proton dans le même champ. Le plus simple est alors de placer la tête de mesure de résonance de protons en un point voisin de la cellule à vapeur de mercure, où le champ magnétique retrouve exactement la même valeur qu'au centre de la cellule (qui coïncide avec le centre géométrique du champ); mais en ces points, l'homogénéité de champ n'est pas toujours bonne, et la résonance des protons peut être élargie, ce qui diminue la précision. Il y a donc souvent avantage à placer la tête de mesure en un point différent, et à mesurer avec soin l'écart de champ correspondant par rapport au champ au centre. Nous avons utilisé l'une et l'autre technique. Nous avons fait les

mesures un grand nombre de fois en utilisant diverses cellules, des intensités lumineuses d'irradiation très différentes, et, pour ^{201}Hg , dans des cas d'orientation ou d'alignement.

Nous avons aussi utilisé une cellule remplie d'un mélange à parts égales de ^{201}Hg et ^{199}Hg , et sur laquelle nous pouvions observer les deux résonances pour déterminer directement le rapport de leurs fréquences dans des conditions strictement identiques.

Nous avons également fait les mesures dans quatre champs magnétiques différents. Nous avons utilisé en particulier pour piloter la résonance de protons des quartz taillés aux fréquences de 1 Mc/s et 800 kc/s; nous remplaçons alors le générateur à quartz du fréquencesmètre par un multivibrateur à 100 kc/s synchronisé par le générateur de résonance de protons. Ainsi le fréquencesmètre mesure directement le rapport des fréquences de résonance du mercure et du proton, sans être affecté par de possibles fluctuations du quartz.

En définitive, la précision de nos mesures est limitée dans le cas de ^{201}Hg par la largeur des résonances et le bruit du signal optique observé; dans le cas de ^{199}Hg elle n'est limitée que par nos techniques de mesure et la stabilité du champ H_0 . Dans les deux cas, la précision doit pouvoir être améliorée; les résultats actuels sont les suivants :

a) Le rapport des moments nucléaires ne dépend pas de la correction diamagnétique qui est la même pour les deux isotopes :

$$\frac{\gamma_{201}}{\gamma_{199}} = - 0,3691385 \left(\begin{smallmatrix} + \\ - \end{smallmatrix} 15 \right) \quad \text{ou} \quad \frac{\mu_{201}}{\mu_{199}} = - 1,107416 \left(\begin{smallmatrix} + \\ - \end{smallmatrix} 5 \right)$$

ce rapport diffère sensiblement des valeurs mesurées spectroscopiquement à partir des écarts hyperfins (17). Des mesures précises des écarts hyperfins, récemment obtenues, mettent en évidence, par comparaison avec notre mesure, l'existence d'anomalies de structure hyperfine importantes dépassant 1/1000 :

la méthode des jets atomiques appliquée à l'état métastable 6^3P_2 (28) conduit à la valeur $3A_{201}/A_{199} = -1,109124$; et la méthode de double résonance conduit pour l'état 6^3P_1 (29) à la valeur $3A_{201}/A_{199} = -1,109040$.

b) Nous donnons les autres valeurs non compte-tenu de la correction diamagnétique, qui d'après le calcul de Lamb (30) atteindrait $0,96\%$:

$$\frac{\gamma_{201}}{\gamma_H} = -0,0658066\left(\begin{smallmatrix} + \\ - \end{smallmatrix} 3\right); \quad \frac{\gamma_{199}}{\gamma_H} = 0,1782706\left(\begin{smallmatrix} + \\ - \end{smallmatrix} 3\right)$$

en prenant $\gamma_H = 26751,3\left(\begin{smallmatrix} + \\ - \end{smallmatrix} 0,2\right)$ (31), on obtient :

$$\gamma_{201} = -1760,41\left(\begin{smallmatrix} + \\ - \end{smallmatrix} 2\right); \quad \gamma_{199} = 4768,97\left(\begin{smallmatrix} + \\ - \end{smallmatrix} 4\right)$$

en prenant $\mu_H = 2,79275\left(\begin{smallmatrix} + \\ - \end{smallmatrix} 3\right) \mu_n$ (32)(33), on obtient :

$$\mu_{201} = -0,551344\left(\begin{smallmatrix} + \\ - \end{smallmatrix} 9\right) \mu_n; \quad \mu_{199} = 0,497865\left(\begin{smallmatrix} + \\ - \end{smallmatrix} 6\right) \mu_n$$

Cette valeur de μ_{199} est inférieure de $0,3\%$ à celle mesurée par Proctor et Yu (25) dans une solution de nitrate mercureux.

TROISIÈME CHAPITRE

LES MÉTHODES D'ÉTUDE DE LA RELAXATION

XII - Les temps de relaxation et la méthode statique.

En dehors de la détermination des fréquences de résonance, les courbes expérimentales, que nous avons montrées au chapitre précédent, permettent l'étude des phénomènes de relaxation à partir des mesures de largeurs de raie. C'est ce que nous appelons la méthode statique d'étude de la relaxation, par opposition à la méthode dynamique qui utilise l'observation des phénomènes transitoires (cf paragraphe suivant). L'interprétation quantitative de ces deux types de phénomènes suppose une théorie permettant de les calculer. Les calculs correspondants, utilisant le formalisme de la matrice densité, seront développés en détail à la fin de ce chapitre, et justifieront les résultats dont nous faisons état dans ces deux premiers paragraphes pour exposer les méthodes d'étude expérimentales.

Nous réservons pour le quatrième chapitre l'étude des origines de la relaxation; et dans le présent chapitre, nous décrivons la relaxation de façon purement phénoménologique, à la manière de Bloch (34), à l'aide des deux temps de relaxation longitudinale T_1 , et de relaxation transversale T_2 . C'est-à-dire que nous supposons l'existence d'une probabilité $1/T_1$ par unité de temps pour que l'état d'orientation des atomes soit modifié par la relaxation, et d'une probabilité $1/T_2$ pour qu'ils soient arrachés par la relaxation à la superposition cohérente d'états dans laquelle les fait passer l'interaction avec le champ de radiofréquence. Cette hypothèse conduit dans le cas de ^{199}Hg , où il n'y a que 2 sous-niveaux Zeeman, aux équations de relaxation les plus générales possibles; les conclusions que nous en tirons sont valables en tout état de cause, et se trouvent bien vérifiées par l'expérience. Dans le cas de ^{201}Hg par contre, il y a 4 sous-niveaux Zeeman, et la descrip-

tion de la relaxation à l'aide de 2 constantes T_1 et T_2 seulement ne peut être considérée que comme un modèle approché; on ne s'étonnera pas que certaines de ses propriétés ne soient pas vérifiées par l'expérience. Mais ce modèle simplifié nous sera un guide utile pour étudier les origines de la relaxation (quatrième chapitre), et déterminer ainsi à partir de quelles hypothèses peut être bâti un modèle plus exact.

Outre l'action du champ tournant H_1 et de la relaxation, il nous faut également tenir compte de l'action de la lumière de pompage optique. C'est comme la relaxation un phénomène aléatoire; mais nous avons vu (paragraphe VI) que, si l'excitation lumineuse n'est pas du type "broad line", la probabilité par unité de temps pour qu'un atome absorbe un photon dépend du sous-niveau m_1 où il se trouve placé; et nous ne savons plus ce que vaut cette probabilité d'excitation lorsque, sous l'action du champ H_1 , l'atome est passé dans une superposition cohérente d'états. Nous verrons à la fin de ce chapitre que les calculs de moyenne sur tous les atomes, effectués à l'aide de la matrice densité, sont équivalents, dans les cas d'orientation du ^{199}Hg et d'alignement du ^{201}Hg , à l'existence d'une probabilité d'excitation définie valant $1/T_p$ (cf équations (VI-4) et (VI-5)). Les atomes peuvent être arrachés à la superposition cohérente d'états au niveau fondamental par deux processus aléatoires indépendants : la relaxation de probabilité $1/T_2$, et l'excitation au niveau d'énergie supérieur (d'où ils retombent dans des états purs) de probabilité $1/T_p$. La probabilité totale d'arrachement à l'état cohérent est la somme de ces deux probabilités :

$$(XII-10) \quad \frac{1}{\tau_2} = \frac{1}{T_2} + \frac{1}{T_p}$$

C'est ce "temps de cohérence" τ_2 qui joue dans nos expériences le rôle de temps de relaxation transversale apparent.

La lumière a également pour effet de modifier l'état d'orientation des atomes par le jeu des probabilités de retombée de l'état excité; c'est le processus même du pompage optique. On conçoit donc que les phénomènes étudiés soient décrits également avec un temps de relaxation longitudinale apparent τ_1 , dépendant de l'intensité lumineuse, qui est défini par :

$$(XII-11) \quad \frac{1}{\tau_1} = \frac{1}{T_1} + \frac{k}{T_p}$$

Le coefficient k dépend des probabilités de transition optique : $k = 2/3$ dans le cas d'orientation de ^{199}Hg avec une lampe à ^{204}Hg (cf formules (XV-22)); $k = 0,36$ ou $1,04$ dans le cas d'alignement de ^{201}Hg avec une lampe à ^{204}Hg ou à ^{198}Hg (cf formules (XVI-33)). Ce sont ces temps apparents τ_1 et τ_2 qui sont accessibles directement à nos mesures; nous allons le voir d'abord dans le cas de la méthode statique.

Lorsqu'on trace un réseau de courbes de résonance (cf figures 5, 6 et 7), on trouve que la largeur à mi-hauteur L (nous la supposons toujours exprimée en fréquence) croît avec l'intensité du champ tournant H_1 . L'interprétation de cet élargissement est simple : il est dû au raccourcissement de la durée de vie des sous-niveaux Zeeman par absorption et émission induite à la fréquence $\omega/2\pi$ du champ H_1 . Si l'on extrapole cette largeur à H_1 nul, la largeur limite obtenue ne doit plus dépendre que des autres causes qui limitent cette durée de vie (relaxation et absorption de photons), c'est-à-dire du "temps de cohérence" τ_2 défini plus haut. La théorie facilite l'extrapolation en indiquant que le carré de la largeur est une fonction linéaire du carré de l'amplitude du champ tournant :

$$(XII-12) \quad L^2 = \left(\frac{1}{\pi \tau_2} \right)^2 + K.H_1^2$$

(cf formules (XV-24) et (XVI-38))

Expérimentalement, on mesure la tension V_1 aux bornes du circuit de radiofréquence, proportionnelle à H_1 ; et on vérifie que L^2 est bien représenté par une droite en fonction de V_1^2 . L'ordonnée à l'origine de cette "droite des largeurs" vaut $(1/\pi\tau_2)^2$; on en déduit τ_2 . Les figures 8 et 9 nous montrent des exemples de ces "droites des largeurs" (droites n° 1). La figure 8 correspond au réseau tracé sur la figure 7 dans le cas de ^{199}Hg orienté avec une lampe à ^{204}Hg ; on mesure $1/\pi\tau_2 = 0,90$ c/s et $\tau_2 = 0,35$ seconde. La figure 9 correspond à un réseau analogue à celui de la figure 5 dans le cas d'alignement de ^{201}Hg avec une lampe à ^{198}Hg , mais avec une intensité lumineuse plus forte; on mesure $1/\pi\tau_2 = 22$ c/s et $\tau_2 = 0,014$ seconde.

D'après la formule (XII-10), cette largeur limite $1/\pi\tau_2$ doit encore dépendre de l'intensité lumineuse Φ , à laquelle $1/T_p$ est proportionnel. Pour le vérifier, on réalise diverses valeurs de Φ variant dans des rapports connus, en interposant sur le faisceau d'irradiation des grilles à mailles serrées qui réduisent son intensité sans modifier sa configuration géométrique (les rayons plus ou moins inclinés sur l'axe, et qui n'ont peut-être pas la même efficacité, sont ainsi affaiblis d'égale manière). Pour chaque valeur de Φ on trace un réseau de courbes de résonance et une droite des largeurs permettant d'extrapoler une largeur limite $1/\pi\tau_2$. On vérifie que ces largeurs $1/\pi\tau_2$ sont bien représentées par une droite en fonction de Φ ; et la nouvelle largeur limite, extrapolée à intensité lumineuse Φ nulle, mesure $1/\pi T_2$. La figure 10 nous montre un exemple de cette vérification et de cette seconde extrapolation dans un cas d'alignement de ^{201}Hg ; on obtient $1/\pi T_2 = 8,0$ c/s, ou $T_2 = 0,04$ seconde.

Ayant ainsi déterminé T_2 , nous pouvons à l'aide de la formule (XII-10) déterminer dans chaque cas particulier la part de la largeur due aux photons $1/\pi T_p$. Cette largeur a atteint en alignement une valeur maximum de l'ordre de 30 c/s, ce qui correspond pour T_p à un minimum de l'ordre de 0,01 seconde. On en déduit une mesure indirecte du temps de relaxation

longitudinale T_1 : les résultats des paragraphes V et VI (tableaux I, II et III) permettent de calculer le rapport T_1/T_p à partir du signal maximum observé à saturation de la résonance; connaissant maintenant T_p , nous pouvons en déduire T_1 . Il est encore possible de déterminer T_1 d'une autre manière, si l'on connaît la valeur absolue de l'amplitude H_1 (et nous verrons que l'observation des transitoires de ^{199}Hg nous donne une mesure précise du rapport V_1/H_1) : on peut alors mesurer la pente de la droite des largeurs en fonction de H_1^2 ; cette pente est connue théoriquement en fonction du rapport τ_1/τ_2 (cf formules (XV-24) et (XVI-38)) qu'elle permet ainsi de mesurer; on en déduit τ_1 , puis T_1 à l'aide de la formule (XII-11).

Cette méthode statique de mesure des temps de relaxation présente deux inconvénients : a) par sa longueur : pour pouvoir procéder à la double extrapolation décrite ci-dessus, il faut tracer un très grand nombre de courbes, ce qui exige un temps considérable; plusieurs journées de mesure sont normalement nécessaires pour déterminer une valeur de T_2 - b) par sa faible précision : il est en effet difficile de garantir une parfaite stabilité de la source lumineuse pendant des temps aussi longs, et cela ne fait qu'augmenter les erreurs propres à toute méthode d'extrapolation; au total la précision de mesure des temps T_2 atteint à peine 10%. Les erreurs s'accumulent bien davantage encore dans la suite d'opérations nécessaires à la détermination indirecte de T_1 , d'où l'on ne peut tirer que des valeurs très approximatives.

XIII - La méthode dynamique - Observation des transitoires de ^{199}Hg .

La méthode dynamique, au contraire de la méthode précédente, permet des mesures rapides et directes de T_2 et de T_1 , par observation des phénomènes transitoires qui se produisent lorsqu'on impose de brusques modifications à l'intensité lumineuse orientatrice \mathcal{P} , ou au champ tournant H_1 .

Cette méthode est donc bien préférable à la précédente. Mais, pour les raisons que nous verrons, nous avons pu jusqu'ici l'appliquer seulement au cas de ^{199}Hg ; nous l'exposons donc uniquement dans ce cas-là. Pour faciliter l'exposé, nous supposons toujours qu'il s'agit d'une irradiation en polarisation σ^+ , qui tend à diminuer la population β du sous-niveau $m_I = -1/2$.

Nous avons utilisé cette méthode uniquement dans le cas où ^{199}Hg est excité par la composante $1/2$ avec une lampe à ^{204}Hg , en mesurant l'intensité de la lumière totale de fluorescence, constamment dépolarisée, qui est proportionnelle à la population β du sous-niveau $-1/2$. Mais les mêmes phénomènes seraient observables sans grand changement en irradiation simultanée par les deux composantes $1/2$ et $3/2$, à condition de ne détecter que la lumière de fluorescence de polarisation π , dont l'intensité est dans tous les cas proportionnelle à la seule population β . La méthode comprend en réalité plusieurs variantes qui se complètent et que nous étudions successivement. Dans tous les cas, les observations sont faites en envoyant le courant d'un seul photomultiplicateur à travers la résistance d'entrée d'un oscillographe à entrée continue : le signal observé sur l'écran en fonction du temps est, à intensité constante de la lampe, proportionnel à la population β du niveau $-1/2$. L'échelle de temps est indiquée sur les oscillogrammes que nous présentons par des signaux triangulaires à basse fréquence.

A - Transitoires du pompage optique en l'absence de radiofréquence.

Les deux premières parties de la méthode sont tout à fait analogues aux expériences réalisées par Franzen sur le rubidium (35). On étudie d'abord la dynamique du pompage optique, c'est-à-dire le temps nécessaire pour atteindre l'orientation stationnaire qui résulte de la compétition entre les photons orientateurs et la relaxation. Le faisceau d'irradiation σ^+ garde une intensité constante; mais il est initialement masqué par un obturateur : le signal observé est nul, et la vapeur non irradiée n'est pas orientée. Au temps t_1 , on ouvre brusquement l'obturateur (cf figure 11a); l'intensité de lumière réémise prend

la valeur I_1 due à des atomes non orientés ($\beta = 1$); puis elle diminue jusqu'à la valeur limite stationnaire I_0 en suivant une loi exponentielle dont on démontre facilement (cf paragraphe XV-B) que la constante de temps est le temps τ_1 défini plus haut. (Sur la figure 11a, on mesure $\tau_1 = 1,2s$). L'état limite est atteint sous l'action de deux processus aléatoires indépendants dont les probabilités respectives par unité de temps sont $1/T_1$ (désorientation) et $2/3T_p$ (passage du niveau $-1/2$ au niveau $+1/2$ par absorption d'un photon); on s'en approche avec une probabilité qui est la somme de ces deux probabilités $1/\tau_1 = 1/T_1 + 2/3T_p$; on retrouve bien la formule (XII-11). On vérifie expérimentalement que $1/\tau_1$ est une fonction linéaire de l'intensité lumineuse \bar{I} (cf figure 14). On pourrait ainsi mesurer T_1 par extrapolation à intensité lumineuse nulle; mais il existe un procédé plus direct.

B - Relaxation dans le noir.

On peut étudier directement l'action de la relaxation seule, dans le noir : l'intensité I_0 étant atteinte, on interrompt alors au temps t l'irradiation pour une durée courte Δt (figure 11b). L'intensité réémitse tombe à zéro; mais sous l'effet de la relaxation la population β tend vers la valeur 1, d'équilibre thermique, suivant une loi exponentielle de constante de temps T_1 (courbe ponctuée superposée à l'oscillogramme). Au temps $t + \Delta t$, l'intensité lumineuse part donc d'une valeur intermédiaire entre I_1 et I_0 (point A) pour décrire à nouveau l'exponentielle de pompage. Si on fait varier Δt , le point initial A décrit la courbe exponentielle de relaxation dans le noir, qui se trouve matérialisée par la superposition photographique de la figure 11c (l'échelle des ordonnées est multipliée par 2 environ, pour ne représenter que la partie utile entre I_0 et I_1); on mesure ainsi directement sur l'oscillogramme $T_1 = 2$ secondes. La figure 11d représente l'application de la méthode avec une autre cellule où $T_1 = 13$ secondes (la courbe isolée est obtenue après un temps très long dans le noir; elle permet de tracer l'asymptote horizontale de l'exponentielle).

C - Transitoires de la résonance magnétique,

Cette troisième partie de la méthode est semblable aux expériences réalisées par Torrey (36) avec la résonance des protons dans l'eau. Lorsque les spins nucléaires sont soumis brusquement au champ tournant H_1 , leurs mouvements de 'mutation' s'effectuent tous en phase, et ils sont alors observables macroscopiquement, tant que la relaxation transversale ne les a pas totalement déphasés. En d'autres termes, l'interaction avec H_1 fait passer les atomes d'un état pur à une superposition cohérente d'états

$\Psi(t) = A(t) \cdot \Psi_{+1/2} + B(t) \cdot \Psi_{-1/2}$; les interactions entre atomes étant faibles,

l'amplitude $B(t)$ varie en phase pour tous les atomes, et d'après le calcul de Rabi (37), elle suit la loi en $\sin(1/2) \sqrt{\omega_1^2 + \Delta\omega^2} \cdot t$ ($\omega_1 = \gamma H_1$; $\Delta\omega = \omega - \gamma H_0$), tant que la relaxation n'a pas encore arraché les atomes à cette superposition cohérente. La population $\beta = B(t)^2$ a donc une variation sinusoidale de pulsation double $\sqrt{\omega_1^2 + \Delta\omega^2}$, amortie par la relaxation. C'est ce que montre exactement le calcul du paragraphe XV; et c'est ce que nous observons sur les figures 12 en enregistrant les variations de l'intensité lumineuse lorsque, ayant atteint l'orientation limite I_0 , on soumet brusquement les atomes à l'action de H_1 : l'intensité lumineuse réémise rejoint alors sa nouvelle valeur d'équilibre par l'intermédiaire d'une variation sinusoidale transitoire.

-a) La nouvelle valeur d'équilibre correspond à une désorientation partielle ou totale des atomes. Si à l'équilibre la résonance est saturée ($\Delta\omega = 0$, H_1 très grand; figures 12b et 12c), la désorientation est totale et l'intensité lumineuse retrouve la valeur I_1 due à des atomes désorientés. La désorientation n'est que partielle au contraire si l'on est écarté de la résonance ($\Delta\omega \neq 0$; figure 12d), ou si, à résonance, l'amplitude du champ H_1 est trop faible (figure 12a; la seconde partie de cette figure est obtenue par suppression du champ H_1 : on observe à nouveau une exponentielle de pompage optique de constante de temps τ_1 , analogue à celles des figures 11a et 11b).

-b) Pour l'interprétation des transitoires, on notera que les figures 12a, 12b et 12c ont été obtenues à résonance, avec des amplitudes croissantes du champ tournant H_1 (repérées d'après l'amplitude de la tension V_1 aux bornes du circuit de radiofréquence, proportionnelle à H_1). On vérifie à résonance ($\Delta \omega = 0$) que, conformément au calcul, l'enveloppe exponentielle de la sinusoïde est indépendante de V_1 , et que la fréquence de la sinusoïde est bien proportionnelle à V_1 (Le rapport V_1/H_1 ainsi mesuré est en bon accord avec l'ordre de grandeur calculé d'après le coefficient de self \mathcal{L} du circuit, le diamètre D et le nombre de tours n de chaque bobine : $V_1/H_1 = D \cdot \mathcal{L} \cdot \omega / (0,9n)$). On vérifie également lorsqu'on s'écarte de la résonance que la sinusoïde amortie a sa fréquence augmentée, conformément à la formule $\sqrt{\omega_1^2 + \Delta \omega^2}$ (figure 12d, obtenue avec la même amplitude H_1 que la figure 12c; cf vérification détaillée au paragraphe XV-D). Les mesures se font au centre de la résonance : la fréquence de la sinusoïde $(\gamma/2\pi)H_1$ nous permet alors une mesure précise de H_1 en valeur absolue; et la constante de temps θ de son enveloppe nous permet de calculer τ_2 grâce à la formule

$$(XIII-13) \quad \frac{2}{\theta} = \frac{1}{\tau_1} + \frac{1}{\tau_2}$$

D - La nutation dans le noir.

Le temps τ_2 , comme τ_1 , dépend de l'intensité lumineuse suivant la formule (XII-10). Pour atteindre directement T_2 , on peut observer la nutation dans le noir, comme précédemment pour T_1 nous observons la relaxation dans le noir. A cet effet, un dispositif de relais synchronisés permet, à l'instant où l'on ferme le circuit de radiofréquence pour créer H_1 , de fermer simultanément l'obturateur pour supprimer l'irradiation lumineuse. Le signal tombe à zéro; pendant ce temps la population β subit dans le noir une variation sinusoidale, de même fréquence $\omega_1/2\pi$ que précédemment, mais amortie moins vite puisque les photons ne contribuent plus à cet amortissement. Lorsqu'on rétablit la lumière, un instant Δt plus tard, l'intensité initiale observée

représente la population à laquelle avait conduit cette évolution dans le noir. En faisant varier Δt , on peut ainsi décrire point par point la sinusoïde de nutation dans le noir. En pratique, seule nous intéresse son enveloppe; aussi choisissons-nous Δt égal à un nombre entier de fois la période de la sinusoïde, de façon à n'obtenir que ses maxima, comme on le voit sur les figures 13a et 13c. Si l'on réalise directement la superposition photographique de ces courbes (figure 13d), on matérialise l'enveloppe de la sinusoïde de nutation dans le noir et on mesure sa constante de temps τ , d'où l'on tire aussitôt T_2 grâce à la formule suivante déduite de (XIII-13) :

$$(XIII-14) \quad \tau = \frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2}$$

(La comparaison des figures 13b et 13d illustre bien la différence entre les temps θ et τ).

L'interprétation des transitoires de ^{201}Hg serait assez différente (cf paragraphe XVI) parce que les phénomènes sont beaucoup plus compliqués dans le cas de 4 niveaux. Nous n'en parlons pas ici puisque nous ne les avons pas encore observés. L'application de cette méthode dynamique à ^{201}Hg est en effet rendue plus difficile par des temps de relaxation beaucoup plus courts. Le temps de fermeture et d'ouverture de l'obturateur photographique inversé, de grand diamètre (6 cm) actuellement utilisé ne serait peut-être plus assez court par rapport à des temps de relaxation de l'ordre de quelques centièmes de seconde; mais il nous permettrait au moins d'observer avec des déformations l'allure des phénomènes transitoires. Ce qui nous a empêché de les observer jusqu'ici, c'est le fort niveau de bruit à basse fréquence du signal des photomultiplicateurs, probablement dû à notre source lumineuse. Si aucun filtre de fréquence n'élimine certaines composantes de ce bruit, son niveau atteint 3 à 5% du signal de résonance optique total. Or les variations des signaux observés avec ^{201}Hg , lorsque le diamètre de l'obturateur photographique réduit l'ouverture du faisceau lumineux d'irradiation, ne dépassent pas 10% du signal de résonance optique; le rapport signal/bruit est beaucoup trop faible dans ces conditions pour permettre des mesures. Les longs temps de relaxation de ^{199}Hg nous permettent de gagner sur ce rapport de deux manières :

a) ils augmentent l'amplitude des signaux observés - b) ils permettent l'utilisation à la détection d'un filtre passe-bas éliminant une grande partie du spectre de bruit (en particulier les composantes voisines de 50 c/s). Dans la méthode statique, le galvanomètre avec sa constante de temps d'environ 10 secondes joue le rôle d'un filtre à très basse fréquence, et permet le tracé de courbes de résonance avec un rapport signal/bruit acceptable même lorsque le signal ne vaut qu'environ 1^o/o du signal de résonance optique.

XIV - La méthode de calcul.

Nous nous proposons maintenant de justifier par le calcul les formules citées dans les deux paragraphes précédents. Des calculs détaillés de forme de raie ont été effectués pour ce type de problème par Brossel (3) et Winter (38). L'un et l'autre utilisent les résultats des calculs de Rabi (37) et Majorana (39) sur les probabilités de transition entre sous-niveaux Zeeman dans un champ tournant; mais ceci n'est possible que si l'on suppose l'existence d'une probabilité par unité de temps définie pour que la perturbation de nature aléatoire (relaxation, absorption ou émission d'un photon) arrache l'atome à la superposition cohérente d'états dans laquelle l'a placée le champ tournant. Cette hypothèse n'est compatible qu'avec des durées de vie égales des différents sous-niveaux Zeeman; dans le cas de l'état fondamental, traité par Winter, cela signifie une excitation 'broad line', dans laquelle les probabilités d'excitation optique $1/T_m$ sont égales pour les différents sous-niveaux m. Cette hypothèse n'est plus vérifiée dans le cas d'excitation avec une composante hyperfine sélectionnée; et cela nous oblige à résoudre le problème de manière différente.

Nous traitons le problème à l'aide du formalisme de la matrice

densité $\rho(t) = \overline{|\psi(t)\rangle \langle \psi^*(t)|}$ (la barre représente la moyenne sur tous les atomes), dont les termes diagonaux ρ_{mm} représentent les populations X_m des sous-niveaux Zeeman. Son évolution au cours du temps est définie par l'équation suivante, que nous allons expliquer :

$$(XIV-15) \quad \frac{dp}{dt} = -i \left[\mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1(t), \rho \right] + \rho_R + \rho_L$$

\mathcal{H}_0 est l'Hamiltonien statique : $\mathcal{H}_0 = \gamma H_0 I_z$

$\mathcal{H}_1(t)$ est l'Hamiltonien d'interaction avec le champ H_1 tournant à la vitesse ω :

$$\mathcal{H}_1(t) = \frac{\gamma H_1}{2} (I_+ e^{-i\omega t} + I_- e^{+i\omega t})$$

(Remarque : l'assimilation du champ linéaire alternatif de radiofréquence à un champ tournant unique ne pose aucun problème dans notre cas; nous utilisons toujours des amplitudes H_1 assez faibles pour que le déplacement relatif de fréquence $(H_1/2H_0)^2$ calculé par Bloch et Siegert (40) soit totalement négligeable).

\mathcal{H}_0 et $\mathcal{H}_1(t)$ représentent des interactions auxquelles tous les atomes sont également soumis à chaque instant; c'est ce qui permet de calculer leurs effets directement sur la matrice $\rho(t)$. Au contraire, les Hamiltoniens $\mathcal{H}_R(t)$ représentant la relaxation, et $\mathcal{H}_L(t)$ représentant l'irradiation lumineuse sont aléatoires au cours du temps et différents d'un atome à l'autre; il faut donc calculer séparément les termes correspondant à chaque atome, puis faire leur moyenne pour obtenir les matrices ρ_R et ρ_L représentant leur contribution à l'évolution de $\rho(t)$.

On suppose associé à la perturbation aléatoire $\mathcal{H}_R(t)$ représentant la relaxation un temps de corrélation τ_c . La contribution d'un Hamiltonien de ce type à l'évolution de $\rho(t)$ a été calculée dans des cas très généraux (41). Dans l'hypothèse dite du rétrécissement par le mouvement, $\mathcal{H}_R \cdot \tau_c \ll 1$, la matrice ρ_R est calculable à partir des éléments ρ_{mn} de la matrice ρ et des éléments de matrice de \mathcal{H}_R ; les éléments ρ_{Rmn} de la matrice ρ_R sont des combinaisons linéaires des éléments ρ_{mn} . En l'absence de renseignements sur la perturbation $\mathcal{H}_R(t)$, nous utiliserons le modèle suivant :

$$(XIV-16) \quad \left\{ \begin{array}{l} \rho_{Rmn} = \frac{1 - \rho_{mn}}{T_1} \\ \rho_{Rmn} = -\frac{\rho_{mn}}{T_2} \end{array} \right. \quad (m \neq n)$$

On montre que dans le cas d'un système à 2 niveaux (^{199}Hg par exemple) ce modèle à 2 constantes T_1 et T_2 est le plus général possible. Dans le cas d'un système à plus de 2 niveaux (^{201}Hg par exemple), ρ_R a en général une forme beaucoup plus compliquée, avec plus de 2 constantes. Il est même peu probable que le modèle simplifié que nous avons choisi puisse correspondre à une perturbation $\mathcal{H}_R(t)$ réelle.

Pour expliciter l'action des photons, il faut faire appel à la théorie quantique des champs (42). On trouve que la matrice ρ_L a la forme générale d'une matrice de relaxation. On peut distinguer en réalité deux processus différents : l'absorption des photons, et la retombée de l'état excité. Du moment que le champ H_0 est assez fort pour que la largeur naturelle de la raie soit petite devant la séparation des sous-niveaux Zeeman de l'état excité, la retombée se fait dans des états purs, et n'apporte pas de contribution aux termes non diagonaux de ρ_L ; sa contribution aux termes diagonaux se calcule à l'aide des probabilités de transition optique (cf formule (VI-8)). On obtient par exemple en irradiation σ^+ avec une seule composante hyperfine :

$$(XIV-17) \quad \begin{cases} \rho_{Lmm} = -\frac{1}{T_m} \rho_{mm} + \sum_n \frac{3\lambda^2}{8\pi r} \Phi \cdot A_n^{F,n+1} \cdot A_m^{F,n+1} \cdot \rho_{nn} \\ \rho_{Lmn} = -\frac{1}{2} \left(\frac{1}{T_m} + \frac{1}{T_n} \right) \rho_{mn} \quad (m \neq n) \end{cases}$$

Quand on veut résoudre le système (XIV-15), on remarque que, au second membre, seul le premier terme dépend explicitement du temps. Si nous passons dans le référentiel tournant à la vitesse ω du champ H_1 , en définissant les nouvelles fonctions d'onde ψ' et la nouvelle matrice densité ρ' par :

$$(XIV-18) \quad \psi = e^{-i\omega I_z t} \cdot \psi' \quad \text{et} \quad \rho = e^{-i\omega I_z t} \cdot \rho' \cdot e^{+i\omega I_z t}$$

l'équation (XIV-15) se transforme alors en l'équation (XIV-19) dont le second membre ne dépend plus explicitement du temps :

$$(XIV-19) \quad \left\{ \begin{array}{l} \frac{d\rho'}{dt} = -i [\mathcal{H}', \rho'] + \rho'_R + \rho'_L \\ \text{avec } \mathcal{H}' = (\gamma H_0 - \omega) I_z + \frac{\gamma H_1}{2} (I_+ + I_-) = -\Delta \omega I_z + \frac{\omega_1}{2} (I_+ + I_-) \end{array} \right.$$

En effet le nouvel Hamiltonien \mathcal{H}' ne dépend plus du temps; et les matrices ρ'_R et ρ'_L , transformées de ρ_R et ρ_L , ne dépendent pas non plus explicitement du temps, puisque la forme particulière des matrices ρ_R et ρ_L fait que l'on obtient ρ'_R et ρ'_L par simple substitution des nouvelles variables ρ'_{mn} à la place des anciennes variables ρ_{mn} .

Comme notre méthode de détection, à la différence d'autres méthodes (5), n'est sensible qu'aux variations des populations $X_m = \rho_{mm} = \rho'_{mm}$ des sous-niveaux Zeeman, nous n'aurons pas besoin pour interpréter les résultats du calcul de passer à nouveau au référentiel fixe. Et nous avons l'avantage dans le référentiel tournant, lorsque nous cherchons la solution stationnaire (populations d'équilibre), d'obtenir un simple système linéaire en écrivant $\frac{d\rho'}{dt} = 0$. La résolution du système différentiel dans le cas général nous permettra de calculer les phénomènes transitoires.

XV - Cas du ¹⁹⁹Hg (spin 1/2).

Nous choisissons dans le référentiel tournant les notations :

$$\left\{ \begin{array}{l} \psi'(t) = a(t) \psi'_{+1/2} + b(t) \psi'_{-1/2} \\ \rho'(t) = \begin{vmatrix} \overline{aa^*} & \overline{ab^*} \\ \overline{ba^*} & \overline{bb^*} \end{vmatrix} \end{array} \right.$$

avec $\mathcal{H}' = \begin{vmatrix} -\Delta\omega/2 & +\omega_1/2 \\ +\omega_1/2 & +\Delta\omega/2 \end{vmatrix}$, on obtient :

$$-i[\mathcal{H}', \rho'] = \begin{vmatrix} +\frac{i\omega_1}{2} (\overline{ab^*} - \overline{ba^*}) & +\frac{i\omega_1}{2} (\overline{aa^*} - \overline{bb^*}) + i\Delta\omega \overline{ab^*} \\ -\frac{i\omega_1}{2} (\overline{aa^*} - \overline{bb^*}) - i\Delta\omega \overline{ba^*} & -\frac{i\omega_1}{2} (\overline{ab^*} - \overline{ba^*}) \end{vmatrix}$$

les formules (XIV-16) donnent $\rho_R' = \left\| \begin{array}{cc} \frac{1 - \overline{aa^*}}{T_1} & - \frac{\overline{ab^*}}{T_2} \\ - \frac{\overline{ba^*}}{T_2} & \frac{1 - \overline{bb^*}}{T_1} \end{array} \right\|$

les formules (XIV-17) donnent $\rho_L' = \left\| \begin{array}{cc} + \frac{2}{3T_p} \overline{bb^*} & - \frac{\overline{ab^*}}{T_p} \\ - \frac{\overline{ba^*}}{T_p} & \left(- \frac{2}{T_p} + \frac{4}{3T_p} \right) \overline{bb^*} \end{array} \right\|$

en supposant l'irradiation en G^+ à partir d'une lampe à ^{204}Hg excitant la seule composante $199 - 1/2$ et qui n'excite donc pas les atomes du sous-niveau $+ 1/2$:

(XV-20) $1/T_{+1/2} = 0$ et donc $1/T_{-1/2} = 2/T_p$ (d'après (VI- 4))

L'équation (XIV-19) fournit alors un système de 4 équations différentielles linéaires à 4 fonctions inconnues, dont 3 seulement sont indépendantes; elles sont liées par la condition de normalisation des populations :

$$\alpha + \beta = \overline{aa^*} + \overline{bb^*} = 2$$

Ce système est grandement simplifié par le choix des nouvelles inconnues :

(XV-21) $M = \alpha - \beta = \overline{aa^*} - \overline{bb^*}$; $u = \overline{ab^*} + \overline{ba^*}$; $v = i (\overline{ab^*} - \overline{ba^*})$

Il s'écrit alors :

(XV-22)
$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dM}{dt} = - \frac{1}{\tau_1} M + \omega_1 v + \frac{4}{3T_p} \\ \frac{du}{dt} = - \frac{1}{\tau_2} u + \Delta \omega v \\ \frac{dv}{dt} = - \omega_1 M - \Delta \omega u - \frac{1}{\tau_2} v \end{array} \right. \text{ avec } \left\{ \begin{array}{l} \frac{1}{\tau_2} = \frac{1}{T_2} + \frac{1}{T_p} \\ \frac{1}{\tau_1} = \frac{1}{T_1} + \frac{2}{3T_p} \end{array} \right.$$

Au changement près de τ_1 en T_1 et de τ_2 en T_2 , ce système est identique aux équations macroscopiques de Bloch (34). Mais avec la méthode de détection radio-électrique généralement utilisée on observe u et v , tandis que l'intensité lumi-

neuse de résonance optique que nous observons est proportionnelle à $\beta = \overline{bb^*} = 1 - \frac{M}{2}$.

A. La forme de la raie de résonance est donnée par la solution stationnaire de ce système différentiel, dénotée par l'indice s :

$$(XV-23) \quad M_s(\Delta\omega) = M_0 \left[1 - Z(\Delta\omega) \right] \quad \text{avec} \quad \begin{cases} M_0 = \frac{4\tau_1}{3T_p} \\ Z(\Delta\omega) = \frac{\omega_1^2 \frac{\tau_1}{\tau_2}}{\Delta\omega^2 + \frac{1}{\tau_2} + \omega_1^2 \frac{\tau_1}{\tau_2}} \end{cases}$$

L'indice 0 sert à dénoter l'état d'orientation obtenu en l'absence de radiofréquence ($\omega_1 = 0$); on retrouve bien le résultat du paragraphe VI (tableau I). La différence de population M_0 croît avec l'intensité lumineuse $1/T_p$ et tend vers 2 (orientation totale) quand $1/T_p \rightarrow \infty$. La forme des courbes de résonance est donnée par $Z(\Delta\omega)$; c'est l'équation d'une courbe de Lorentz. Cela correspond bien aux courbes observées (figure 7). A saturation de la résonance ($\omega_1 \rightarrow \infty$) $Z \rightarrow 1$, c'est-à-dire que la différence de population M_s devient nulle; l'orientation est totalement détruite. De $Z(\Delta\omega)$ on déduit la largeur à mi-hauteur L des courbes de résonance exprimée en fréquence :

$$(XV-24) \quad L^2 = \left(\frac{1}{\pi\tau_2} \right)^2 + \left(\frac{\chi}{\pi} \right)^2 \frac{\tau_1}{\tau_2} H_1^2$$

Le carré de la largeur varie linéairement en fonction de H_1^2 ; on retrouve bien la formule (XII-12) dans laquelle le coefficient K est explicité en fonction des deux temps τ_1 et τ_2 définis par les formules (XII-10) et (XII-11) que nous avons retrouvées en (XV-22). Nous avons déjà dit comment le tracé de la 'droite des largeurs' nous permet de mesurer expérimentalement le 'temps de cohérence' τ_2 ; on vérifie bien qu'il est conditionné pour une part par l'absorption des photons, et qu'il est une fonction linéaire de l'intensité lumineuse.

L'amplitude relative de la résonance en son centre (divisée par l'amplitude à saturation de la résonance) est $Z(0)$. On vérifie que :

$$(XV-25) \quad Z(0) \cdot L^2 = \frac{\omega_1^2}{\pi^2} \cdot \frac{\tau_1}{\tau_2} = \left(\frac{\chi}{\pi}\right)^2 \frac{\tau_1}{\tau_2} H_1^2$$

Le produit $Z(0) \cdot L^2$ est donc représenté en fonction de H_1^2 par une droite parallèle à la "droite des largeurs" et passant par l'origine. Cette propriété est bien vérifiée expérimentalement (cf figure 8, droite n° 2). On a là un moyen très simple de tester la régularité d'un réseau de courbes et d'améliorer l'extrapolation de la largeur limite $1/\pi\tau_2$.

B. Les transitoires du pompage optique en l'absence de radio-fréquence sont calculés en faisant $\omega_1 = 0$ dans la première équation du système (XV-22). Ils représentent l'action de la lumière pompante sur les atomes à partir d'un état d'orientation initial M_i arbitraire :

$$(XV-26) \quad M = M_0 + (M_i - M_0) e^{-t/\tau_1}.$$

On doit observer une exponentielle dont la constante de temps est le temps τ_1 défini en (XII-11). Ce résultat justifie les affirmations du paragraphe XIII-A; il aurait pu aussi bien être déduit des formules du paragraphe VI.

C. Les transitoires à résonance ($\Delta\omega = 0$) sont plus faciles à calculer que dans le cas général parce que le système (XV-22) se réduit aux 2 équations en dM/dt et dv/dt . Au contraire de Torrey (36), nous éliminons v ; cela nous conduit à l'équation différentielle du second ordre à coefficients constants :

$$(XV-27) \quad \frac{d^2M}{dt^2} + \left(\frac{1}{\tau_1} + \frac{1}{\tau_2}\right) \frac{dM}{dt} + \left(\omega_1^2 + \frac{1}{\tau_1 \tau_2}\right) M = \frac{4}{3\tau_2 T_p}$$

Si $\omega_1 < \frac{1}{2} \left(\frac{1}{\tau_2} - \frac{1}{\tau_1}\right)$ la solution est une somme de deux exponentielles,

qui fait passer la différence de population de M_0 à $M_s(0) \simeq M_0$ puisque ω_1 est très petit. Ce cas ne présente donc pas d'intérêt expérimentalement.

Si $\omega_1 > \frac{1}{2} \left(\frac{1}{\tau_2} - \frac{1}{\tau_1} \right)$ les solutions de l'équation caractéristique sont :

$$-\frac{1}{2} \left(\frac{1}{\tau_2} + \frac{1}{\tau_1} \right) \pm i \sqrt{\omega_1^2 - \frac{1}{4} \left(\frac{1}{\tau_2} - \frac{1}{\tau_1} \right)^2}$$

La solution est le produit d'une exponentielle et d'un terme périodique. Dans tous les cas où le terme périodique varie assez vite pour être expérimentalement observable avant d'être complètement amorti, c'est-à-dire si

$\omega_1 \gg \frac{1}{2} \left(\frac{1}{\tau_2} - \frac{1}{\tau_1} \right)$, on peut négliger le deuxième terme sous le radical; et on obtient la solution :

$$(XV-28) \quad M = M_s(0) + \left[M_0 - M_s(0) \right] e^{-\frac{1}{2} \left(\frac{1}{\tau_1} + \frac{1}{\tau_2} \right) t} \left[\cos \omega_1 t + \frac{\frac{1}{\tau_1} + \frac{1}{\tau_2}}{2\omega_1} \sin \omega_1 t \right]$$

On doit observer une sinusoïde de fréquence $\gamma H_1 / 2\pi$, amortie exponentiellement avec la constante de temps θ , dont nous avons déjà donné la valeur :

$$(XIII-13) \quad \frac{2}{\theta} = \frac{1}{\tau_2} + \frac{1}{\tau_1}$$

Nous avons vérifié que la fréquence de la sinusoïde est bien proportionnelle à H_1 et que son enveloppe exponentielle en est indépendante (cf paragraphe XIII-C).

D. Les transitoires dans le cas général, hors résonance, s'obtiennent en résolvant le système différentiel complet. L'élimination de u et v conduit à l'équation différentielle du 3ème ordre :

$$(XV-29) \quad \frac{d^3 M}{dt^3} + \left(\frac{1}{\tau_1} + \frac{2}{\tau_2} \right) \frac{d^2 M}{dt^2} + \left(\Delta \omega^2 + \frac{1}{\tau_2^2} + \frac{2}{\tau_1 \tau_2} + \omega_1^2 \right) \frac{dM}{dt} + \frac{1}{\tau_1} \left(\Delta \omega^2 + \frac{1}{\tau_2^2} + \omega_1^2 \right) \frac{\tau_1}{\tau_2} M = \frac{4}{3T_p} \left(\Delta \omega^2 + \frac{1}{\tau_2^2} \right)$$

son équation caractéristique peut s'écrire :

$$(XV-30) \quad \left[x^2 + \left(\frac{1}{\tau_1} + \frac{1}{\tau_2} \right) x + \Delta\omega^2 + \frac{1}{\tau_1 \tau_2} + \omega_1^2 \right] \cdot \left(x + \frac{1}{\tau_2} \right) = \Delta\omega^2 \left(\frac{1}{\tau_2} - \frac{1}{\tau_1} \right)$$

Si l'on suppose encore $\omega_1 \gg \frac{1}{2} \left(\frac{1}{\tau_2} - \frac{1}{\tau_1} \right)$, on peut calculer des solutions approchées à partir des solutions exactes que l'on connaît dans le cas particulier $\tau_1 = \tau_2$:

$$(XV-31) \quad \begin{cases} -q = -\frac{1}{\tau_2} + \left(\frac{1}{\tau_2} - \frac{1}{\tau_1} \right) \frac{\Delta\omega^2}{\Delta\omega^2 + \omega_1^2} \\ -k \pm i\bar{\omega} = -\frac{1}{2} \left(\frac{1}{\tau_2} + \frac{1}{\tau_1} \right) - \frac{1}{2} \left(\frac{1}{\tau_2} - \frac{1}{\tau_1} \right) \frac{\Delta\omega^2}{\Delta\omega^2 + \omega_1^2} \pm i\sqrt{\Delta\omega^2 + \omega_1^2} \end{cases}$$

$$M = M_s(\Delta\omega) + [M_o - M_s(\Delta\omega)] \left\{ e^{-kt} \left[(1-C) \cos \bar{\omega} t + \frac{k+(q-k)C}{\bar{\omega}} \sin \bar{\omega} t \right] + C e^{-qt} \right\}$$

avec $C \simeq \left(1 - \frac{\tau_2}{\tau_1} \right) \frac{\Delta\omega^2}{\Delta\omega^2 + \omega_1^2}$

La figure observée est encore une sinusoïde amortie; mais sa fréquence de résonance est plus grande qu'au centre de la résonance, à même amplitude de H_1 ; son amplitude est moindre, et elle se trouve centrée sur une autre exponentielle. Nous avons vérifié numériquement ces formules sur la figure 12d, obtenue avec la même amplitude H_1 que la figure 12c (sur cette dernière, on mesure $\gamma H_1 / 2\pi \simeq 11c/s$), mais en imposant un écart à la résonance $\Delta\omega / 2\pi = 12,5 c/s$.

XVI - Cas du ^{201}Hg en alignement.

Le calcul s'effectue de manière analogue au précédent et nous le détaillons moins. Les symétries liées à l'alignement compensent un peu la complexité due à l'existence de 4 sous-niveaux. Nous choisissons dans le référentiel tournant les notations :

$$\psi'(t) = a(t)\psi'_{+3/2} + b(t)\psi'_{+1/2} + c(t)\psi'_{-1/2} + g(t)\psi'_{-3/2}$$

Rappelons qu'avec les notations choisies pour les populations au paragraphe V :

$$\alpha = \overline{aa^*} ; \beta = \overline{bb^*} ; \gamma = \overline{cc^*} ; \eta = \overline{gg^*}$$

L'Hamiltonien s'écrit :

$$H' = \begin{vmatrix} -3\Delta\omega/2 & \omega_1 \sqrt{3}/2 & 0 & 0 \\ \omega_1 \sqrt{3}/2 & -\Delta\omega/2 & \omega_1 & 0 \\ 0 & \omega_1 & +\Delta\omega/2 & \omega_1 \sqrt{3}/2 \\ 0 & 0 & \omega_1 \sqrt{3}/2 & +3\Delta\omega/2 \end{vmatrix}$$

Comme matrice de relaxation, nous avons choisi arbitrairement :

$$\rho_R' = \begin{vmatrix} (1 - \overline{aa^*})/T_1 & -\overline{ab^*}/T_2 & -\overline{ac^*}/T_2 & -\overline{ag^*}/T_2 \\ -\overline{ba^*}/T_2 & (1 - \overline{bb^*})/T_1 & -\overline{bc^*}/T_2 & -\overline{bg^*}/T_2 \\ -\overline{ca^*}/T_2 & -\overline{cb^*}/T_2 & (1 - \overline{cc^*})/T_1 & -\overline{cg^*}/T_2 \\ -\overline{ga^*}/T_2 & -\overline{gb^*}/T_2 & -\overline{gc^*}/T_2 & (1 - \overline{gg^*})/T_1 \end{vmatrix}$$

Il est peu probable qu'une interaction réelle puisse jamais conduire à une matrice de ce type. Il ne faudra donc pas s'étonner si nous rencontrons certains désaccords avec l'expérience (cas de l'orientation, cf paragraphe XVII). Mais les conclusions que nous en tirons dans le cas de l'alignement sont bien vérifiées.

Pour la matrice d'irradiation lumineuse, nous devons distinguer deux cas. Si l'on excite la composante 201-5/2 seule avec une lampe à ^{204}Hg :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{1}{T_{+3/2}} = \frac{1}{T_{-3/2}} = \frac{1,1}{T_p} \quad \text{et} \quad \frac{1}{T_{+1/2}} = \frac{1}{T_{-1/2}} = \frac{0,9}{T_p} \\ \rho_R 3/2,3/2 = -\frac{1,1}{T_p} \overline{aa^*} + \frac{1,01 \overline{aa^*} + 0,24 \overline{bb^*} + 0,03 \overline{cc^*}}{T_p} \\ \rho_R 1/2,1/2 = -\frac{0,9}{T_p} \overline{bb^*} + \frac{0,06 \overline{aa^*} + 0,45 \overline{bb^*} + 0,18 \overline{cc^*} + 0,03 \overline{gg^*}}{T_p} \end{array} \right.$$

Si l'on excite la composante 201-3/2 seule avec une lampe à ^{198}Hg :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{1}{T_{+3/2}} = \frac{1}{T_{-3/2}} = \frac{0,6}{T_p} \quad \text{et} \quad \frac{1}{T_{+1/2}} = \frac{1}{T_{-1/2}} = \frac{1,4}{T_p} \\ \rho_{R \ 3/2, 3/2} = -\frac{0,6}{T_p} \overline{aa^*} + \frac{0,24 \overline{aa^*} + 0,36 \overline{bb^*} + 0,32 \overline{cc^*}}{T_p} \\ \rho_{R \ 1/2, 1/2} = -\frac{1,4}{T_p} \overline{bb^*} + \frac{0,04 \overline{aa^*} + 0,66 \overline{bb^*} + 0,053 \overline{cc^*} + 0,32 \overline{gg^*}}{T_p} \end{array} \right.$$

Dans les deux cas on en déduit $\rho_{R-3/2, -3/2}$ et $\rho_{R-1/2, -1/2}$ par symétrie. En écrivant l'équation (XIV-19) d'évolution de la matrice densité, on obtient un système de 16 équations différentielles. On le simplifie d'abord, comme dans le cas de ¹⁹⁹Hg, en choisissant les nouvelles variables qui sont indiquées ci-dessous. La symétrie des termes d'irradiation lumineuse par rapport aux sous-niveaux $^+ m_I$ met en évidence sur ce nouveau système différentiel les symétries suivantes qui réduisent à 5 le nombre de variables :

$$(XVI-32) \left\{ \begin{array}{l} \overline{aa^*} + \overline{bb^*} = \overline{gg^*} + \overline{cc^*} = 2 \text{ par normalisation} \\ D = \overline{aa^*} - \overline{bb^*} = \overline{gg^*} - \overline{cc^*} \\ u = \overline{ab^*} + \overline{ba^*} = -(\overline{gc^*} + \overline{cg^*}) \\ v = i(\overline{ab^*} - \overline{ba^*}) = i(\overline{gc^*} - \overline{cg^*}) \\ x = \overline{ac^*} + \overline{ca^*} = \overline{gb^*} + \overline{bg^*} \\ y = i(\overline{ac^*} - \overline{ca^*}) = -i(\overline{gb^*} - \overline{bg^*}) \end{array} \right. \left\{ \begin{array}{l} \overline{bc^*} + \overline{cb^*} = 0 \\ i(\overline{bc^*} - \overline{cb^*}) = 0 \\ \overline{ag^*} + \overline{ga^*} = 0 \\ i(\overline{ag^*} - \overline{ga^*}) = 0 \end{array} \right.$$

Le système se réduit alors aux 5 équations différentielles :

$$(XVI-33) \left\{ \begin{array}{l} \frac{dD}{dt} = \frac{C}{T_p} - \frac{1}{\tau_1} D + \omega_1 \sqrt{3} \cdot v \\ \frac{dv}{dt} = -\omega_1 \sqrt{3} \cdot D - \frac{1}{\tau_2} v - \Delta\omega \cdot u - \omega_1 x \\ \frac{du}{dt} = + \Delta\omega v - \frac{1}{\tau_2} u + \omega_1 y \\ \frac{dx}{dt} = + \omega_1 v - \frac{1}{\tau_2} x + 2\Delta\omega y \\ \frac{dy}{dt} = -\omega_1 u - 2\Delta\omega x - \frac{1}{\tau_2} y \end{array} \right. \text{avec } \frac{1}{\tau_2} = \frac{1}{T_2} + \frac{1}{T_p} \quad \text{et} \quad \frac{1}{\tau_1} = \frac{1}{T_1} + \frac{k}{T_p}$$

Si l'on excite la composante 201-5/2 seule : $k = 0,36$; $C = 0,36$

Si l'on excite la composante 201-3/2 seule : $k = 1,04$; $C = 0,64$

A. La solution stationnaire, dénotée par l'indice s , nous donne encore ici la forme de raie. L'élimination de x, y, u, v conduit à :

$$(XVI-34) \left\{ \begin{array}{l} D_s(\Delta\omega) = D_0 \left[1 - Y(\Delta\omega) \right] \quad \text{avec } D_0 = C \frac{\tau_1}{T_p} \quad \text{et :} \\ Y(\Delta\omega) = \frac{3 \frac{\tau_1}{\tau_2} \omega_1^2 (4\Delta\omega^2 + \omega_1^2 + 1/\tau_2^2)}{(4\Delta\omega^2 + 4\omega_1^2 + \frac{1}{\tau_2^2}) (\Delta\omega^2 + \omega_1^2 + \frac{1}{\tau_2^2}) + 3(\frac{\tau_1}{\tau_2} - 1)\omega_1^2 (4\Delta\omega^2 + \omega_1^2 + \frac{1}{\tau_2^2})} \end{array} \right.$$

D_0 représente la différence de population entre les niveaux $\pm 3/2$ et $\pm 1/2$ atteinte par le pompage en alignement, en l'absence de radiofréquence; on retrouve bien le résultat du paragraphe VI (tableau II). D_0 croît avec l'intensité lumineuse $1/T_p$; et lorsque celle-ci devient infinie, $D_0 \rightarrow 1$ si l'on excite la composante 201 - 5/2, et $D_0 \rightarrow 0,62$ si l'on excite la composante 201 - 3/2.

$Y(\Delta\omega)$ représente la forme des raies de résonance. Elle ressemble à la formule B obtenue par Brossel (3) dans l'étude de la résonance du niveau excité 6^3P_1 du mercure; mais elle ne s'y réduit que si $\tau_1 = \tau_2$. Il existe une relation linéaire entre leurs inverses:

$$(XVI-35) \left\{ \begin{array}{l} B = \frac{3\omega_1^2 (4\Delta\omega^2 + \omega_1^2 + 1/\tau_2^2)}{(4\Delta\omega^2 + 4\omega_1^2 + \frac{1}{\tau_2^2}) (\Delta\omega^2 + \omega_1^2 + \frac{1}{\tau_2^2})} \\ \frac{1}{Y} = \frac{\tau_2}{\tau_1} \cdot \frac{1}{B} + 1 - \frac{\tau_2}{\tau_1} \end{array} \right.$$

On retrouve donc sur $Y(\Delta\omega)$ les deux maxima latéraux calculés sur B lorsque $\omega_1 \tau_2 > \frac{1}{2\sqrt{2}}$. Aux fortes puissances de radiofréquence, lorsque $\omega_1 \rightarrow \infty$, ces maxima se situent à $\Delta\omega \sim \gamma H_1 / \sqrt{2}$, et $Y(\Delta\omega)$ y prend la valeur 1, correspondant à l'égalisation des populations.

Le centre de la résonance par contre ne correspond jamais, même à saturation, à l'égalisation des populations :

$$(XVI-36) \quad Y(0) = \frac{3 \frac{\tau_1}{\tau_2} \omega_1^2}{(3 \frac{\tau_1}{\tau_2} + 1) \omega_1^2 + \frac{1}{\tau_2^2}} \rightarrow Y_M = \frac{3 \frac{\tau_1}{\tau_2}}{3 \frac{\tau_1}{\tau_2} + 1} \quad \text{quand } \omega_1 \rightarrow \infty$$

Si l'on excite la composante 201-5/2, on doit s'attendre à avoir $\tau_1 > \tau_2$ et Y_M doit être compris entre 0,75 et 1; c'est bien ce que nous vérifions expérimentalement. Si l'on excite la composante 201-3/2, et si $T_1 \simeq T_2$, on doit avoir $\tau_1 \simeq \tau_2$ et $Y_M \simeq 0,75$ comme avec la formule B; c'est bien ce que nous vérifions sur le réseau de courbes de la figure 5. Des formules précédentes, on déduit encore :

$$(XVI-37) \quad \frac{Y_M}{Y(0)} \omega_1^2 = \omega_1^2 + \frac{1}{\tau_2^2 (1 + 3 \frac{\tau_1}{\tau_2})}$$

c'est-à-dire que, si l'on porte $V_1^2 \cdot Y_M / Y(0)$ en fonction de V_1^2 (V_1 est la tension aux bornes du circuit de radiofréquence, proportionnelle à H_1), on doit obtenir une droite de pente 1. Nous le vérifions expérimentalement (droite n° 2 de la figure 9): nous avons là un moyen de tester la régularité d'un réseau de courbes.

La largeur à mi-hauteur L (exprimée en fréquence) est toujours définie par rapport à l'ordonnée centrale $Y(0)$ sans tenir compte des maxima latéraux. Lorsqu'on cherche l'écart $\Delta \omega_L$ pour que $Y(\Delta \omega_L) = Y(0)/2$, on trouve que $(\Delta \omega_L \tau_2)^2$ est décrit en fonction de $(\omega_1 \tau_2)^2$ par une branche d'hyperbole très aplatie sur son asymptote. L'équation de cette dernière est :

$$(\Delta \omega_L \tau_2)^2 = \frac{1}{8} \left[3 + \frac{13 + 15 \frac{\tau_1}{\tau_2}}{2 \sqrt{10 \frac{\tau_1}{\tau_2}}} \right] + \left[\frac{3}{2} \left(1 + \frac{\tau_1}{\tau_2} \right) + \sqrt{10 \frac{\tau_1}{\tau_2}} \right] (\omega_1 \tau_2)^2$$

la tangente à l'origine a une équation plus simple :

$$(\Delta \omega_L \tau_2)^2 = 1 + \left(2,8 + 3 \frac{\tau_1}{\tau_2} \right) (\omega_1 \tau_2)^2$$

Une étude numérique détaillée à partir de ces équations permet de montrer que l'on peut dans tous les cas remplacer cette hyperbole par une droite avec une très bonne approximation, même aux fortes valeurs de $\omega_1 \tau_2$:

$$(\Delta \omega_L \tau_2)^2 = 1 + (3,30 + 2,80 \frac{\tau_1}{\tau_2}) (\omega_1 \tau_2)^2 \text{ à } 2\% \text{ près si } 1 \leq \frac{\tau_1}{\tau_2} \leq 3$$

$$(XVI-38) \quad \boxed{L^2 = \left(\frac{1}{\pi \tau_2} \right)^2 + (3,30 + 2,80 \frac{\tau_1}{\tau_2}) \left(\frac{\nu}{\pi} \right)^2 H_1^2}$$

On vérifie bien expérimentalement l'existence de cette "droite des largeurs" (droite n° 1 de la figure 9). Son tracé nous sert systématiquement à obtenir par extrapolation la largeur limite à H_1 nul, pour mesurer le temps τ_2 qui dans ce cas encore joue le rôle du "temps de cohérence".

B. Le calcul des transitoires - On peut d'abord, comme dans le cas de ^{199}Hg , calculer les transitoires du pompage optique en l'absence de radiofréquence; le calcul est aussi facile, et la solution est encore une exponentielle dont la constante de temps est le temps τ_1 de la formule (XII-11).

Nous ne résoudrons pas le système différentiel dans le cas général, mais seulement dans le cas particulier du centre de la résonance : $\Delta \omega = 0$. Le système se réduit alors aux 3 équations en D , v et x ; en éliminant ces deux dernières variables on obtient l'équation différentielle du 3ème ordre à coefficients constants :

$$(XVI-39) \quad \frac{d^3 N}{dt^3} + \left(\frac{1}{\tau_1} + \frac{2}{\tau_2} \right) \frac{d^2 N}{dt^2} + \left(4 \omega_1^2 + \frac{1}{\tau_2^2} + \frac{2}{\tau_1 \tau_2} \right) \frac{dN}{dt} + \frac{1}{\tau_1} \left[\omega_1^2 \left(1 + 3 \frac{\tau_1}{\tau_2} \right) + \frac{1}{\tau_2^2} \right] N = \frac{C}{T_p} \left(\omega_1^2 + \frac{1}{\tau_2^2} \right)$$

l'équation caractéristique peut s'écrire sous la forme :

$$(XVI-40) \quad \left[x^2 + \left(\frac{1}{\tau_1} + \frac{1}{\tau_2} \right) x + 4 \omega_1^2 + \frac{1}{\tau_1 \tau_2} \right] \cdot \left(x + \frac{1}{\tau_2} \right) = \omega_1^2 \left(\frac{1}{\tau_2} - \frac{1}{\tau_1} \right)$$

L'équation peut être résolue exactement quand $\tau_1 = \tau_2$. Si l'on n'est plus dans ce cas particulier, on peut à partir des solutions déjà connues calculer des solutions approchées $-q$ et $-K \pm i\bar{\omega}$ valables quand $\omega_1 \gg \frac{1}{\tau_2} - \frac{1}{\tau_1}$:

$$(XVI-41) \begin{cases} -q = -\frac{1}{\tau_2} + \frac{1}{4} \left(\frac{1}{\tau_2} - \frac{1}{\tau_1} \right) \\ -K \pm i\bar{\omega} = -\frac{1}{2} \left(\frac{1}{\tau_1} + \frac{1}{\tau_2} \right) - \frac{1}{8} \left(\frac{1}{\tau_2} - \frac{1}{\tau_1} \right) \pm 2i\omega_1 \end{cases}$$

On doit donc observer une figure analogue à celle de la figure 12d, obtenue sur ^{199}Hg hors résonance ($\Delta \omega \neq 0$), c'est-à-dire la somme d'une sinusoïde exponentiellement amortie et d'une autre exponentielle; mais la fréquence de cette nouvelle sinusoïde observée sur ^{201}Hg aligné doit être double de celle observée du ^{199}Hg , à même valeur de H_1 . Nous n'avons pas encore pu observer de transitoires sur ^{201}Hg pour vérifier ce point; mais son interprétation est simple. Dans tous les cas, la fréquence de mutation des spins est évidemment la même $\omega_1/2\pi$; c'est-à-dire que, abstraction faite de la relaxation, tous les atomes qui étaient initialement dans le sous-niveau m_I se trouvent au bout du temps $\frac{\pi}{\omega_1}$ dans le sous-niveau $-m_I$, et inversement. Dans la vapeur de ^{199}Hg orientée, on en déduit que la grandeur macroscopique observée $M = X_{+1/2} - X_{-1/2}$ aura changé de signe au bout de ce temps. Dans la vapeur de ^{201}Hg alignée au contraire, la grandeur macroscopique observée $D = X_{+3/2} - X_{+1/2} = X_{-3/2} - X_{-1/2}$ aura au bout de ce temps retrouvé sa valeur initiale, à cause de la symétrie de populations entre les sous-niveaux $\pm 3/2$ et $\pm 1/2$; D ne peut donc varier qu'à la fréquence double ω_1/π , ou à une fréquence harmonique de ω_1/π .

XVII - Cas du ^{201}Hg en orientation.

Dans le cas de l'orientation toutes les symétries qui nous ont aidé dans les paragraphes précédents disparaissent, et nous nous retrouvons en présence d'un système comprenant effectivement 15 équations différentielles à 15 inconnues, c'est-à-dire, pour la recherche de la solution stationnaire, devant un système linéaire de 15 équations à 15 inconnues. La résolution complète de ce système aboutirait à des calculs inextricables. Mais il est possible d'en

calculer une solution approchée si l'on se place dans la double hypothèse d'une faible intensité lumineuse ($1/T_p \rightarrow 0$) et d'une faible puissance de radiofréquence ($\omega_1 \rightarrow 0$). On peut donc encore calculer la largeur limite des courbes de résonance à radiofréquence et à intensité lumineuse nulle; on la trouve égale à $1/\pi T_2$ comme dans le cas de l'alignement.

Or nous avons observé que les largeurs limites des courbes de résonance, extrapolées à radiofréquence et à intensité lumineuse nulles, sont presque 2 fois plus petites en orientation qu'en alignement. Dès maintenant cela prouve que nos hypothèses de calcul relatives à la forme de la matrice de relaxation ρ_R ne sont pas bonnes. Sans doute, nos calculs dans le cas de l'alignement semblent en bon accord avec l'expérience; mais reportons-nous à la matrice de relaxation ρ_R' du paragraphe XVI : dans le cas de l'alignement tous les termes de la diagonale non principale sont nuls à cause des symétries (cf formules (XVI-32)) et donc les temps de relaxation qui leur correspondent n'entrent pas en jeu dans le calcul. Il suffirait par exemple pour expliquer la différence observée entre les largeurs de raie en orientation et en alignement que le temps de relaxation T_2 correspondant aux termes $\overline{bc^*}$ et $\overline{cb^*}$ (c'est-à-dire à la résonance $+1/2 \leftrightarrow -1/2$) soit plus long que les autres temps T_2 de la matrice. Nous nous en tiendrons là pour l'instant; mais nous reviendrons sur ce sujet au chapitre suivant quand nous aurons déterminé l'origine de la relaxation de ^{201}Hg .

Q U A T R I È M E C H A P I T R E

ORIGINE DE LA RELAXATION

XVIII - Quelques contrôles des mesures de temps de relaxation.

Nous avons exposé au début du chapitre précédent (paragraphe XII et XIII) les deux méthodes employées pour la détermination des temps de relaxation T_1 et T_2 . Nous avons dit que dans le cas du ^{201}Hg il nous avait été possible jusqu'ici d'utiliser seulement la méthode statique (largeurs de raies). Nous avons déjà signalé tous les détails de cette méthode très classique, les quelques contrôles auxquels nous l'avons soumise, et la précision d'environ 10% que la double extrapolation (à H_1 nul, et à intensité lumineuse nulle) permet d'atteindre pour les mesures de T_2 ; tandis que pour T_1 nous ne pouvons attendre de cette méthode qu'un ordre de grandeur.

A. La comparaison des résultats obtenus par les deux méthodes est possible au contraire dans le cas du ^{199}Hg puisque l'on peut, outre la méthode statique, lui appliquer la méthode dynamique (observation des transitoires). Cette seconde méthode est beaucoup plus rapide et permet d'obtenir des valeurs de T_1 aussi bien que de T_2 , reproductibles à environ 5% près; c'est donc elle que nous avons systématiquement utilisée pour ^{199}Hg . Nous avons cependant utilisé de nombreuses fois la méthode statique pour comparer les résultats obtenus avec les deux méthodes dans les mêmes conditions; nous faisons cette comparaison directement sur les temps τ_2 et τ_1 (cf formules XII-10 et XII-11) sans utiliser l'extrapolation à lumière nulle (les τ_1 sont calculés dans la méthode statique d'après la valeur du rapport τ_1/τ_2 déduite de la pente de la 'droite des largeurs', cf formule XV-24).

En première approximation, c'est-à-dire à 10 ou 20% près, les deux méthodes donnent des résultats cohérents. L'accord observé entre les τ_1 est aussi bon que le permet la précision de nos mesures. Mais les écarts de 10 à 20%

observés entre les τ_2 sont systématiquement dans le même sens (τ_2 statique $>$ τ_2 dynamique); et cette différence systématique semble supérieure à nos erreurs expérimentales. Si cela est vrai, nous n'en avons pas actuellement d'explication.

Rappelons aussi que nous avons toujours observé un excellent accord entre les formes des transitoires et les équations du paragraphe XV; en particulier nous avons plusieurs fois vérifié la fixité de l'enveloppe de la sinusoïde de nutation, à résonance, lorsque sa fréquence varie entre 1 c/s et 100 c/s. Ceci élimine totalement la possibilité d'existence dans le circuit du photomultiplicateur de capacités parasites trop fortes, qui constitueraient un filtre à trop basse fréquence, et amortiraient plus rapidement la sinusoïde, raccourcissant ainsi la valeur mesurée de τ_2 .

B. La mesure des variations de τ_1 et τ_2 en fonction de l'intensité lumineuse, dans la méthode dynamique, n'a pas besoin d'être utilisée systématiquement comme dans la méthode statique. Nous avons cependant effectué plusieurs fois, à titre de contrôle, des mesures par la méthode dynamique avec variation d'intensité lumineuse. La figure 14 en montre un exemple : les quantités $1/\pi\tau_1$ et $1/\pi\theta$ sont bien représentées par des droites en fonction de l'intensité lumineuse; à la limite, à lumière nulle, ces droites passent bien par les points $1/\pi\tau_1$ et $1/\pi\theta$ déterminés par mesure directe dans le noir. Ceci est tout à fait satisfaisant. Mais on peut aussi, à partir de ces deux droites, tracer la droite représentant les variations de $1/\pi\tau_2$, et en déduire le rapport des pentes des deux droites $1/\pi\tau_2$ et $1/\pi\tau_1$. Cette mesure souvent recommencée a toujours fourni un rapport d'environ 2 alors que la valeur théoriquement attendue est 1,5. (cf formules XV-22).

Ce rapport théorique de 1,5 est calculé à partir des probabilités de transition optique; mais les diverses causes qui seraient susceptibles de les modifier restent impuissantes à expliquer un pareil écart : a) le calcul montre que l'irradiation en lumière mal polarisée contenant une part de σ^- ne changerait pas ce rapport; et une part de lumière π ne pourrait que le diminuer - b) les probabilités de transition sont modifiées en champ fort par suite du dé-

couplage IJ dans le niveau excité 6^3P_1 . Elles ont été calculées par la méthode d'Inglis (19); pour la valeur de 200 Gauss, que nous n'avons guère dépassée, les changements sont de l'ordre de 2% - c) une irradiation partielle sur la composante 3/2 pourrait augmenter ce rapport (qui vaudrait 3 en effet dans le cas de la composante 3/2 utilisée seule); mais cette irradiation ne peut avoir lieu (cf figure 1) qu'à partir des faibles quantités des isotopes ^{199}Hg et ^{201}Hg contenues dans la lampe à ^{204}Hg ; et ces quantités, inférieures à 1%, sont trop faibles pour expliquer l'effet.

Cette différence systématique sur les rapports des pentes, nettement supérieure à nos erreurs expérimentales, n'est pas encore comprise. Mais on remarque que cet écart va dans le même sens (τ_2 trop cours) que l'écart observé sur les τ_2 entre la méthode dynamique et la méthode statique; et l'on peut se demander si la méthode dynamique, pour une raison qui nous échappe, ne mesure pas des temps θ systématiquement un peu plus courts que les temps théoriques. Cela nous a conduit à exercer quelques contrôles supplémentaires, qui n'ont d'ailleurs pas éclairci ce point.

C. De faibles champs alternatifs parasites $\Delta H_0 \sin \Omega t$ ne peuvent pas perturber les mesures de la méthode statique pourvu que soit vérifiée l'une ou l'autre des deux conditions suivantes : a) $\gamma \Delta H_0 < 1/\tau_2$ ou b) $\Omega > 1/\tau_2$. Nous avons effectivement vérifié que le champ de balayage utilisé pour la résonance de protons (10 c/s; 10 milliGauss; cf paragraphe X) ne gêne absolument pas nos mesures avec cette méthode (La condition a est vérifiée dans le cas de ^{201}Hg , et la condition b dans le cas de ^{199}Hg). Ce champ de balayage par contre déforme assez fortement les figures des transitoires et doit être supprimé quand on les observe. Aussi avons-nous contrôlé la présence éventuelle de champ alternatifs parasites, qui auraient constitué une source d'erreur pour la méthode dynamique.

Pour cela nous envoyons sur un oscillographe par l'intermédiaire d'un préamplificateur la tension recueillie aux bornes d'une bobine dont la surface totale atteint environ 10^6 cm^2 . Dans le signal recueilli la seule composante identifiable, et nettement au-dessus du niveau de bruit, correspond à un champ

à 50 c/s d'environ 0,3 milliGauss d'amplitude (Il est dû au résidu alternatif de l'alimentation Varian, qui, dans l'usage normal de cette alimentation, se trouve complètement filtré par la self beaucoup plus importante de bobines à noyau de fer). Un champ alternatif d'aussi faible amplitude ne peut pas perturber nos observations.

En effet, nous avons fait des mesures systématiques de θ en présence d'un champ de balayage $\Delta H_0 \sin \Omega t$, dont nous avons fait varier la fréquence $\Omega / 2\pi$ entre 1 c/s et 150 c/s. Et nous avons vérifié que si l'amplitude ΔH_0 de ce champ est assez faible, il n'a pas d'effet sur les transitoires du ^{199}Hg , en dehors du cas particulier où sa fréquence est voisine de la fréquence de nutation des spins nucléaires autour du champ tournant H_1 . Cette condition de "résonance" $\Omega = \gamma H_1$ s'interprète dans le référentiel tournant à la vitesse angulaire ω du champ H_1 , exactement comme la condition $\omega = \gamma H_0$ s'interprète dans le référentiel fixe : c'est-à-dire que l'on peut dans le référentiel tournant décomposer le champ de balayage en deux champs d'amplitude $\Delta H_0 / 2$ tournant autour de H_1 en sens opposés à la vitesse angulaire Ω ; si le mouvement de nutation des spins autour de H_1 se fait avec la même vitesse de rotation $\gamma H_1 = \Omega$, l'un de ces deux champs tournants $\Delta H_0 / 2$ reste en phase avec les spins nucléaires et peut avoir sur eux une action importante. Les figures 15a et 15c montrent des exemples des transitoires de ^{199}Hg ainsi déformés au voisinage de cette "résonance" : la fréquence de balayage $\Omega / 2\pi = 30$ c/s est portée comme étalon de temps dans le bas de chaque oscillogramme ; on mesure $\gamma H_1 / 2\pi \simeq 33$ c/s, et l'amplitude $\Delta H_0 \simeq 8$ milliGauss est assez grande pour que $\gamma \Delta H_0 \sim |\Omega - \gamma H_1|$. Si l'on crée le champ H_1 au moment où le champ de balayage passe par la bonne phase, on observe un effet particulièrement net (figure 15a) : l'amplitude de la sinusoïde habituelle se trouve modulée presque sinusoidalement.

L'interprétation détaillée de ces phénomènes est assez complexe ; nous en retiendrons seulement que un champ alternatif ne peut pas déformer les transitoires s'il vérifie l'une ou l'autre des deux conditions suivantes : a) $\gamma \Delta H_0 \ll 1/\tau_2$

(c'est-à-dire que le transitoire est amorti avant que le champ ΔH_0 ait pu avoir un effet notable), ou b) $\gamma \Delta H_0 \ll |\Omega - \gamma H_1|$ (c'est-à-dire que l'on est loin de la "résonance"). Le champ parasite à 50 c/s que nous avons décelé vérifie la condition b, avec les champs H_1 que nous utilisons couramment. D'autres champs parasites éventuels vérifient certainement la condition a.

D. La loi exponentielle d'absorption (nous l'avons déjà signalé au paragraphe IV), peut faire que les signaux observés ne soient plus proportionnels aux populations des sous-niveaux, et soient ainsi déformés. Les densités de vapeur utilisées sont toujours assez faibles pour que nous puissions admettre que le signal de fluorescence mesuré est proportionnel à la quantité de lumière absorbée dans la cellule, soit $I \sim 1 - e^{-k_0 \ell}$, où ℓ mesure l'arête de la cellule et k_0 est le coefficient d'absorption proportionnel au nombre N_0 d'atomes par cm^3 dans la cellule (cf tableau du paragraphe IV). Dans le cas de l'excitation de ^{199}Hg par sa seule composante $1/2$ en σ^+ , on calcule : $k_0 = 0,20 \cdot 10^{-12} N_0 \cdot \beta \text{ cm}^{-1}$ (cf paragraphe V; β est la population du sous-niveau $m_I = -1/2$). Nous introduisons le coefficient K sans dimension tel que $k_0 \ell = K\beta$; et nous donnons ses valeurs dans le tableau ci-dessous en fonction de la température t du queusot de la cellule, pour le cas $\ell = 2 \text{ cm}$ où nous étions le plus fréquemment placés :

t	- 30°C	- 20°C	- 10°C	0°C
K ($\ell = 2 \text{ cm}$)	0,07	0,25	0,84	2,5

Le signal observé est $I = 1 - e^{-K\beta}$; il n'est proportionnel à β que si K est suffisamment petit; il peut encore être assimilé à une fonction linéaire de β , quand K est grand, si β varie peu autour d'une valeur moyenne, c'est-à-dire par exemple si le taux d'orientation est faible (population d'équilibre atteinte par le pompage $\beta_0 \simeq 1$). Mais dans le cas de forts taux d'orientation, si la densité de vapeur est importante, les signaux peuvent être très déformés. Cela n'est pas grave pour la méthode statique, car la largeur limite est obtenue en extrapolant les largeurs des courbes de faible amplitude, correspondant à de faibles variations de β , et qui sont donc peu déformées.

Mais dans le cas de la méthode dynamique, on mesure les temps de relaxation à l'amplitude $1/e$ des exponentielles observées, c'est-à-dire qu'on utilise la variation totale de β entre β_0 et 1, et les écarts peuvent être importants. La figure 15d montre un exemple des déformations observées (température du queusot $t = 0^\circ\text{C}$; $\beta_0 < 0,5$); la dissymétrie observée sur la sinusoïde de nutation mesure l'écart entre la loi linéaire et la loi exponentielle et est en bon accord avec les coefficients K calculés; elle correspond au fait que l'intensité I croît avec β d'autant moins vite que β est plus grand. On voit facilement que les temps T_1 , θ et τ_1 , mesurés sur des exponentielles montant de I_0 à I_1 sont légèrement raccourcis, tandis que le temps τ_1 mesuré sur une exponentielle descendant de I_1 à I_0 est légèrement allongé. Cet effet serait donc dans le bon sens pour expliquer que les τ_2 mesurés par la méthode dynamique soient un peu trop courts.

Son évaluation exacte n'est pas simple car l'opacité de la vapeur augmente fortement avec β , et l'intensité lumineuse moyenne, vue par les atomes du sous-niveau $-1/2$, baisse quand β augmente. Plus exactement $1/T_p$ est égal au rapport du nombre de photons absorbés $I \sim 1 - e^{-K\beta}$ et du nombre d'atomes absorbants $N_0 \propto \beta$; il varie donc comme $(1 - e^{-K\beta})/K\beta$. D'autre part, il faut tenir compte du fait que le coefficient d'absorption dépend strictement de la fréquence : cela nous oblige à substituer au coefficient d'absorption k_0 le coefficient d'opacité équivalente (49), et cela conduit à une expression plus compliquée à la place de $(1 - e^{-K\beta})$. Les écarts relatifs finalement calculés ne sont importants qu'aux fortes densités de vapeur; ils atteignent tout juste quelques centièmes pour la température du queusot $t = -20^\circ\text{C}$, et à peine 1% pour $t = -30^\circ\text{C}$. Dans les conditions où nous avons normalement travaillé ces écarts sont donc négligeables, comme en témoignent expérimentalement : 1) la parfaite symétrie, à la précision de nos mesures, des sinusoïdes observées avec $t = -20^\circ\text{C}$ (figure 15b) - 2) l'identité des pentes mesurées pour les droites $1/\pi\tau_1$ et $1/\pi\tau_2$ en fonction de l'intensité lumineuse avec $t = -20^\circ\text{C}$ et $t = -30^\circ\text{C}$, malgré la variation par un facteur 3 de la densité de vapeur (à de plus fortes températures t , nous avons observé un écart croissant entre les pentes des droites représentant $1/\pi\tau_2$ et $1/\pi\tau_1$ en fonction de l'intensité lumineuse).

Remarque : Dans la discussion précédente, nous n'avons pas tenu compte :
a) de la couche de vapeur d'environ 1 ou 2 mm d'épaisseur, située juste derrière la face irradiée de la cellule, et qui n'est pas observée à la détection - b) du fait que les photons réémis traversent une partie de la vapeur absorbante avant de parvenir à la détection. Ces deux effets deviennent importants aux fortes densités de vapeur, et deviennent même prépondérants lorsque $t > 0^{\circ}\text{C}$.

XIX - Généralités sur les causes de relaxation.

Nous désignons ici sous le terme général de relaxation toute interaction aléatoire au cours du temps susceptible de provoquer l'évolution du système des spins nucléaires. A chacun de ces processus est associé un temps de corrélation τ_c dont la définition exacte exige l'introduction des fonctions de corrélation (43), mais dont l'interprétation physique est claire : c'est le temps moyen au bout duquel la perturbation a ''oublié'' la valeur qu'elle avait à l'instant initial. Avant de faire l'étude détaillée de la relaxation dans le cas particulier de chaque isotope, nous allons passer en revue les divers processus de relaxation possibles.

A. Les collisions sur les parois sont dans le cas des vapeurs alcalines à basse pression la cause essentielle de relaxation; l'orientation électronique des atomes alcalins est détruite à chaque collision sur les parois de verre, à moins que celles-ci ne soient recouvertes de paraffines ou silicones à longues chaînes (44)(35). Dans notre cas, l'orientation est purement nucléaire et il n'en est pas de même. Aux faibles densités de vapeur, avec lesquelles nous opérons, le libre parcours moyen des atomes de mercure (1 mètre pour la température du queusot $t = - 20^{\circ}\text{C}$) est bien supérieur aux dimensions des cellules que nous utilisons; les atomes rebondissent donc sur les parois et traversent la cellule de part en part en tous sens; de la vitesse moyenne des atomes, calculée par la théorie cinétique, nous déduisons que leur ''temps de vol moyen'' entre deux collisions sur les parois est $\tau_v \sim 10^{-4}$ seconde dans une cellule de 2 cm d'arête. Or les temps de

relaxation les plus courts que nous ayons observés sont de l'ordre de 0,02 seconde. C'est-à-dire que les atomes de mercure subissent dans tous les cas au moins 200 collisions sur les parois avant d'être désorientés.

Si nous appelons $\mathcal{H}_p(t)$ l'Hamiltonien qui représente l'interaction avec la paroi et τ_s le temps de séjour sur la paroi (ou temps de collision) de l'atome, le résultat précédent montre que $|\mathcal{H}_p| \cdot \tau_s \ll 1$. Or le temps de corrélation de la perturbation $\mathcal{H}_p(t)$ est au plus égal à τ_s ; ce processus de relaxation vérifie donc bien la condition de rétrécissement par le mouvement. Sur le temps τ_s nous n'avons pour l'instant que des renseignements très vagues : a) il ne peut être inférieur au temps de 10^{-12} seconde d'une collision élastique; mais nous avons de bonnes raisons de penser que les collisions sur les parois ne sont pas élastiques et qu'il est beaucoup plus long - b) il y a de fortes raisons d'admettre qu'il est beaucoup plus court que le temps de vol $\tau_v \sim 10^{-4}$ seconde.

Si τ_s n'était pas beaucoup plus court que τ_v en effet, le nombre moyen d'atomes adsorbés sur les parois de la cellule serait du même ordre de grandeur ou plus grand que le nombre d'atomes en mouvement dans la vapeur et dont nous observons le signal de résonance optique. Et ceci ne semble pas possible d'après l'expérience suivante : Nous avons chauffé à 300°C une cellule remplie de vapeur sèche, ce qui doit provoquer un dégazage au moins partiel de ses parois, et nous n'avons observé aucune variation appréciable du signal de résonance optique, c'est-à-dire du nombre d'atomes en phase vapeur. Ceci est en accord avec l'expérience faite par d'autres expérimentateurs avec chauffage jusqu'à 700°C (45). Il serait extrêmement curieux, qu'un film d'atomes de mercure adsorbés sur les parois puisse rester en équilibre avec une densité de vapeur constante, lorsque sa température subit une aussi forte variation.

B. Des collisions en phase gazeuse peuvent également se produire, soit sur des impuretés gazeuses, soit entre atomes de mercure (à la température du queusot $t = -20^\circ\text{C}$, le libre parcours moyen de 1 mètre indique qu'il y a environ une collision Hg-Hg pour 50 collisions sur les parois). Les temps de corrélation correspondants sont de l'ordre de 10^{-12} seconde s'il s'agit de collisions élastiques;

mais on peut envisager la formation de molécules éphémères ayant des durées de vie beaucoup plus longues.

C. Les inhomogénéités spatiales du champ directeur H_0 et du champ de radiofréquence H_1 sont vues par l'atome en mouvement comme des champs aléatoires $\Delta \vec{H}_0(t)$ et $\Delta \vec{H}_1(t)$ dont nous étudierons l'effet au paragraphe suivant. Disons tout de suite que ces perturbations aléatoires vérifient la condition de rétrécissement par le mouvement, et que leurs effets sont assez faibles pour être en général négligeables.

D. L'effet du queusot. Il y a un échange permanent d'atomes de mercure entre la goutte liquide du queusot et la vapeur située dans la cellule (On calcule la densité de vapeur dans la cellule (23) en écrivant précisément la condition d'équilibre dynamique de cet échange, c'est-à-dire l'égalité du nombre d'atomes de mercure traversant le tube du queusot, venant de la cellule vers la goutte liquide, et du nombre d'atomes le traversant en sens inverse). Et l'on peut penser que les fortes interactions auxquelles sont soumis les atomes dans la goutte liquide ont pour effet de les désorienter aussitôt. La "durée de vie" d'un atome orienté est donc au plus égale à son temps de séjour dans la cellule τ_q , entre l'instant où il y pénètre venant de la goutte liquide et l'instant où il se condense à nouveau dans le queusot.

On peut évaluer un ordre de grandeur de ce temps τ_q dans le cas des cellules que nous avons le plus fréquemment utilisées, et dont la tête cubique est reliée au queusot par un capillaire d'environ 1 mm de diamètre et 10 mm de longueur (figure 16a). Nous pouvons raisonnablement admettre que presque tous les atomes venant de la cellule et ayant franchi le capillaire seront désorientés avant d'y rentrer. Mais dans le franchissement du capillaire beaucoup d'atomes rencontreront ses parois; et puisque nous avons de fortes raisons de penser que les collisions sur les parois sont diffusantes, il est possible à un tel atome de revenir vers l'endroit d'où il venait. Un raisonnement simple, fondé sur des raisons de symétrie, permet de montrer que le nombre d'atomes venant de la cellule et franchissant finalement le capillaire est supérieur au nombre d'atomes venant de la cellule et

qui, soit franchissent directement le capillaire, soit viennent rencontrer sa paroi dans la moitié inférieure; c'est-à-dire supérieur au nombre d'atomes qui arrivent sur l'embouchure du capillaire à l'intérieur d'un angle solide $\Omega \simeq \pi\alpha^2$ (cf figure 16a; l'angle d'ouverture du capillaire $\alpha = 0,1$ radian).

La surface totale des parois de la cellule est $S = 24 \text{ cm}^2$, la section du capillaire est $s = 0,01 \text{ cm}^2$; la proportion d'atomes qui au lieu de rebondir sur la paroi traversent le capillaire est donc $\frac{s}{S} \cdot \frac{\Omega}{2\pi} \sim 2 \cdot 10^{-6}$. La probabilité pour qu'un atome sorte de la cellule est donc :

$$\frac{1}{\tau_q} > \frac{1}{\tau_v} \cdot \frac{s}{S} \cdot \frac{\Omega}{2\pi} \sim 0,02 \text{ sec}^{-1}$$

Cet effet est faible; il est totalement négligeable dans le cas de ^{201}Hg où les largeurs de raies valent plusieurs c/s; mais il peut jouer dans le cas de ^{199}Hg . Nous avons vérifié expérimentalement l'existence de cet effet en scellant le queusot de cellules à ^{199}Hg de façon à y enfermer de la vapeur sèche. Nous avons fait l'expérience sur deux cellules : a) une du type courant, dont nous venons de parler (figure 16a) - b) une cellule de taille identique, mais qui est réunie à son queusot par une transition continue en forme d'entonnoir (figure 16b). Nous avons mesuré les variations du temps de relaxation longitudinale T_1 au moment du scellement :

	avant scellement	après scellement	$\Delta(1/T_1) = 1/\tau_q$
cellule a	$T_1 = 4,0\text{s}$ ou $1/T_1 = 0,25$	$T_1 = 5,0$ ou $1/T_1 = 0,20$	$0,05 \text{ sec}^{-1}$
cellule b	$T_1 = 1,25\text{s}$ ou $1/T_1 = 0,80$	$T_1 = 3,0$ ou $1/T_1 = 0,33$	$0,47 \text{ sec}^{-1}$

On voit que la probabilité de désorientation $1/T_1$ a diminué dans les deux cas, et que l'effet est beaucoup plus important sur la cellule b, comme il fallait s'y attendre. Pour la cellule a, nous trouvons bien un résultat en accord avec l'ordre de grandeur calculé plus haut.

XX - Les inhomogénéités spatiales.

A. Le champ directeur statique H_0 . Nous appellerons plus précisément \vec{H}_0 la valeur moyenne du champ sur le volume de la cellule; un atome dans son mouvement à travers la cellule est soumis, en plus du champ fixe \vec{H}_0 , à un champ $\Delta \vec{H}_0(t)$ aléatoire dont la valeur moyenne sur le volume de la cellule est nulle. Il n'est pas simple de calculer le temps de corrélation correspondant, mais il est certainement de l'ordre de grandeur du temps de vol moyen d'une paroi à l'autre τ_v .

Ce champ $\Delta \vec{H}_0(t)$ a des composantes sur les trois axes x, y, z dont le calcul montre qu'elles sont du même ordre de grandeur. Nous avons dit au paragraphe VIII les précautions prises pour les réduire au minimum, et comment nous avons mesuré l'amplitude maximum ΔH_M dans le volume d'une cellule de la composante ΔH_{oz} suivant l'axe z qui porte H_0 . Lorsque $H_0 = 200$ gauss (c'est la valeur au voisinage de laquelle nous avons fait nos mesures les plus précises), nous obtenons ainsi pour ces écarts maximum

	$\Delta H_M/H_0$	ΔH_M ($H_0 = 200$ G)	$\gamma_{199} \cdot \Delta H_M = \Delta \omega_M$	$\Delta \omega_M/2\pi$
Cellule de 2cm	$3 \cdot 10^{-6}$	0,6 mG	$2,9 \text{ sec}^{-1}$	0,45 c/s
Cellule de 4cm	$4 \cdot 10^{-5}$	8 mG	38 sec^{-1}	6 c/s

(Rappelons que $\gamma_{201} \approx \gamma_{199}/3$). $\Delta \omega_M$ mesure l'ordre de grandeur maximum des termes du Hamiltonien $\Delta \mathcal{H}_0(t)$ qui représente l'action du champ aléatoire $\Delta \vec{H}_0(t)$; puisque $\tau_c \sim \tau_v$, la condition de rétrécissement par le mouvement $|\Delta \mathcal{H}_0(t)| \cdot \tau_c \ll 1$ est bien vérifiée. Nous en déduisons : a) que l'effet de l'inhomogénéité du champ statique peut effectivement être calculée comme un phénomène de relaxation raccourcissant le temps T_2 - b) que la part de la largeur de raie due à $\Delta \vec{H}_0(t)$ doit être beaucoup plus petite que les valeurs de $\Delta \omega_M/2\pi$ indiquées dans le tableau ci-dessus. Cela correspond bien à nos observations, puisque nous mesurons couramment sur ^{199}Hg aussi bien avec de grosses cellules que de petites cellules des largeurs limites $1/\pi T_2$ de l'ordre de 0,3 c/s.

Il est important pour l'interprétation des temps de relaxation mesurés de connaître la valeur de l'élargissement résiduel dû à l'inhomogénéité statique. Son calcul exact exigerait la détermination de la fonction de corrélation du Hamiltonien $\Delta \mathcal{H}_0(t)$. Mais on peut raisonnablement admettre que le résultat de ce calcul est semblable aux résultats calculés dans le cas du mouvement Brownien dans un liquide (43) ou dans le cas d'un échantillon tournant (46). Lorsque $\omega \gg 1/\tau_c$ (et c'est le cas si $H_0 \sim 200$ Gauss) les composantes ΔH_{0x} et ΔH_{0y} n'apportent pratiquement aucune contribution à la relaxation, et la contribution due à la composante ΔH_{0z} est :

$$(XX-42) \quad (1/T_2) \sim \langle \Delta \omega_0^2 \rangle \cdot \tau_c = \gamma^2 \langle \Delta H_{0z}^2 \rangle \cdot \tau_c$$

où $\langle \Delta H_{0z}^2 \rangle$ représente la moyenne sur le volume de la cellule du carré de la composante ΔH_{0z} .

Pour contrôler l'application de cette formule, nous avons mesuré, par la méthode dynamique sur une cellule à ^{199}Hg de 4 cm d'arête, la variation de T_2 que l'on provoque en la soumettant à un gradient de champ magnétique connu. Pour observer un effet notable, il faut un gradient de champ assez fort; avec un écart maximum $\Delta H_M = \pm 45$ mG, nous avons observé $\Delta(1/T_2) = 1,8 \text{ sec}^{-1}$. C'est bien l'ordre de grandeur que fournit la formule (XX-42) en choisissant $\tau_c = \tau_v = 2 \cdot 10^{-4}$ seconde (cellule de 4 cm) et $\sqrt{\langle \Delta H_{0z}^2 \rangle} = \Delta H_M/3$; nous vérifions bien que cette formule est valable pour calculer un ordre de grandeur de l'effet (Une vérification plus détaillée serait possible en créant divers gradients de même configuration géométrique, mais d'amplitudes différentes, et en montrant que $\Delta(1/T_2)$ varie proportionnellement à ΔH_M^2).

En définitive, l'application de la formule (XX-42) doit nous permettre de calculer l'ordre de grandeur de la largeur résiduelle d'inhomogénéité dans les conditions normales où nous travaillons. Nous trouvons $\Delta(1/\pi T_2) \sim 10^{-4}$ c/s, dans une cellule de 2 cm d'arête, et $\Delta(1/\pi T_2) \sim 10^{-2}$ c/s dans une cellule de 4 cm d'arête. Ces valeurs sont très faibles devant les largeurs limites $(1/\pi T_2)$ couramment mesurées pour ^{199}Hg , qui sont de l'ordre de 0,3 c/s. Mais nous avons

observé jusqu'à $1/\pi T_2 = 0,05$ c/s; il est alors prudent d'utiliser une petite cellule, dans laquelle la largeur d'inhomogénéité doit être toujours négligeable.

B. Le champ de radiofréquence H_1 peut aussi élargir la raie par son inhomogénéité. On sait en effet que ses changements de direction peuvent causer dans les expériences du jet atomique (47) d'importants déplacements de fréquence atteignant l'ordre de grandeur du Mégacycle/seconde. Soit en effet φ l'angle de la direction du champ linéaire alternatif avec une direction de référence perpendiculaire à H_0 ; si le champ alternatif appliqué à un atome en déplacement à travers la cellule subit pendant le temps Δt une variation angulaire $\Delta \varphi$ proportionnelle au temps, cela signifie pour le champ tournant correspondant une variation progressive de phase $\Delta \varphi$, équivalente à un changement de sa fréquence de rotation : tout se passe pour l'atome comme s'il était soumis à un champ apparent, tournant à une vitesse angulaire modifiée de $\Delta \omega = \Delta \varphi / \Delta t$. La valeur élevée des vitesses d'agitation thermique fait que cet effet peut être important même pour de faibles écarts de φ ; en supposant qu'il se produise sur le volume de la cellule un écart $\Delta \varphi = 1/100$ radian, on calcule un déplacement de fréquence $\Delta \nu = \Delta \omega / 2\pi \sim 30$ c/s.

Cet effet, dans notre cas, doit se trouver "moyenné" par le mouvement. Le calcul de l'élargissement résiduel dû à cet effet, compte tenu du rétrécissement par le mouvement, n'a pas encore été fait à notre connaissance, et apparaît comme assez complexe. Nous avons cherché à le déterminer expérimentalement. Pour cela nous avons d'abord vérifié soigneusement l'homogénéité du champ fourni normalement par nos bobines de radiofréquence (cf paragraphe IX) : nous estimons que les écarts relatifs de champ sont de l'ordre de 10^{-3} à 10^{-4} dans une cellule de 2 cm d'arête. Puis nous avons rendu ce champ inhomogène en décentrant les bobines : nous n'avons observé aucune variation des T_2 mesurés. Nous avons même inversé les sens des courants dans les deux bobines de radiofréquence, de façon à créer un champ alternatif nul au centre de la cellule, et qui prenne à l'intérieur de la cellule toutes les orientations possibles; nous n'avons encore mesuré aucune variation de T_2 . L'effet résiduel de l'inhomogénéité du champ de radiofréquence, compte tenu du rétrécissement par le mouvement, est donc totalement négligeable.

XXI - Relaxation de ^{201}Hg .

Rappelons d'abord que nous n'avons pu utiliser jusqu'à présent pour ^{201}Hg que la méthode statique, c'est-à-dire que nous n'avons fait de mesures précises que de T_2 . Sauf indication contraire, il s'agit de mesures en alignement. Les T_2 obtenus sont les mêmes que l'irradiation lumineuse se fasse par la composante $201-3/2$ avec une lampe à ^{198}Hg ou par la composante $201-5/2$ avec une lampe à ^{204}Hg ; ils semblent à la précision de nos mesures ($\sim 10^0/o$) indépendants de la fréquence. Les T_1 évalués indirectement sont dans tous les cas de l'ordre de grandeur de T_2 .

Le premier fait frappant c'est l'énorme différence entre les temps de relaxation du ^{201}Hg et du ^{199}Hg placés pourtant dans des conditions identiques : les T_2 du ^{201}Hg sont en moyenne 50 fois plus courts que ceux de ^{199}Hg . Un tel écart est impossible à expliquer si l'on suppose que la relaxation est due uniquement à des interactions magnétiques; celles-ci, variant en effet comme γ^2 , conduiraient au contraire à une relaxation moins forte dans le cas du ^{201}Hg , dont le rapport gyromagnétique γ est environ 3 fois plus petit que celui du ^{199}Hg . Par contre, le noyau de ^{201}Hg , à la différence de celui de ^{199}Hg , possède un moment électrique quadrupolaire (17)(48). Nous pensons donc que la cause principale de relaxation du ^{201}Hg est due à ce moment quadrupolaire : dans les collisions d'un atome de ^{201}Hg avec la paroi de la cellule, son atmosphère électronique est déformée, et les gradients de champ électrique transitoires ainsi formés peuvent désorienter le noyau par interaction avec son quadrupole.

Nous étions ainsi conduits à penser que les chocs sur les parois, bien qu'ils soient peu efficaces en première approximation (plus de 200 collisions sans désorientation), puissent être cependant la cause essentielle de relaxation. Pour le vérifier, nous avons cherché à modifier le nombre de chocs par unité de temps en utilisant des cellules de différentes tailles. Cette expérience soulève une difficulté : quand on passe d'une cellule à l'autre, on n'est jamais sûr que leurs parois soient de nature parfaitement identique, ni qu'elles contiennent les mêmes

impuretés (Nous avons remarqué sur une même cellule la variation de T_2 lorsque, après un premier usage, on l'ouvre, la dégaze, et la remplit à nouveau de ^{201}Hg). Pour nous affranchir de ces effets parasites, nous avons fait la comparaison entre plusieurs cellules de chaque taille :

arête de la cellule	4 cm	4 cm	4 cm	4 cm	2 cm	2 cm
$1/\pi T_2$	8 c/s	8 c/s	6 c/s	7 c/s	15 c/s	11 c/s
T_2 (seconde)	0,040	0,040	0,053	0,045	0,021	0,029

On vérifie bien que en moyenne le temps T_2 est environ 2 fois plus faible dans une cellule de dimension double, où les chocs sur les parois sont 2 fois moins fréquents. Nous avons ainsi la certitude que la cause prépondérante de la relaxation du ^{201}Hg réside dans les chocs sur la paroi. Nous vérifions également que le temps de séjour τ_s sur la paroi est bien plus petit que le temps de vol moyen τ_v . Si τ_s était plus long que τ_v en effet, le changement de dimension de la cellule ne modifierait guère le temps d'interaction des atomes et de la paroi.

Nous pouvons alors faire un calcul d'ordre de grandeur de cette relaxation quadrupolaire. Lorsqu'un atome rebondit ou se trouve "adsorbé" sur la paroi durant le temps τ_s , il doit être soumis à des interactions beaucoup plus faibles que les interactions couramment mesurées dans les liaisons moléculaires (48)(50). Nous pouvons raisonnablement admettre que le gradient de champ électrique auquel il est soumis est inférieur au gradient créé par une charge électronique e située à la distance d'un rayon atomique r ($\sim 3 \cdot 10^{-8}$ cm pour le mercure) : $dE/dr < 2e/r^3$. Connaissant $Q \simeq 0,5 \cdot 10^{-24}$ cm², on calcule l'énergie d'interaction quadrupolaire correspondante, exprimée en pulsation :

$$\Delta \omega_0 = \frac{eQ}{\hbar} \cdot \frac{dE}{dr} < \frac{2e^2 Q}{\hbar r^3} \sim 10^{+7} \text{ sec}^{-1}$$

Les atomes ne sont soumis à cette interaction que lorsqu'ils rencontrent la paroi, c'est-à-dire pendant une fraction du temps égale à τ_s/τ_v ; et l'ordre de grandeur du carré moyen de l'énergie d'interaction est donc $\langle \Delta \omega_0^2 \rangle \sim \Delta \omega_0^2 \cdot \tau_s/\tau_v$.

Nous avons vu (paragraphe XIX) que cette interaction aléatoire, dont le temps de corrélation est au plus égal à τ_s , vérifie la condition du rétrécissement par le mouvement. Nous pouvons obtenir un ordre de grandeur de la largeur de raie en appliquant la formule de rétrécissement vue au paragraphe précédent (XX-42) :

$$\frac{1}{T_2} \sim \langle \Delta \omega_0^2 \rangle \cdot \tau_s \sim \Delta \omega_0^2 \frac{\tau_s^2}{\tau_v} < \left(\frac{2 e^2 Q}{4 \pi r^3} \right)^2 \cdot \frac{\tau_s^2}{\tau_v}$$

Si l'on suppose que les collisions sur la paroi sont élastiques $\tau_s \sim 3 \cdot 10^{-12}$ seconde, et avec $\tau_v \sim 10^{-4}$ s, on obtient $1/T_2 \sim 10^{-5} \text{ sec}^{-1}$; c'est une valeur beaucoup trop faible par rapport aux valeurs observées. Nous sommes ainsi conduits à penser que les collisions ne sont pas élastiques, et que le temps de séjour sur la paroi τ_s est beaucoup plus long. En remplaçant dans l'équation ci-dessus T_2 par la valeur observée ($\sim 0,02$ sec.) on en déduit $\tau_s > 10^{-8}$ seconde.

Pour éclaircir les phénomènes de relaxation liés aux parois, nous étions amenés à modifier ces dernières. On peut songer à modifier leur nature par des enduits de paraffine par exemple, comme cela a été réalisé avec succès pour le pompage optique des métaux alcalins (44)(35); mais nous rencontrons ici une difficulté supplémentaire du fait que nos parois doivent rester transparentes à l'ultra-violet. Nous nous sommes donc contentés jusqu'à présent d'augmenter leur température en enfermant la cellule dans un four à fenêtres de quartz (on travaille sur une vapeur sèche en scellant au préalable le queusot). Nous n'avons pas tracé une courbe complète de variation en fonction de la température du four; mais les résultats obtenus sont les suivants sur une cellule de 2 cm d'arête :

température	20°C	270°C	350°C
$1/\pi T_2$	11 c/s	0,9 c/s	0,3 c/s
T_2	0,03 s	0,35 s	1,0 s

Ce résultat vient confirmer nos précédentes déductions; car il semble difficile qu'une relaxation en phase gazeuse puisse expliquer d'aussi grands écarts (Quand on double

la température absolue T en effet, les vitesses moyennes des atomes ne sont augmentées d'après la loi en \sqrt{T} que d'environ 50^o/o). Tandis qu'on imagine aisément que l'élévation de température des parois puisse diminuer considérablement le temps de séjour τ_s des atomes sur la paroi; ou bien provoquer un dégazage des parois : des impuretés ioniques éventuelles peuvent avoir une interaction beaucoup plus intense avec les atomes de mercure si elles sont fixées sur les parois, que si elles sont diluées dans tout le volume de la cellule.

Pour en terminer avec la relaxation du ^{201}Hg , il nous faut revenir sur la différence déjà signalée (paragraphe XVII) entre les largeurs limites obtenues en alignement et en orientation : elles sont plus petites d'un facteur 2 environ en orientation; et cette différence nous amène à supposer que le temps de relaxation T_2 propre à la résonance magnétique $+1/2 \longleftrightarrow -1/2$, observée en orientation seulement, est plus long que les temps T_2 correspondant aux résonances magnétiques $+3/2 \longleftrightarrow +1/2$ et $-3/2 \longleftrightarrow -1/2$. Ceci s'interprète très bien dans l'hypothèse d'une relaxation quadrupolaire. On sait en effet que le déplacement des niveaux d'énergie par interaction quadrupolaire varie comme m_F^2 ; la distance énergétique des niveaux $+1/2$ et $-1/2$ n'est donc pas changée par cette interaction, lors du séjour sur la paroi, alors que les distances $+3/2 \longleftrightarrow +1/2$ et $-3/2 \longleftrightarrow -1/2$ sont au contraire modifiées. On conçoit donc que la résonance $+1/2 \longleftrightarrow -1/2$ soit beaucoup moins perturbée que les deux autres.

En définitive, nous avons acquis la certitude que la relaxation de ^{201}Hg se fait essentiellement par interaction quadrupolaire sur les parois de la cellule. Une étude plus détaillée et plus exacte de cette relaxation devient maintenant possible puisque nous savons à partir de quelles hypothèses écrire la matrice de relaxation. Mais nous nous sommes contentés de défricher le problème et cette étude détaillée est entreprise par ailleurs. Nous avons également mis en évidence la possibilité de réduire les largeurs $1/\pi T_2$ du ^{201}Hg à moins de 1 c/s. Cette augmentation considérable des temps de relaxation doit permettre : a) d'observer des taux d'orientation beaucoup plus importants en irradiation G^+ - b) d'observer les phénomènes transitoires et d'en tirer des renseignements complémentaires sur la

Cohen Tannoudji, Journal de Physique - à paraître

relaxation - c) de mesurer avec une précision accrue le moment nucléaire de ^{201}Hg .

XXII - Relaxation de ^{199}Hg

L'étude de la relaxation de ^{201}Hg était relativement facile parce qu'il y a dans ce cas une cause de relaxation prépondérante sur laquelle nous pouvions faire des tests assez nets sans être gênés par les autres causes de relaxation beaucoup moins importantes. Ceci n'est plus vrai dans le cas du ^{199}Hg , dont le noyau ne peut être touché que par son moment magnétique; de plus faibles interactions entrent seules en jeu maintenant, et elles semblent provenir pour une part importante de causes échappant à un contrôle précis. Les temps de relaxation sont en effet extrêmement sensibles aux impuretés, probablement paramagnétiques, présentes dans la cellule : suivant les précautions prises au remplissage de la cellule par ^{199}Hg , on a noté sur des cellules identiques de 2 cm d'arête des temps T_1 variant de 2 secondes à 12 secondes et des temps T_2 variant de 0,5 seconde à 2 secondes. L'interaction entre ces impuretés et les atomes de mercure se fait certainement en grande partie sur les parois, plutôt qu'en phase gazeuse, comme l'indiquent les deux phénomènes suivants :

a) les très lentes fluctuations des temps de relaxation observées dans une même cellule au cours du temps. Ces fluctuations sont de règle générale dans toutes les cellules et atteignent couramment 30%. Mais nous les avons observées plus précisément sur une cellule particulière : si son queusot est laissé longtemps à température ordinaire, et refroidi seulement à -20°C au moment de la mesure, on trouve $T_1 = 5,6$ secondes; si maintenant le queusot est laissé en permanence dans l'air liquide et réchauffé à -20°C au moment des mesures seulement, on observe que T_1 croît très lentement avec le temps : 2 jours après $T_1 = 7,5$ s, 4 jours après $T_1 = 9$ s et 8 jours après T_1 se stabilise à environ 12 secondes. Il est impossible que des impuretés en phase gazeuse mettent des temps aussi longs à s'établir en équilibre avec le point froid du queusot (La résonance optique en effet permet de vérifier que quelques secondes seulement sont nécessaires à la totalité des atomes

de mercure pour venir se condenser dans le queusot refroidi à l'air liquide). Mais s'il y a des impuretés adsorbées sur les parois, on conçoit mieux qu'il faille des temps aussi longs pour la décontamination des parois, quand la pression de vapeur de l'impureté est assez basse. Signalons que durant l'évolution de T_1 sur cette cellule, T_2 restait à peu près constant et égal à 2 secondes; les phénomènes qui sont à l'origine de T_2 ne sont donc pas tous les mêmes que ceux déterminant T_1 .

b) les temps de relaxation très différents observés sur deux cellules communiquant avec le même queusot et donc remplies avec la même phase vapeur. Nous avons préparé deux cellules communicantes, de tailles différentes 2 cm et 4 cm, pour tester l'effet du nombre de collisions par seconde sur les parois, en nous affranchissant des différences de remplissage d'une cellule à l'autre. Les temps observés ($T_1 = 2,2$ s. et $T_2 = 1$ s. pour la petite cellule, $T_1 = 13$ s. et $T_2 = 6$ s. pour la grande) varient bien dans le bon sens, mais sont dans un rapport 6 au lieu du rapport 2 attendu (rapport des dimensions linéaires des cellules et par suite des nombres de chocs par seconde dans chacune d'elles). Ceci montre qu'on ne peut pas tester directement dans ce cas l'effet du nombre de collisions par seconde, qui est masqué par des phénomènes du même ordre de grandeur; mais ceci ne peut s'expliquer aussi, puisque les deux cellules contiennent la même phase vapeur, que par une nature différente des parois; nous devons admettre que ces dernières ne contiennent pas normalement les mêmes impuretés, ou ne se contaminent pas de la même façon. (Il est probable aussi que l'effet du queusot est différent d'une cellule à l'autre; mais c'est un effet suffisamment faible pour ne pas changer l'interprétation de ces résultats).

La relaxation sur les parois explique bien également les résultats obtenus en chauffant une cellule de vapeur sèche dans un four à fenêtres de quartz. La courbe (1) de la figure 17 montre les valeurs de T_1 ainsi mesurées quand la température du four augmente : T_1 part de 2 secondes à 20°C , ne varie pas beaucoup jusqu'à 100°C , mais ensuite monte rapidement et atteint plus de 2 minutes à 300°C . Cette énorme variation (analogue à celle de T_2 du ^{201}Hg) nous conduit à penser que la relaxation longitudinale du ^{199}Hg est conditionnée essentiellement par les parois.

La courbe (2) de la figure 17 est obtenue en chauffant une cellule de vapeur saturante : nous avons chauffé la partie haute d'une cellule de type courant (figure 16a), en maintenant son queusot dans le thermostat à basse température. Lorsque la température augmente, T_1 croît d'abord un peu, mais ensuite il tend vers un maximum de l'ordre de 20 secondes ($1/T_1 = 0,05 \text{ sec}^{-1}$) au lieu de continuer à croître suivant la courbe (1). A forte température, la relaxation longitudinale n'est plus déterminée pratiquement que par l'effet du queusot, qui se trouve ainsi directement mesuré : $T_1 \simeq \tau_q$. On retrouve bien l'ordre de grandeur déjà mesuré pour cet effet (cf paragraphe XIX).

Pendant que l'on mesure sur la vapeur sèche les énormes variations de T_1 figurées par la courbe (1), le temps T_2 reste à peu près constant entre 0,8 et 1,2 seconde ($1/\pi T_2$ entre 0,40 et 0,26 c/s). Rapprochant ceci de l'observation faite plus haut à propos des fluctuations lentes de T_1 (paragraphe a), on est tenté de penser que, si la relaxation longitudinale (T_1) se fait essentiellement sur les parois, la relaxation transversale (T_2) se fait en grande partie en phase gazeuse. Mais on ne peut tirer de conclusion hâtive; il est possible que le temps T_2 soit conditionné aussi par de faibles fluctuations aléatoires du champ H_0 ou de la fréquence $\omega/2\pi$ du générateur à quartz. En effet, nous ne contrôlons le champ H_0 avec la résonance du proton qu'à 10^{-6} près et il nous est impossible de déceler d'éventuelles fluctuations un peu inférieures à 10^{-6} ; d'autre part, nous avons contrôlé l'oscillateur à quartz à 142 kc/s en le faisant battre avec un second oscillateur identique : s'il est bien stable à 10^{-6} près, nous observons des fluctuations supérieures à 10^{-7} . En définitive des fluctuations de l'ordre de $5 \cdot 10^{-6}$ sont possibles; si elles se produisent avec un temps de corrélation trop long pour être efficacement moyennées, elles peuvent augmenter les largeurs apparentes d'une quantité $\Delta (1/\pi T_2) \sim 0,07 \text{ c/s}$. Cet ordre de grandeur semble tout de même un peu faible pour expliquer les T_2 observés en chauffant la vapeur sèche; et cela nous est confirmé par le fait que nous avons avec le même appareillage, à 142 kc/s également, mesuré sur une autre cellule (de plus grande dimension : 4 cm d'arête), de façon reproductible à plusieurs jours d'intervalle, des temps T_2

beaucoup plus longs atteignant 6 et 7 secondes ($1/\pi T_2 = 0,053$ et $0,045$ c/s). Mais pour être bien certains que c'est une cause réelle de relaxation qui limite les T_2 quand on chauffe la vapeur sèche, il nous faut attendre d'avoir recommencé la même expérience dans des champs faibles, où la même stabilité relative doit donner des fluctuations totalement négligeables. L'interprétation des T_2 reste donc encore incertaine.

L'interprétation exacte des temps de relaxation de ^{199}Hg demande d'autres expériences que nous poursuivons actuellement au laboratoire. Nous pouvons encore signaler les premiers résultats de l'étude de la variation de T_1 en fonction de H_0 , obtenus sur une vapeur saturante (queusot à -30°C) dans une petite cellule de 2 cm d'arête du type courant (figure 16a). Ils sont indiqués sur la figure 18, où nous avons porté $1/\pi T_1$ en fonction de H_0 dans diverses conditions : la courbe (1) est la première courbe tracée sur la cellule, à température ordinaire, avant qu'elle n'ait été chauffée (son queusot était plongé dans l'air liquide plusieurs jours durant, avant l'expérience); la courbe (2) a été obtenue en chauffant la tête de la cellule à 210°C ; la courbe (3) a été obtenue sur la cellule refroidie à température ordinaire, après le chauffage.

La différence entre les courbes (1) et (3) peut s'expliquer soit par le dégazage d'une impureté qui provoque une relaxation en phase gazeuse, soit par une modification de l'état des parois qui augmente leur action désorientante. Nous avons observé systématiquement cette diminution de T_1 après chauffage sur toutes les cellules que nous avons chauffées, aussi bien en vapeur sèche qu'en vapeur saturante.

L'asymptote horizontale de la courbe (2) correspond probablement à l'effet du queusot, dont on peut s'attendre à ce qu'il dépende peu de H_0 ; il reste à expliquer la part de $1/T_1$ qui reste lorsqu'on fait abstraction de cette partie constante. On sait que, moyennant certaines hypothèses particulières, on calcule pour les variations de $1/T_1$ en fonction de H_0 des formules du type $\tau_c / (1 + \gamma H_0^2 \tau_c^2)$ (43). On s'attend de manière générale à ce qu'un phénomène aléatoire de temps de corrélation τ_c n'apporte plus qu'une contribution très faible à la

relaxation lorsque $\gamma H_0 \tau_c \gg 1$. La diminution rapide de $1/T_1$ observée autour de la valeur $H_0 \sim 200$ Gauss, nous conduit à penser qu'un temps de relaxation $\tau_c \sim 10^{-6}$ seconde intervient dans notre cas. Il est possible que nous mesurons ainsi l'ordre de grandeur du temps de séjour τ_s sur la paroi; ce résultat ne serait pas contradictoire avec l'inégalité $\tau_s > 10^{-8}$ seconde déduite au paragraphe précédent de l'étude de la relaxation quadrupolaire du ^{201}Hg . Tout cela est assez hypothétique; la seule conclusion certaine que nous puissions tirer pour l'instant des courbes de la figure 18, c'est la grande complexité de la relaxation du ^{199}Hg .

C O N C L U S I O N

Nous avons, pour la première fois, appliqué avec succès la méthode de pompage optique à des atomes dont l'état fondamental est diamagnétique et qui possèdent un paramagnétisme nucléaire, les isotopes du mercure ^{199}Hg et ^{201}Hg , obtenant ainsi une orientation ou un alignement purement nucléaires.

Nous avons obtenu des taux d'orientation importants atteignant 50%, et mis en évidence la possibilité d'en obtenir de plus grands encore en allongeant le temps de relaxation longitudinale T_1 par chauffage des parois de la cellule qui renferme la vapeur de mercure.

La résonance magnétique nucléaire entre les sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental de ^{199}Hg et ^{201}Hg nous a permis de mesurer leurs moments nucléaires. Dans l'ignorance où nous sommes de la valeur précise de la correction diamagnétique, le seul résultat vraiment important est le rapport des moments des deux isotopes, qui ne dépend pas de cette correction :

$$\mu_{201} / \mu_{199} = 1,107416 (\pm 5)$$

Par comparaison avec les mesures de structures hyperfines d'autres auteurs, ce résultat a mis en évidence et permis la mesure précise des anomalies de structure hyperfine du mercure, qui sont supérieures à 1/1000.

Nous avons abordé également l'étude des origines de la relaxation des deux isotopes en utilisant à la fois les mesures des largeurs des raies de résonance, et l'observation des phénomènes transitoires du pompage optique et de la relaxation. Cette étude est loin d'être terminée; mais nous pouvons déjà en tirer quelques conclusions :

a) les collisions sur les parois de silice fondue n'ont qu'une action faible sur les spins nucléaires, à la différence des spins électroniques.

b) les collisions des atomes de mercure sur les parois ne sont pas élastiques; mais l'atome reste sur la paroi après chaque choc pendant un temps au moins 1000 fois supérieur à celui d'une collision élastique. Ce temps diminue fortement si on élève la température des parois.

c) la relaxation nucléaire de l'isotope ^{201}Hg est due pour l'essentiel à l'interaction des parois avec son moment ~~quadrupolaire~~ électrique dans les collisions.

Les causes de la relaxation de ^{199}Hg apparaissent comme très complexes; et leur étude se poursuit actuellement. Elle doit nous permettre de préciser en particulier le comportement des atomes sur les parois de la cellule qui renferme la vapeur. C'est là une direction intéressante dans laquelle peut se prolonger le travail que nous avons fait.

Nous espérons bientôt le prolonger également dans une autre direction : l'étude des propriétés nucléaires des isotopes radioactifs du mercure.

--:--:--

LARGEUR DE RAIE PAR BALAYAGE MAGNETIQUE

Nous cherchons à calculer les variations du signal de résonance optique lorsqu'on irradie une cellule de mercure à température ordinaire avec une lampe à mercure dont la raie d'émission est déplacée en fréquence par un champ magnétique (cf paragraphe III).

Le coefficient d'absorption de la cellule en fonction de la fréquence est :

$$k_{\nu} = k_0 e^{-\left(\frac{\nu - \nu_0}{u}\right)^2} = k_0 e^{-\omega^2}$$

Nous exprimerons toutes les fréquences dans ce calcul sur l'échelle des nombres sans dimension ω : l'origine coïncide avec la fréquence centrale ν_0 de la raie d'absorption de la cellule et l'unité représente la fréquence :

$$u = \frac{\nu_0}{c} \sqrt{\frac{2kT}{m}} = \frac{1}{\lambda_0} \sqrt{\frac{2RT}{M}} \approx 620 \text{ Mc/s}$$

La largeur Doppler à mi-hauteur est :

$$\Delta \nu_D = 2 \sqrt{\text{Log } 2} \cdot u = 1,66 u \approx 1030 \text{ Mc/s}$$

Nous supposons que la raie d'émission de la lampe n'est pas "renversée", est α fois plus large que la raie d'absorption de la cellule, et qu'elle est déplacée en fréquence d'une quantité $X \cdot u$; c'est-à-dire que l'intensité émise varie comme $e^{-\left(\frac{\omega - X}{\alpha}\right)^2}$.

Nous pouvons supposer, si la densité de vapeur n'est pas trop forte, que l'intensité de résonance optique I est proportionnelle à la quantité de lumière absorbée dans la cellule, soit :

$$I = \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-\left(\frac{\omega - X}{\alpha}\right)^2} \left[1 - e^{-k_0 l e^{-\omega^2}} \right] d\omega$$

(cf Mitchell et Zemansky - Resonance radiation and excited atoms - p. 122 et 323).

Si nous travaillons avec de très faibles densités de vapeur, en sorte que $k_0 \ell \ll 1$, l'expression ci-dessus se simplifie :

$$I = \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-\left(\frac{\omega - X}{\alpha}\right)^2} \cdot k_0 \ell e^{-\omega^2} d\omega = k_0 \ell \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-\omega^2 - \left(\frac{\omega - X}{\alpha}\right)^2} d\omega$$

L'exposant de l'exponentielle peut se transformer de la manière suivante :

$$\omega^2 + \left(\frac{\omega - X}{\alpha}\right)^2 = \left(\frac{\sqrt{1 + \alpha^2}}{\alpha} \omega - \frac{X}{\alpha \sqrt{1 + \alpha^2}}\right)^2 + \frac{X^2}{1 + \alpha^2} = y^2 + \frac{X^2}{1 + \alpha^2}$$

d'où
$$I = k_0 \ell \frac{\alpha}{\sqrt{1 + \alpha^2}} e^{-\frac{X^2}{1 + \alpha^2}} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-y^2} dy$$

$$I = k_0 \ell \sqrt{\pi} \frac{\alpha}{\sqrt{1 + \alpha^2}} \cdot e^{-\frac{X^2}{1 + \alpha^2}} = I_0 e^{-\frac{X^2}{\beta^2}} \quad \text{avec } \beta = \sqrt{1 + \alpha^2}$$

La courbe expérimentale de balayage magnétique a donc une largeur qui est égale à la largeur de la raie d'absorption multipliée par $\beta = \sqrt{1 + \alpha^2}$.

Inversement, connaissant β , on en déduit $\alpha = \sqrt{\beta^2 - 1}$.

Application : quand la lampe à mercure est refroidie au maximum, nous lisons sur les courbes expérimentales de la figure 3 une largeur à mi-hauteur d'environ 1900 Mc/s. On en déduit $\beta = 1,85$ et $\alpha = 1,55$. La largeur à mi-hauteur de la raie d'émission de la lampe est donc environ de 1600 Mc/s.

CHAMP MAGNETIQUE DE BOBINES D'HELMHOLTZ

C'est un sujet très classique; mais dans les calculs que nous avons trouvés déjà faits à ce sujet, le paramètre de distance des deux bobines n'intervient pas, ou bien intervient de manière trop compliquée. Cela nous a obligés à refaire les calculs de manière plus utilisable.

1°) Champ créé par une seule bobine mince, de rayon R, parcourue par un courant i (Ampères), en un point voisin de son axe Oz, situé à la distance r de cet axe et à la distance D du plan de la bobine. On suppose $r \ll \rho = \sqrt{R^2 + D^2}$.

Composante parallèle à l'axe Oz de la bobine :

$$H_z = \frac{i}{10} \cdot \frac{2\pi R^2}{\rho^3} \left[1 + \frac{3}{4} \cdot \frac{R^2 - 4D^2}{\rho^2} \cdot \frac{r^2}{\rho^2} - \frac{45}{64} \frac{12R^2D^2 - R^4 - 8D^4}{\rho^4} \cdot \frac{r^4}{\rho^4} + \dots \right]$$

Composante radiale, perpendiculaire à l'axe Oz :

$$H_r = \frac{i}{10} \cdot \frac{3\pi R^2}{\rho^3} \cdot \frac{Dr}{\rho^2} \left[1 + \frac{5}{8} \cdot \frac{3R^2 - 4D^2}{\rho^2} \cdot \frac{r^2}{\rho^2} + \dots \right]$$

2°) Champ créé par deux bobines minces de même axe, à la distance 2D l'une de l'autre, et de rayon R, en un point voisin de leur centre de symétrie. Le point est repéré par ses coordonnées polaires dans un système dont l'origine est le centre de symétrie : z parallèlement à l'axe, et r perpendiculairement à l'axe. On calcule le champ en ajoutant les expressions que l'on obtient en remplaçant dans les formules ci-dessus D par z + D et z - D.

$$\left\{ \begin{array}{l} H_z = \frac{i}{10} \cdot \frac{4\pi R^2}{\rho^3} \left[1 + \frac{3}{4} \frac{R^2 - 4D^2}{\rho^2} \cdot \frac{r^2 - 2z^2}{\rho^2} + \frac{15}{64} \cdot \frac{12R^2D^2 - R^4 - 8D^4}{\rho^4} \cdot \frac{24r^2z^2 - 3r^4 - 8z^4}{\rho^4} + \dots \right] \\ H_r = \frac{i}{10} \cdot \frac{4\pi R^2}{\rho^3} \cdot \frac{3}{2} \cdot \frac{rz}{\rho^2} \left[\frac{R^2 - 4D^2}{\rho^2} + \frac{5}{8} \cdot \frac{12R^2D^2 - R^4 - 8D^4}{\rho^4} \cdot \frac{4z^2 - 3r^2}{\rho^2} + \dots \right] \end{array} \right.$$

Dans le cas particulier de deux bobines en position d'Helmholtz ($D = R/2$)

$$\left\{ \begin{array}{l} H_z = \frac{0,900 \cdot ni}{R} \left[1 + \frac{18}{125} \cdot \frac{24r^2 z^2 - 3r^4 - 8z^4}{R^4} + \dots \right] \\ H_r = \frac{0,900 \cdot ni}{R} \cdot \frac{72}{125} \cdot \frac{rz(4z^2 - 3r^2)}{R^4} + \dots \end{array} \right.$$

3^o) Champ créé par deux bobines épaisses de même axe en un point voisin de leur centre de symétrie. Il faut faire la somme des champs créés par chacune des spires individuelles, c'est-à-dire l'intégrale des formules ci-dessus par rapport aux variables R et D dans la section du bobinage. On introduit pour cela la densité de courant \mathcal{G} telle que $idn = \mathcal{G} \cdot dRdD$ ou encore $\mathcal{G} S = ni$, où S est la surface de la section du bobinage et n le nombre de spires de chaque bobine (parcourues par le courant i en Ampères). En appelant R_0 le rayon moyen des bobines on obtient :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{R_0}{4\pi n (i/10)} \cdot H_z = A + \frac{3}{4} B \cdot \frac{r^2 - 2z^2}{R_0^2} + \frac{15}{64} C \frac{24r^2 z^2 - 3r^4 - 8z^4}{R_0^4} + \dots \\ \frac{R_0}{4\pi n (i/10)} \cdot H_r = + \frac{3}{2} B \frac{zr}{R_0^2} + \frac{15}{16} C \frac{zr(4z^2 - 3r^2)}{R_0^4} + \dots \end{array} \right.$$

avec les nombres sans dimension :

$$\left\{ \begin{array}{l} A = \frac{R_0}{S} \iint \frac{R^2}{\rho^3} dR dD \\ B = \frac{R_0^3}{S} \iint \frac{R^2 (R^2 - 4D^2)}{\rho^7} dR dD \\ C = \frac{R_0^5}{S} \iint \frac{R^2 (12R^2 D^2 - R^4 - 8D^4)}{\rho^{11}} dR dD \end{array} \right.$$

-a) Rappelons que pour deux bobines minces en position d'Helmholtz ($D = R_0/2$)

$$\left\{ \begin{array}{l} A = \frac{8}{5\sqrt{5}} = 0,716 \quad \left(\frac{4\pi}{10} A = 0,900 \right) \\ B = 0 \\ C = \frac{2^7 \cdot 3}{5^4} \quad A = 0,615 \text{ A} \quad \left(\frac{15}{64} C = \frac{18}{125} A = 0,144 \text{ A} \right) \end{array} \right.$$

-b) Intégration exacte pour le cas de bobines épaisses - On appelle a et b les distances au centre de symétrie des deux plans perpendiculaires à l'axe Oz qui limitent chaque bobine ($a < b$); on appelle u et v les rayons des deux cylindres d'axe Oz qui limitent les bobines ($u < v$) (cf figure). On obtient :

$$\left\{ \begin{array}{l} A = \frac{R_o^2}{S} (F_{bv} - F_{bu} - F_{av} + F_{au}) \quad \text{avec } F_{bv} = \frac{b}{2R_o} \text{Log} \frac{\sqrt{b^2 + v^2} + v}{\sqrt{b^2 + v^2} - v} \\ B = \frac{R_o^2}{S} (G_{bv} - G_{bu} - G_{av} + G_{au}) \quad \text{avec } G_{bv} = \frac{R_o}{3b} \cdot \frac{v^3}{(b^2 + v^2)^{3/2}} \end{array} \right.$$

4°) Développement approché du coefficient B des termes du second ordre dans le cas de bobines d'épaisseur moyenne. Nous définissons de nouveaux paramètres sans dimension k, q et α supposés petits devant 1 :

$$\text{rayons limites } \left\{ \begin{array}{l} v = R_o (1 + q) \\ u = R_o (1 - q) \end{array} \right.$$

$$\text{distances au centre des plans limites } \left\{ \begin{array}{l} b = R_o \left(\frac{1+\alpha}{2} + k \right) \\ a = R_o \left(\frac{1+\alpha}{2} - k \right) \end{array} \right.$$

q et k dépendent du format des bobines; α mesure l'écart à la position d'Helmholtz. On calcule le développement de B en fonction de ces paramètres à partir de l'intégrale exacte indiquée ci-dessus. On simplifie le calcul en notant que par raison de symétrie seuls doivent subsister finalement les termes en $k, q, f(k^2, q^2)$; notant encore que $4qk = S/R_o^2$, on obtient :

$$B = \frac{2^7}{3 \cdot 5^4 \cdot \sqrt{5}} (36k^2 - 31q^2 - 30\alpha + \dots) = 0,917 (1,20k^2 - 1,03q^2 - \alpha + \dots)$$

La condition d'homogénéité s'écrit $30\alpha \simeq 36 k^2 - 31 q^2$. Elle indique de combien il faut changer la distance des bobines, suivant leur format, pour annuler les termes du second ordre en r et z.

Soit α_0 la valeur exacte de α qui annule le coefficient B; nous poserons $\alpha = \alpha_0 + \Delta\alpha$. Cela nous permet d'exprimer simplement les écarts relatifs de champ par rapport au champ H_0 au centre de symétrie :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\Delta H_z}{H_0} = + 0,96 \Delta\alpha \frac{2z^2 - r^2}{R_0^2} + 0,144 \frac{24r^2 z^2 - 3r^4 - 8z^4}{R_0^4} + \dots \\ \frac{\Delta H_r}{H_0} = + 1,92 \Delta\alpha \frac{zr}{R_0^2} + 0,576 \frac{zr(4z^2 - 3r^2)}{R_0^4} + \dots \end{array} \right.$$

$\Delta\alpha > 0$ si les deux bobines sont trop écartées

$\Delta\alpha < 0$ si les deux bobines sont trop rapprochées.

C'est la première de ces deux formules qui nous a servi à calculer les écarts théoriques de champ, pour les comparer avec les résultats de nos mesures.

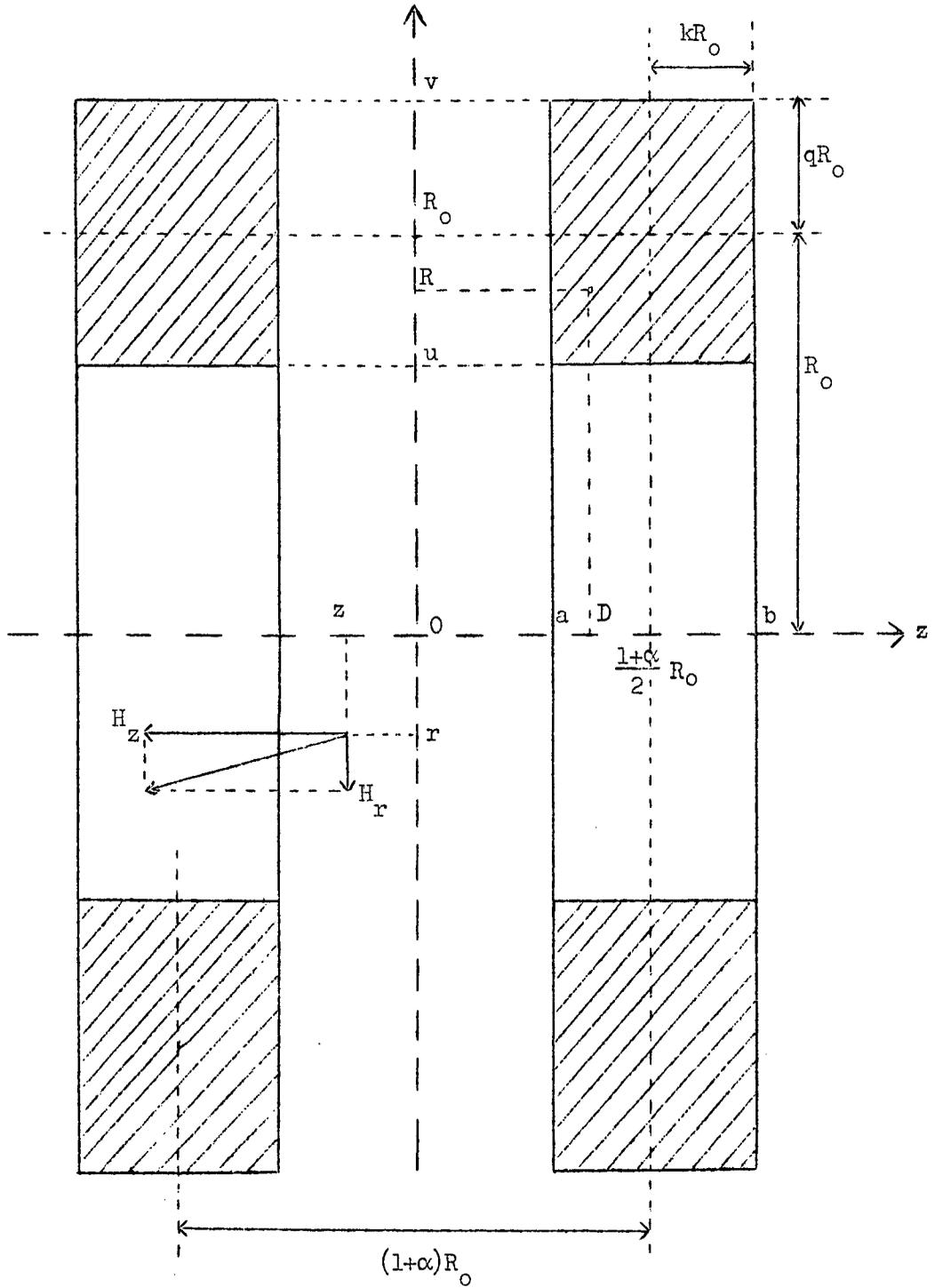
BIBLIOGRAPHIE

A.E. RUARK et M.F. PETERS - J.O.S.A. (1926), 13, 205.

A.F. SAUTER - Zeit fur Physik , (1914), 122, 120.

S.T. LIN et A.R. KAUFMANN - Rev. of Mod. Phys. (1953), 25, 182.

P. CRIVET et alii - La Résonance Paramagnétique nucléaire (C.N.R.S., Paris 1955), p. 199).



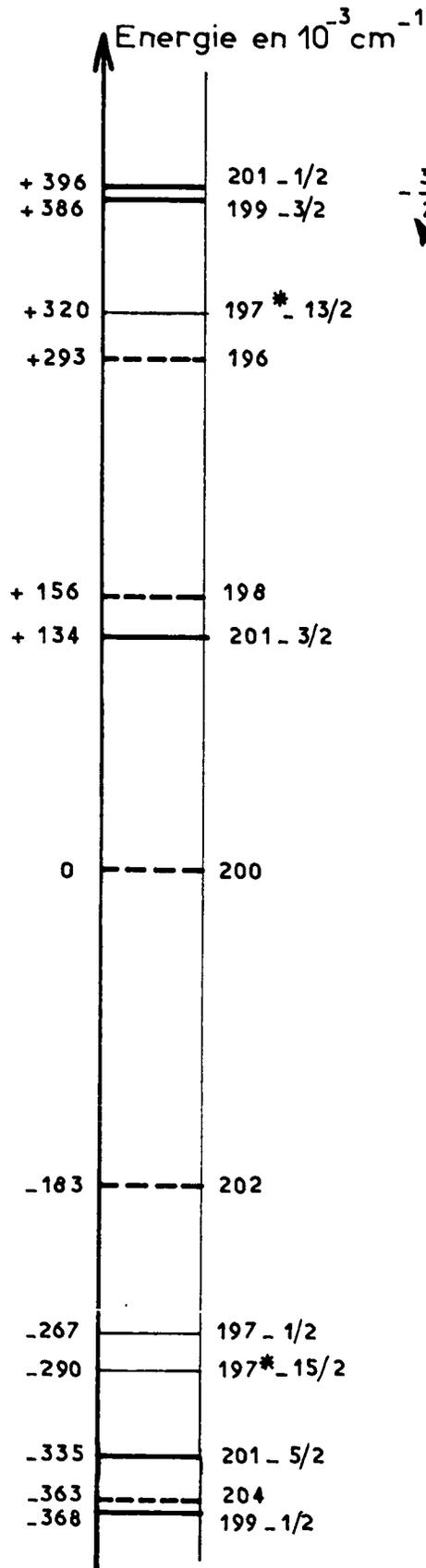
Bobines de Helmholtz

BIBLIOGRAPHIE

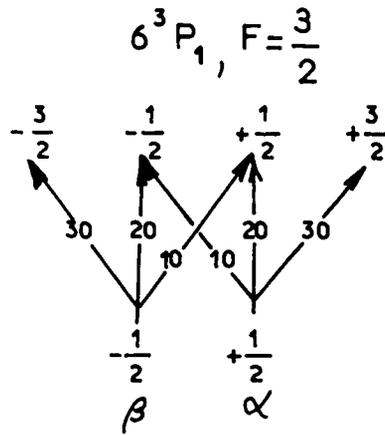
- (1) A. KASTLER - J. de Phys. (1950), 11, 255.
- (2) J. BROSSEL et A. KASTLER - C.R. (1949), 229, 1213.
- (3) J. BROSSEL, P. SAGALYN et F. BITTER - Phys. Rev. (1950), 79, 196, 255.
J. BROSSEL et F. BITTER - Phys. Rev. (1952), 86, 311.
J. BROSSEL - (Thèse, Paris, 1951) - Ann. de Phys. (1952), 7, 622.
- (4) J. BROSSEL, A. KASTLER et J.M. WINTER - J. de Phys. (1952), 13, 668.
J. BROSSEL, B. CAGNAC et A. KASTLER - C.R. (1953), 237, 984.
J. BROSSEL, B. CAGNAC et A. KASTLER - J. de Phys. (1954), 15, 6.
- (5) H.G. DEHMELT - Phys. Rev. (1957), 105, 1487 et 1924.
W.E. BELL et A.L. BLOOM - Phys. Rev. (1957), 107, 1559.
W. FRANZEN et A.G. EMSLIE - Phys. Rev. (1957), 108, 1453.
W.E. BELL et A.L. BLOOM - Phys. Rev. (1958), 109, 219.
M. ARDITI et T.S. CARVER - Phys. Rev. (1958), 109, 1012.
H.G. DEHMELT - Phys. Rev. (1958), 109, 381.
P. FRANKEN, R. SANDS et J. HOBART - Phys. Rev. Lett. (1958), 1, 52.
R. NOVICK et H.E. PETERS - Phys. Rev. Lett. (1958), 1, 54.
- (6) A. KASTLER - Physica (1951), 17, 191.
" " Proc. Phys. Soc. (1954), A17, 853.
" " J.O.S.A. (1957), 47, 460.
" " Suppl. Nuovo Cimento (1957), 6, 1148.
- (7) J. MARGERIE, J. BROSSEL et A. KASTLER - C.R. (1955), 241, 474.
- (8) QUANTUM ELECTRONICS - (édité par Ch.H. TOWNES, Columbia University Press, New York, 1960), J. BROSSEL p. 82.
- (9) F. BITTER et J. BROSSEL - Phys. Rev. (1952), 85, 1051.
- (10) F. BITTER, R.F. LACEY et B. RICHTER - Rev. of Mod. Phys. (1953), 25, 174.
- (11) J.P. BARRAT, J. BROSSEL et A. KASTLER - C.R. (1954), 239, 1196.
A. BLANDIN et J.P. BARRAT - C.R. (1956), 243, 2041.
W.E. BELL et A.L. BLOOM - Bull. Am. Phys. Soc. (1957), II,2, 384.
- (12) B. CAGNAC, J. BROSSEL et A. KASTLER - C.R. (1958), 246, 1827.
B. CAGNAC - J. de Phys. (1958), 19, 863.
- (13) B. CAGNAC et J. BROSSEL - C.R. (1959), 249, 77.
- (14) A.C.G. MITCHELL et M.W. ZEMANSKY - Resonance radiation and excited atoms (Cambridge University Press, Londres 1934), p. 95.
- (15) M.A. GUIOCHON, J.E. BLAMONT et J. BROSSEL - C.R. (1956), 243, 1859.
" " " " - J. de Phys. (1957), 18, 99.
J.P. BARRAT - J. de Phys. (1959), 20, 657.

- (16) A.C.G. MITCHELL et M.W. ZEMANSKY - Resonance radiation and excited atoms
(Cambridge University Press, Londres 1934), p. 146 et 147.
- (17) H. SCHULER et J.E. KEYSTON - Zeit. f. Physik (1931), 72, 423.
H. SCHULER et Th. SCHMIDT - Zeit. f. Phys. (1935), 98, 239.
J. BLAISE et H. CHANTREL - J. de Phys. (1957), 18, 193.
P.L. SAGALYN, A.C. MELISSINOS et F. BITTER - Phys. Rev. (1958), 109, 375.
- (18) A.C. MELISSINOS - Phys. Rev. (1959), 115, 126.
A.C. MELISSINOS et S.P. DAVIS - Phys. Rev. (1959), 115, 130.
- (19) E.L. HILL - Proc. Nat. Ac. Sc. USA (1929), 15, 779.
D.R. INGLIS - Zeit. f. Phys. (1933), 84, 466.
- (20) C. CASSIGNOL - J. de Phys. (1956), 17, supplément au n° 11.
C. CASSIGNOL, G. RANC et R. SALVAUDON - J. de Phys. (1958), 19, 150A.
R. BERNAS et C. CASSIGNOL - J. de Phys. (1960), 21, 566.
- (21) W.F. MEGGERS - J. Opt. Soc. Am. (1948), 38, 7.
E. JACOBSEN et G.R. HARRISON - J. Opt. Soc. Am. (1949), 39, 1054.
W.F. MEGGERS et F.O. WESTFALL - J. of Research N.B.S. (1950), 44, 447.
- (22) O. BUHL - Zeit. f. Phys. (1938), 109, 180 et 110, 395.
F. BITTER, H. PLOTKIN, B. RICHTER, A. TEVIOTDALE et J.E.R. YOUNG -
Phys. Rev. (1953), 91, 421.
F. BITTER, S.P. DAVIS, B. RICHTER et J.E.R. YOUNG - Phys. Rev. (1954), 96,
p. 1531.
- (23) Nelly ROLLET - Diplôme d'Études Supérieures, Paris 1955.
- (24) C. COHEN-TANNOUDJI - Diplôme d'Études Supérieures, Paris 1955
- (25) W.G. PROCTOR et F.C. YU - Phys. Rev. (1951), 81, 20.
- (26) P. GRIVET, M. SOUTIF et M. BUYLE-BODIN - C.R. (1949), 229, 113.
M. SOUTIF - (Thèse, Paris 1950) - Revue Scientifique (1951), 89, 203.
- (27) P. GRIVET et aliis - La résonance paramagnétique nucléaire (C.N.R.S.,
Paris 1955), p. 143.
- (28) W. FAUST, M. MacDERMOTT et W. LICHTEN - Bull. Am. Phys. Soc. (1958), II,3,
p. 371.
M.N. MacDERMOTT - Thèse, Columbia University, 1959.
- (29) R.H. KOHLER - Thèse, Massachusetts Institute of Technology, 1960.
C.V. STAGER - Thèse, Massachusetts Institute of Technology, 1960.
- (30) W.E. LAMB - Phys. Rev. (1941), 60, 817.
- (31) H.A. THOMAS, R.L. DRISCOLL et J.A. HIPPLE - Phys. Rev. (1950), 78, 787.
W. WILHELMY - Ann. der Phys. (1957), 19, 329.
R.L. DRISCOLL et P.L. BENDER - Phys. Rev. Lett. (1958), 11, 413.

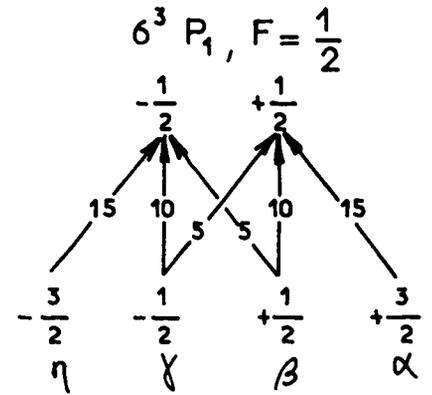
- (32) E.R. COHEN, J.W.M. DU MOND, T.W. LAYTON et J.S. ROLLET - Rev. Mod. Phys. (1955), 27, 363.
E.R. COHEN, J.W.M. DU MOND - Phys. Rev. Lett. (1958), 1, 291 et 382.
- (33) H.SOMMER, H.A. THOMAS et J.A. HIPPLE - Phys. Rev. (1951), 82, 697.
D.J. COLLINGTON, A.N. DELLIS, J.H. SANDERS et K.C. TURBERFIELD - Phys. Rev. (1955) 99, 1622
K.R. TRIGGER - Bull. Am. Phys. Soc. (1956), II,1, 220.
- (34) F. BLOCH - Phys. Rev. (1946), 70, 460.
- (35) W. FRANZEN - Phys. Rev. (1959), 115, 850.
- (36) H.C. TORREY - Phys. Rev. (1949), 76, 1059.
- (37) I.I. RABI - Phys. Rev. (1937), 51, 652.
- (38) J.M. WINTER - (Thèse Paris, 1958) - Ann. de Phys. (1959), 4, 745.
- (39) E. MAJORANA - Nuovo Cimento (1932), 9, 43.
- (40) F. BLOCH et A. SIEGERT - Phys. Rev. (1940), 57, 522.
- (41) R.K. WANGSNES et F. BLOCH - Phys. Rev. (1953), 89, 728.
F. BLOCH - Phys. Rev. (1956), 102, 104.
F. BLOCH - Phys. Rev. (1957), 105, 1206.
- (42) J.P. BARRAT et C. COHEN-TANNOUDJI - à paraître.
- (43) N. BLOEMBERGEN, E.M. PURCELL et R.V. POUND - Phys. Rev. (1948), 73, 679.
Y. AYANT - J. de Phys. (1955), 16, 411.
A. ABRAGAM - Cours de résonance magnétique nucléaire.
- (44) H.G. DEHMELT - Bull. Am. Phys. Soc. (1958), II,2, 9.
- (45) J.F. WAYMOUTH, S.W. THOMPSON, L.C. BRADLEY et H.H. STROKE - Quarterly Progress Report of M.I.T. (1960), 58, 102.
- (46) F. BLOCH - Phys. Rev. (1954), 94, 496.
- (47) S. MILLMANN - Phys. Rev. (1939), 55, 628.
- (48) H.G. DEHMELT, H.G. ROBINSON et W. GORDY - Phys. Rev. (1954), 93, 480.
K. MURAKAWA - Phys. Rev. (1955), 98, 1285.
R.V. POUND et G.K. WERTHEIM - Phys. Rev. (1956), 102, 396.
- (49) A.C.G. MITCHELL et W. ZEMANSKY - Resonance Radiation and Excited Atoms, p. 200
- (50) C.H. TOWNES et B.P. DAILEY - J. Chem. Phys. (1952), 20, 35.
A. HONIG, M. MANDER, M.L. STITCH et C.H. TOWNES - Phys. Rev. (1954), 96, 627.



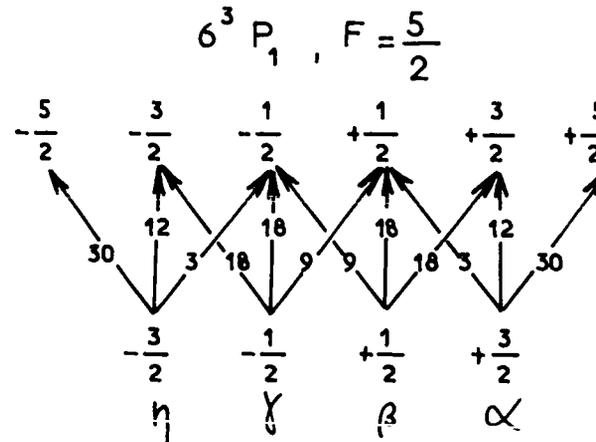
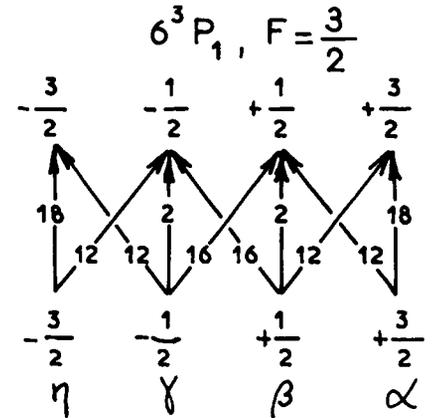
Structure fine de la raie 2537 Å



Composantes Zeeman de ^{199}Hg

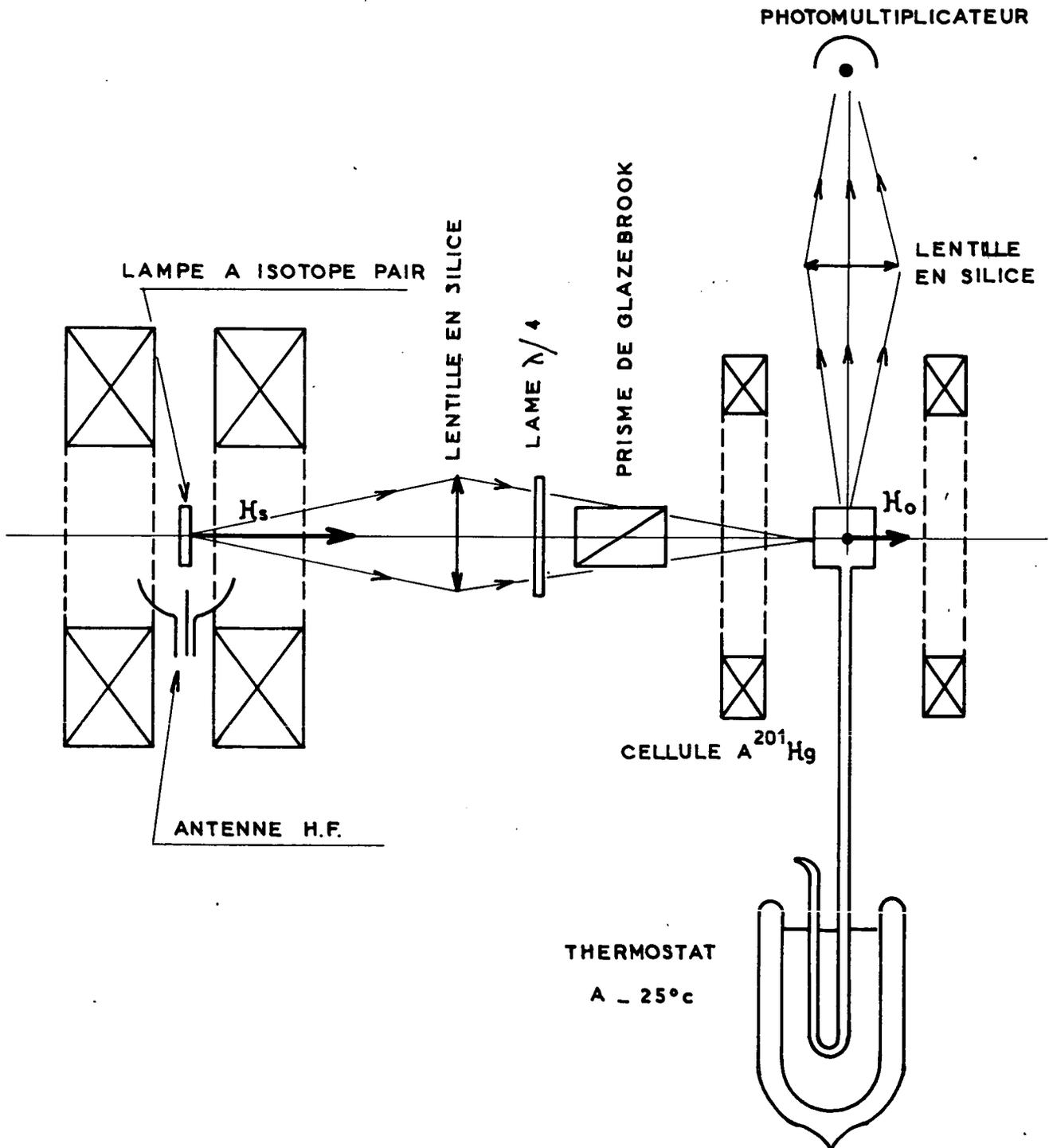


Composantes Zeeman de ^{201}Hg



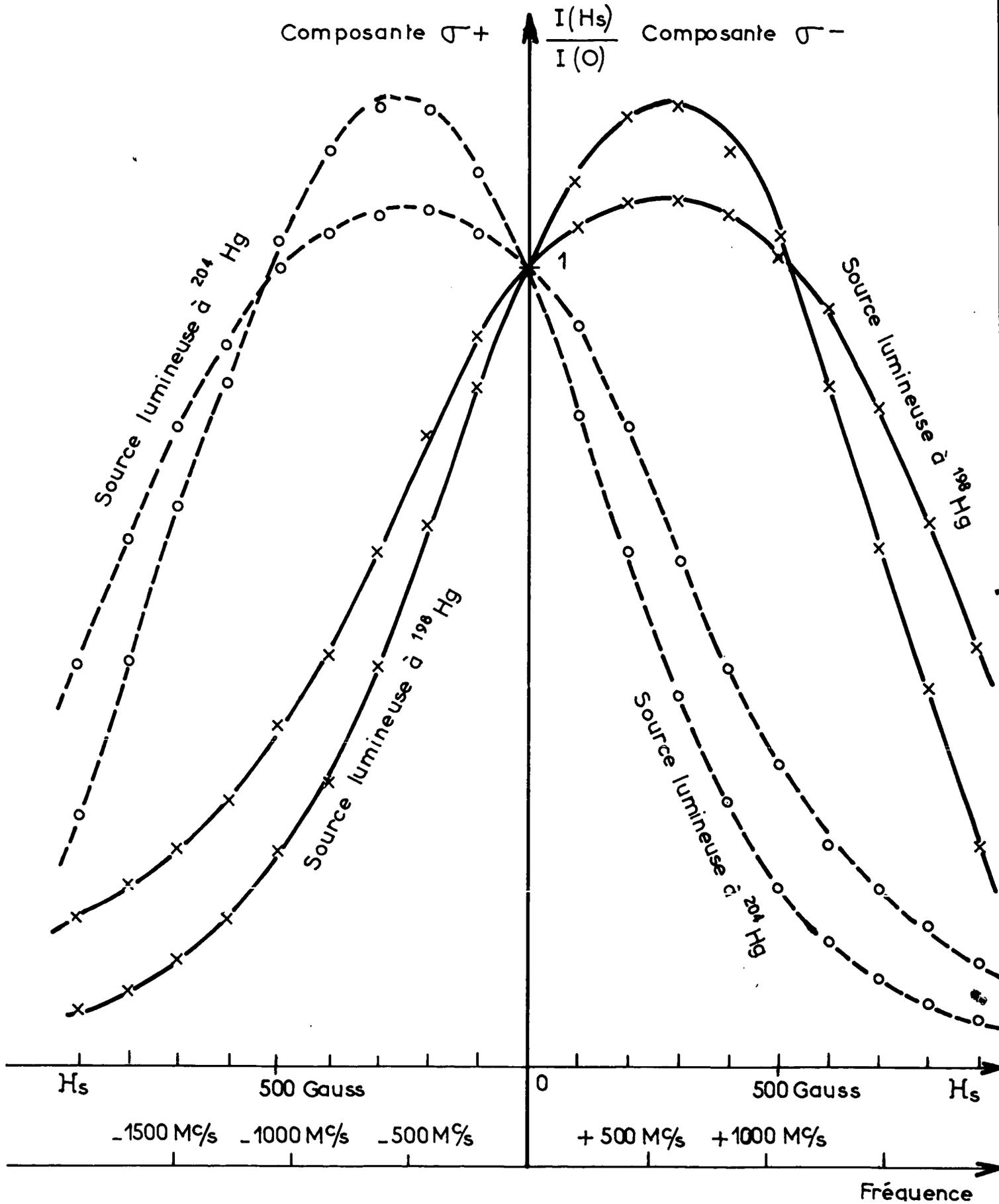
LES EXPERIENCES
DE BALAYAGE MAGNETIQUE

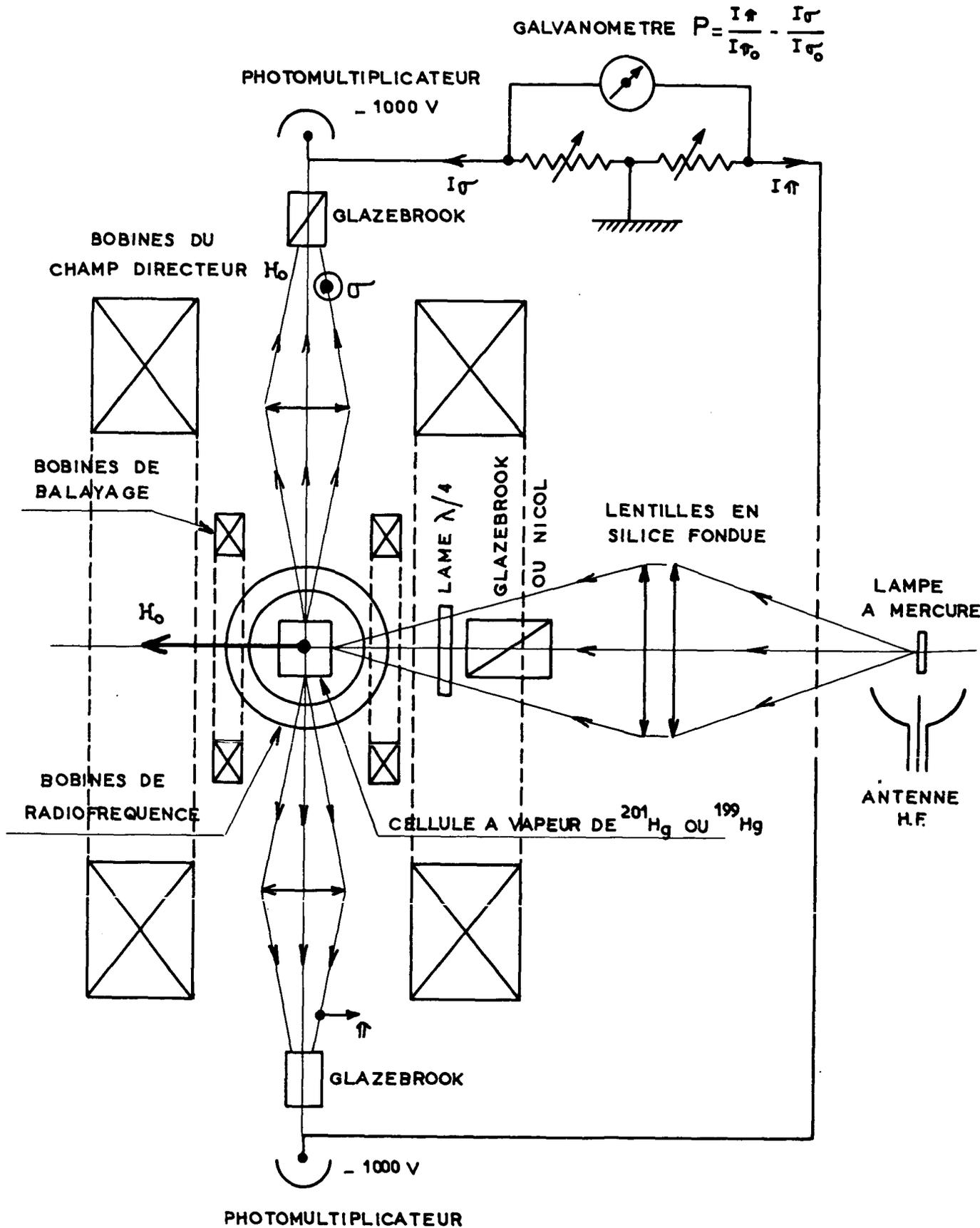
Fig. 2



BALAYAGE MAGNETIQUE AVEC
 UNE CELLULE A ^{201}Hg

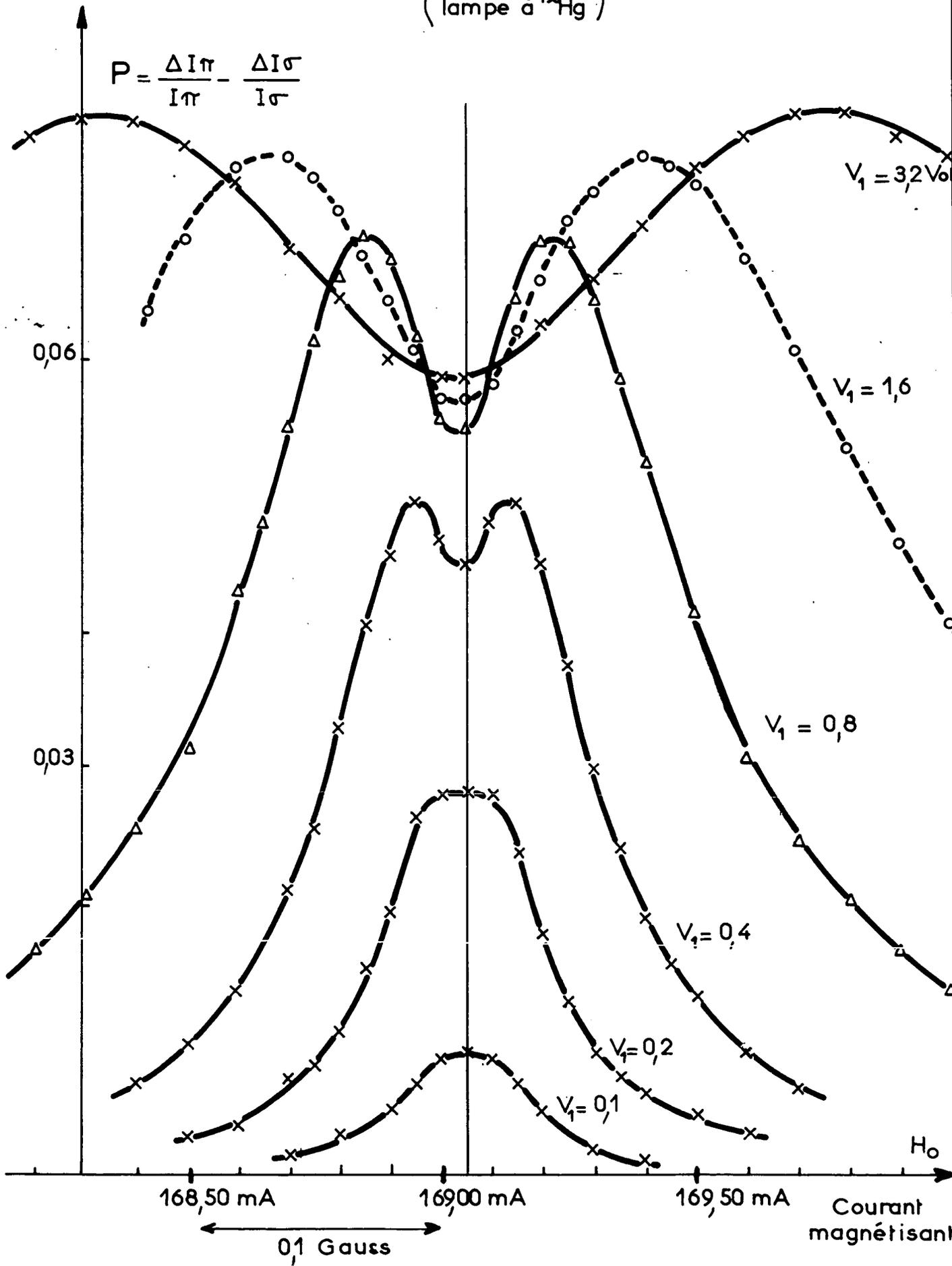
Fig. 3



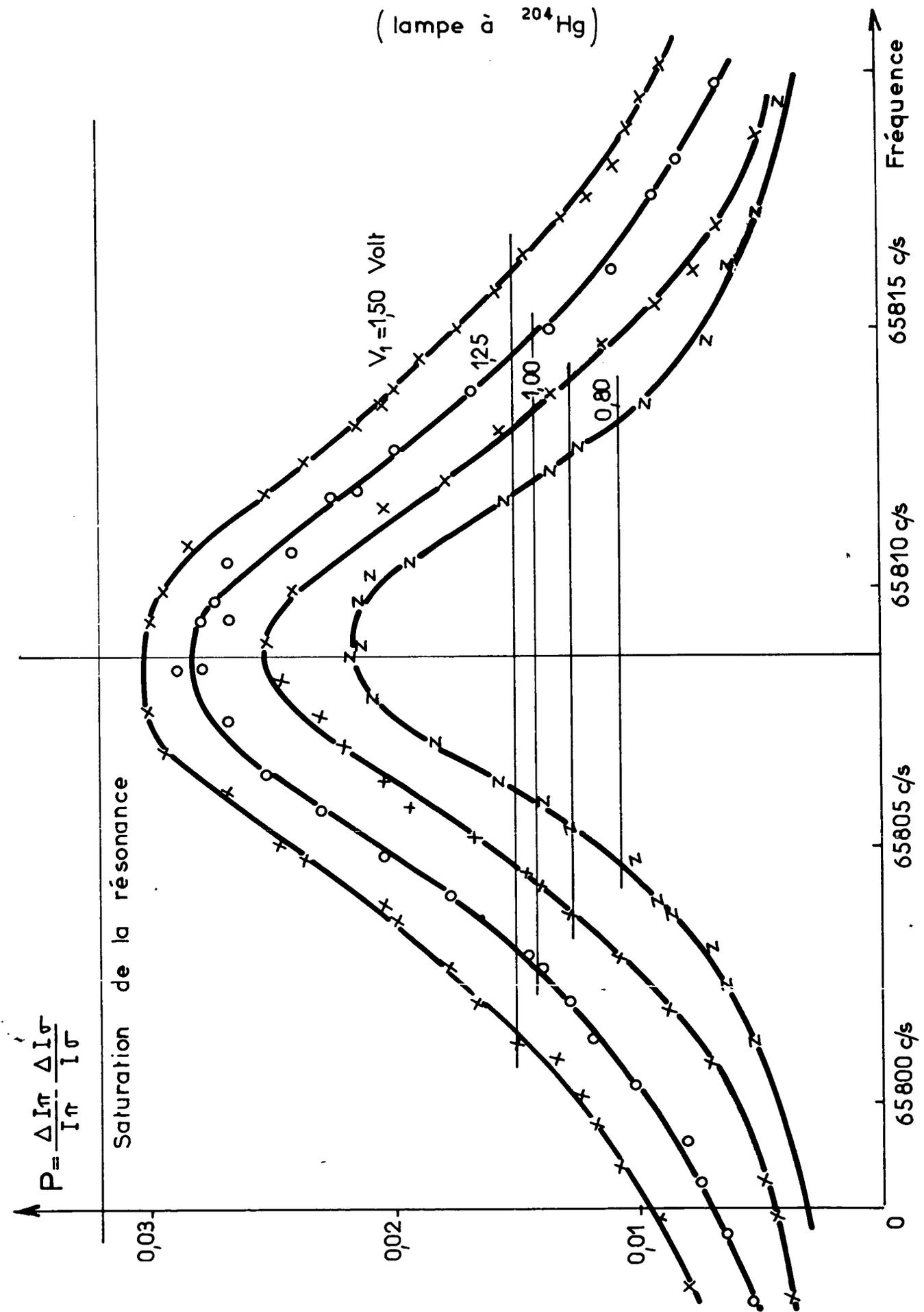


ALIGNEMENT DE ^{201}Hg
(lampe à ^{198}Hg)

Fig. 5



(lampe à ^{204}Hg)



ORIENTATION DE ^{199}Hg
(lampe à ^{204}Hg)

Intensité lumineuse

1

Saturation de la résonance

0,9

0,8

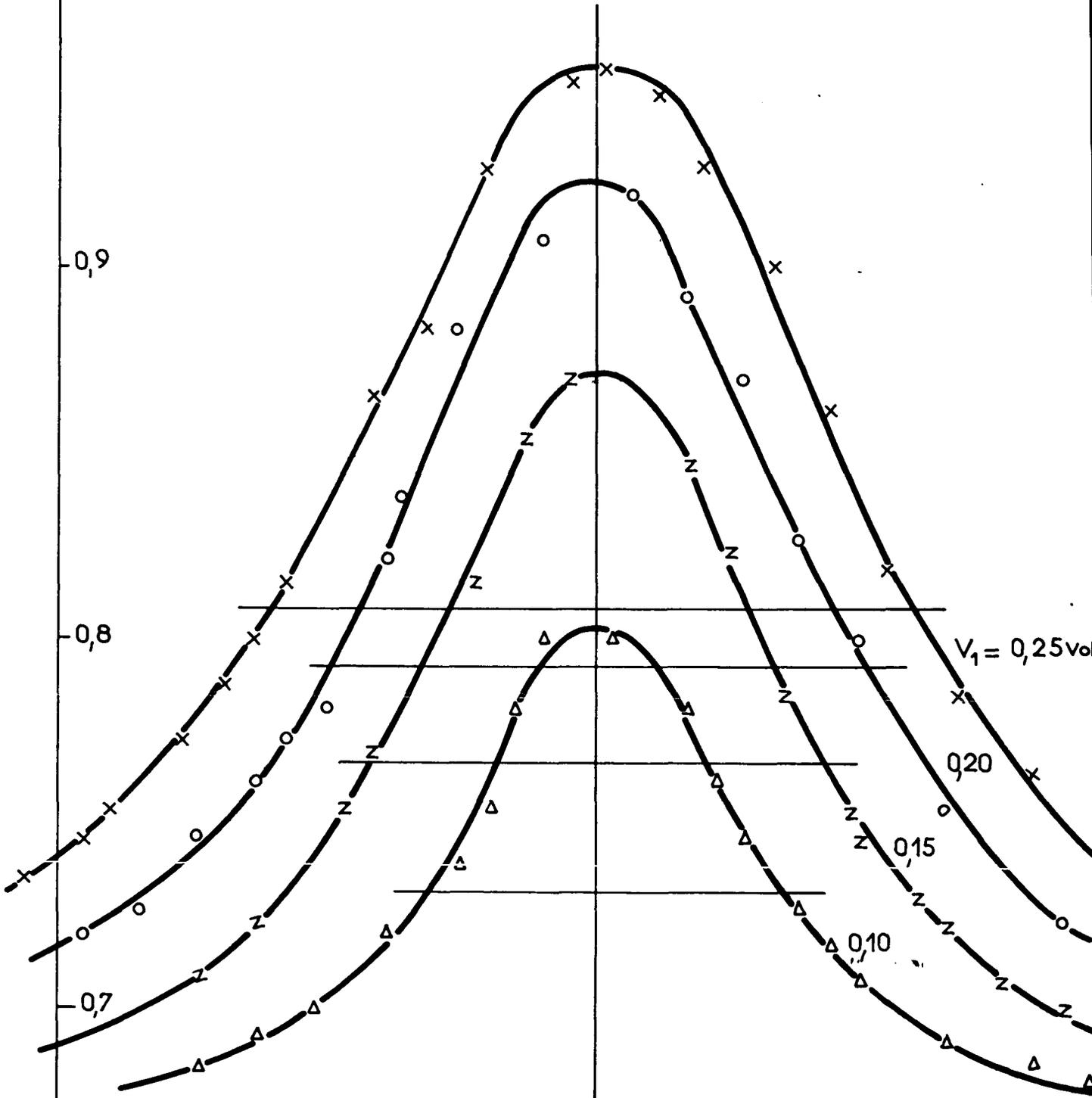
0,7

178269 c/s

178270 c/s

178271 c/s

178272 c/s

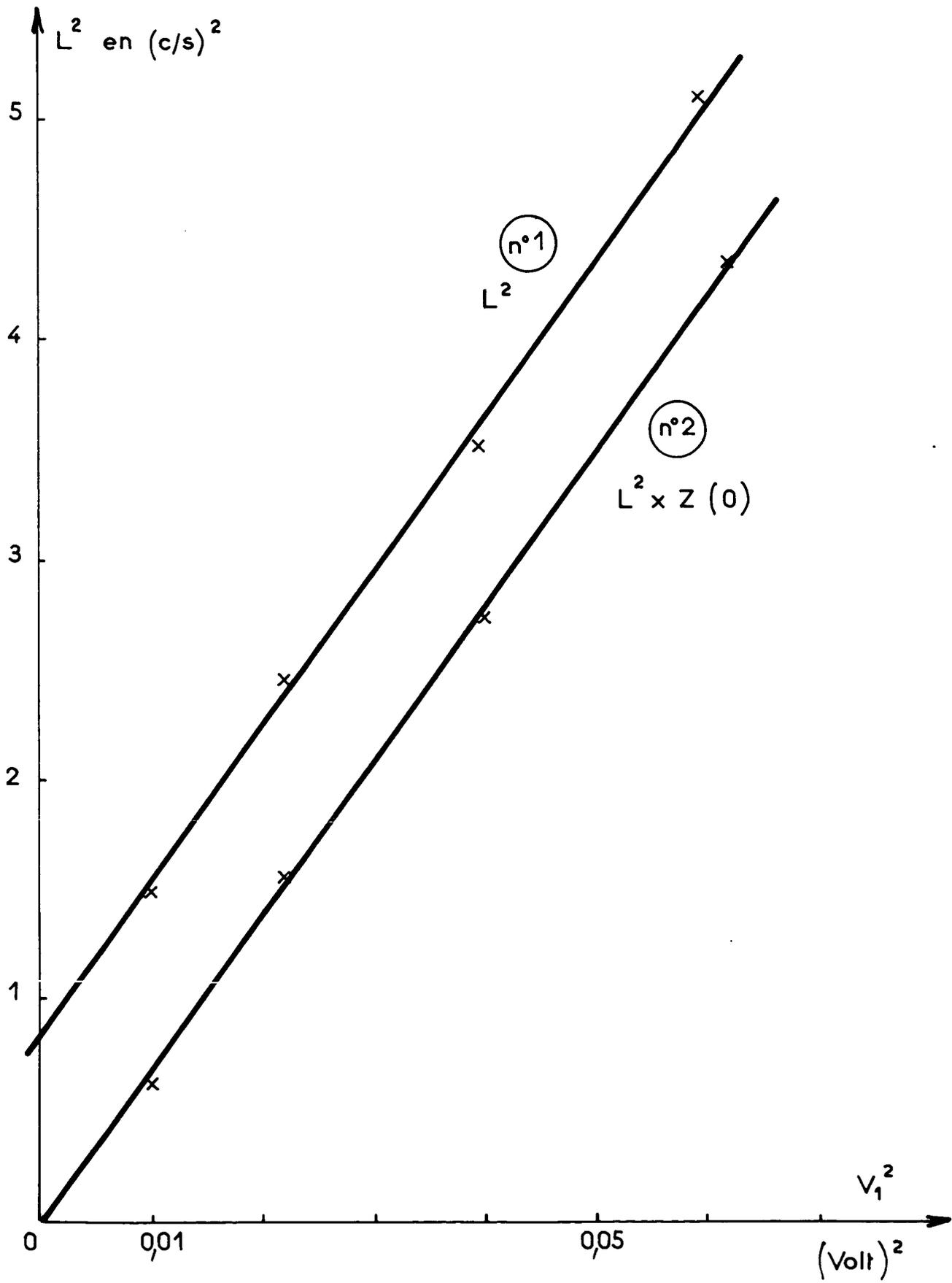


$V_1 = 0,25\text{vol}$

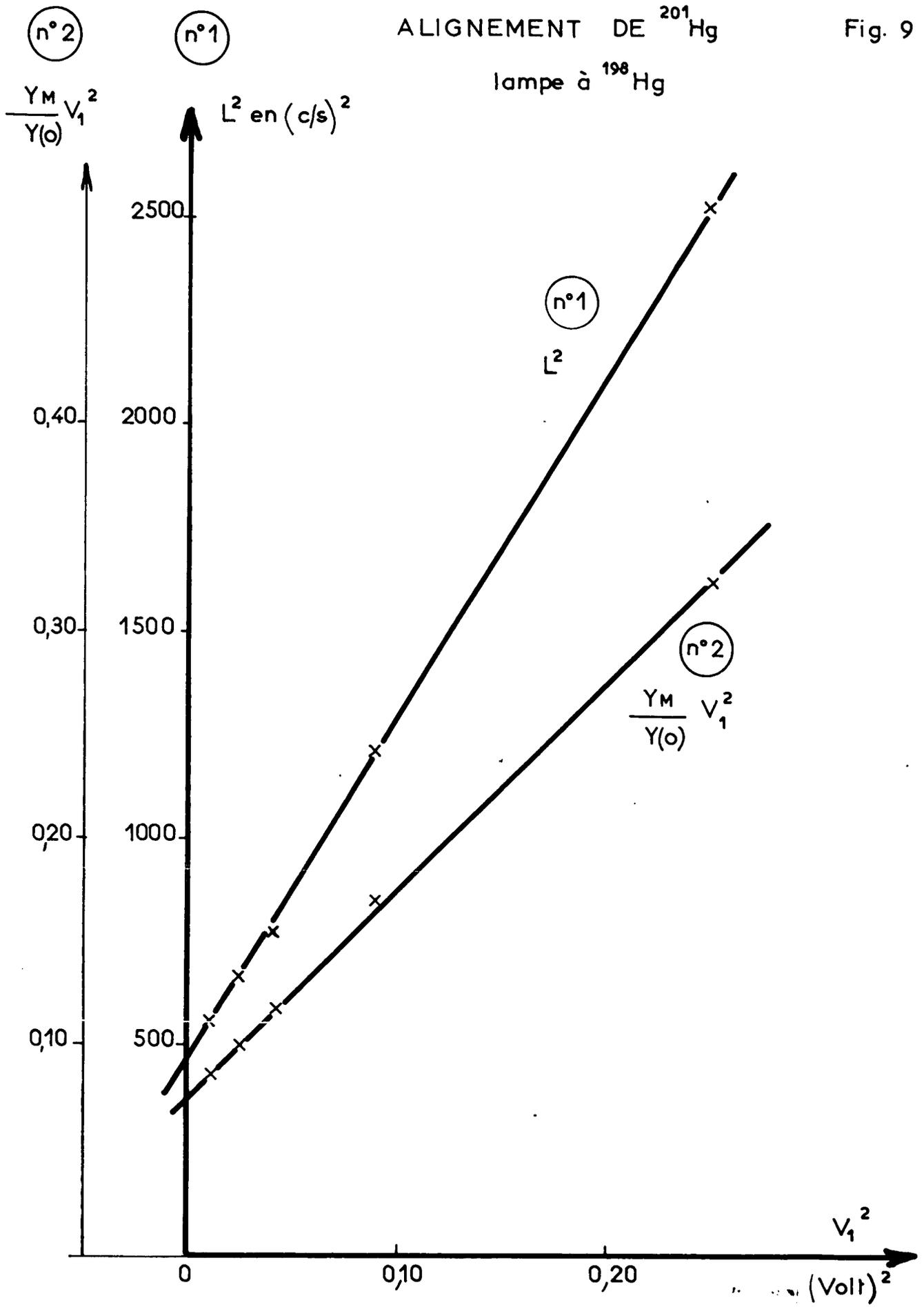
0,20

0,15

0,10



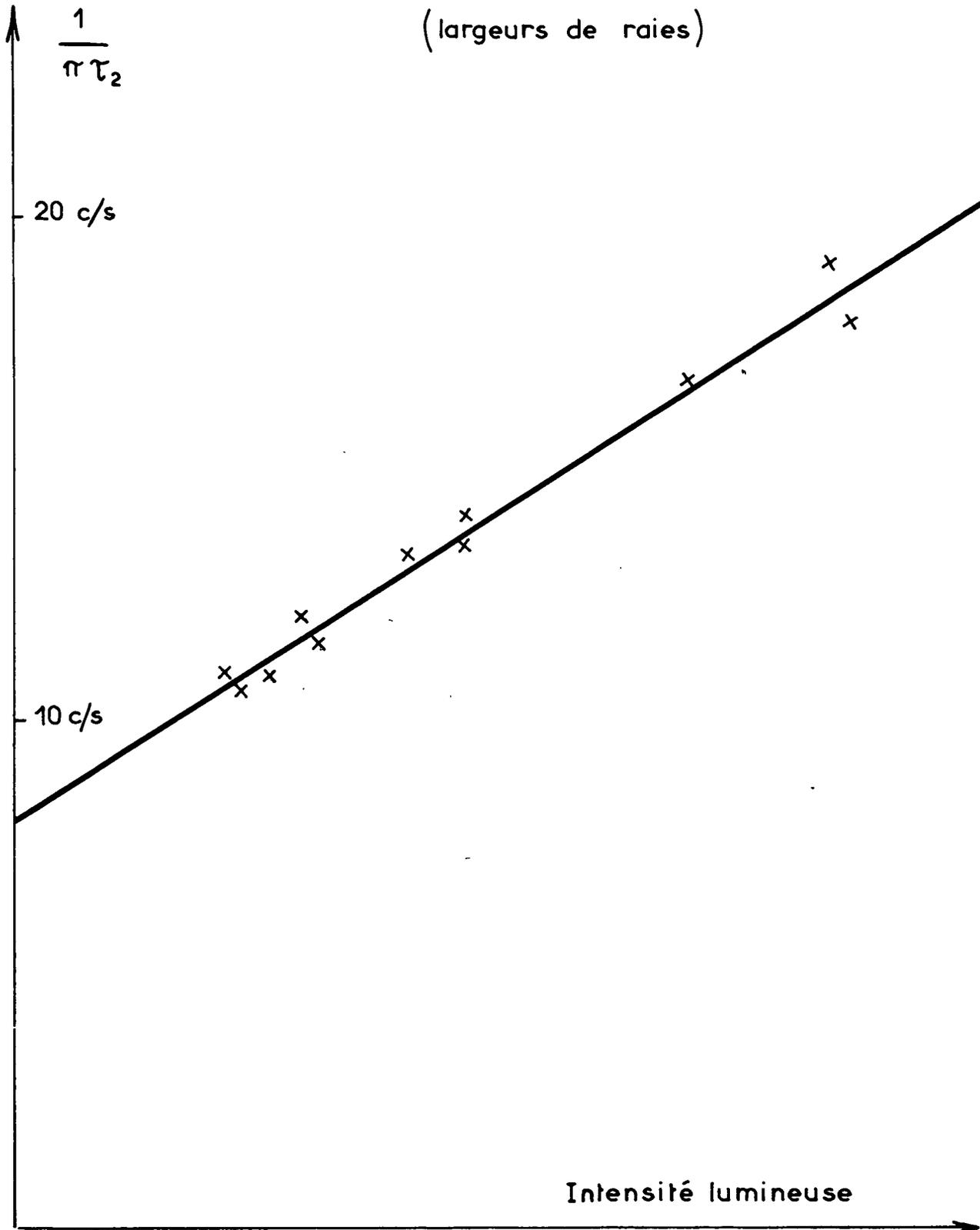
lampe à ^{198}Hg



ALIGNEMENT DE ²⁰¹Hg

Fig. 10

(largeurs de raies)



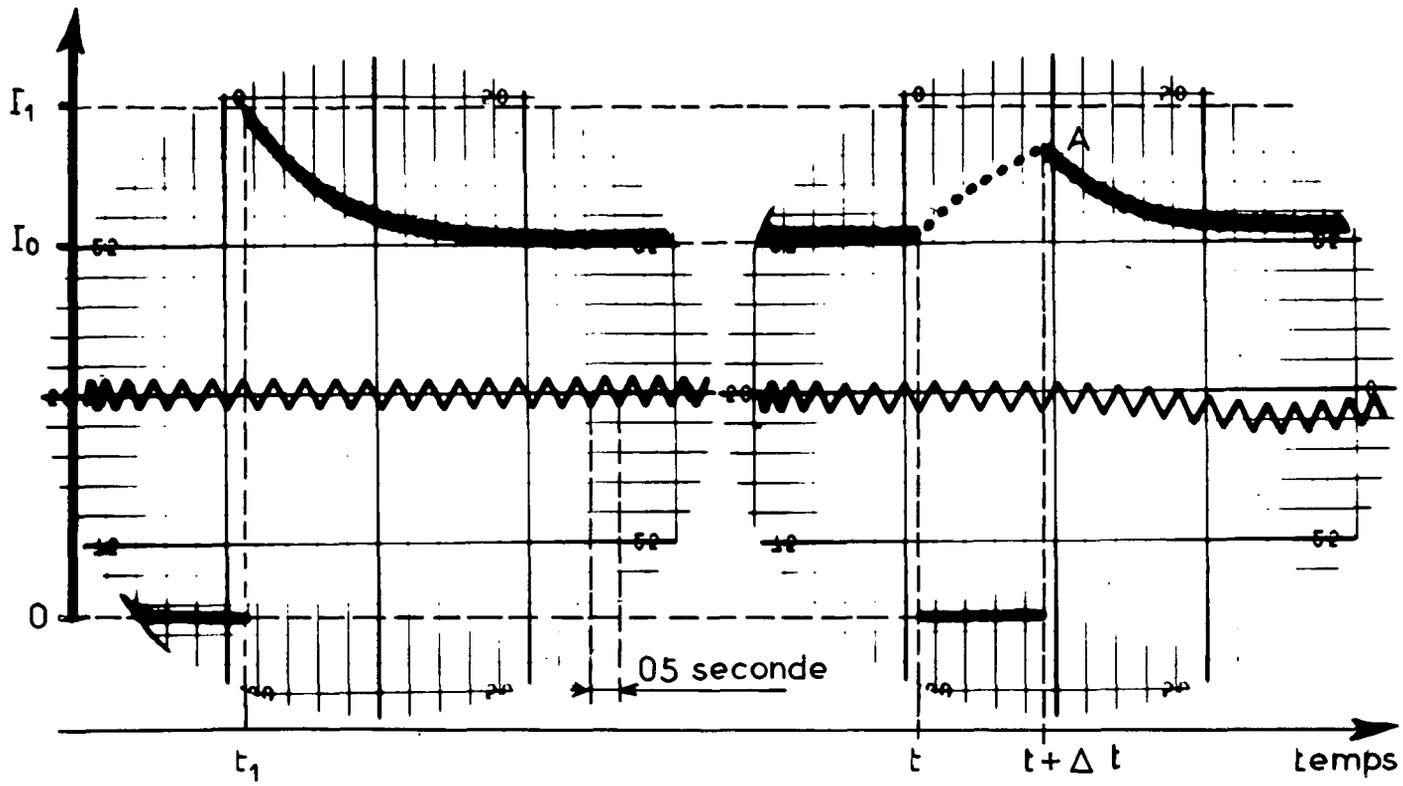
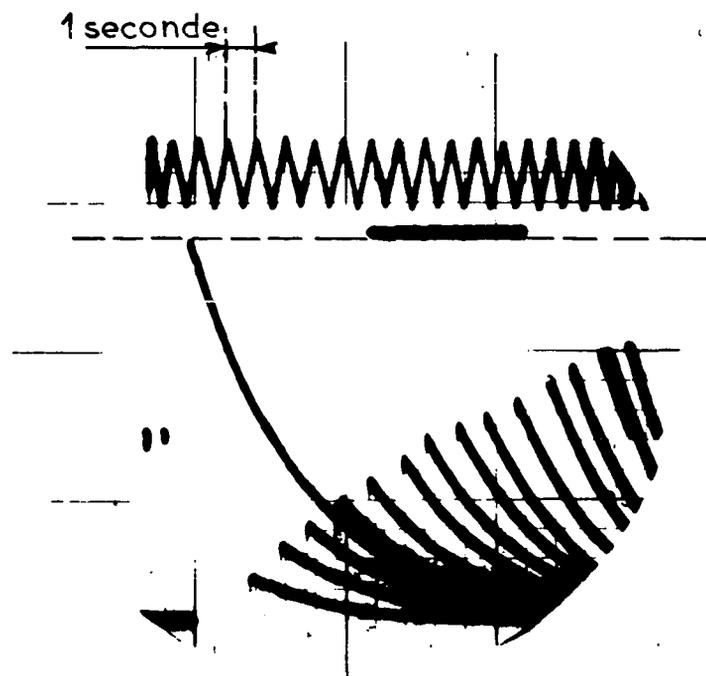
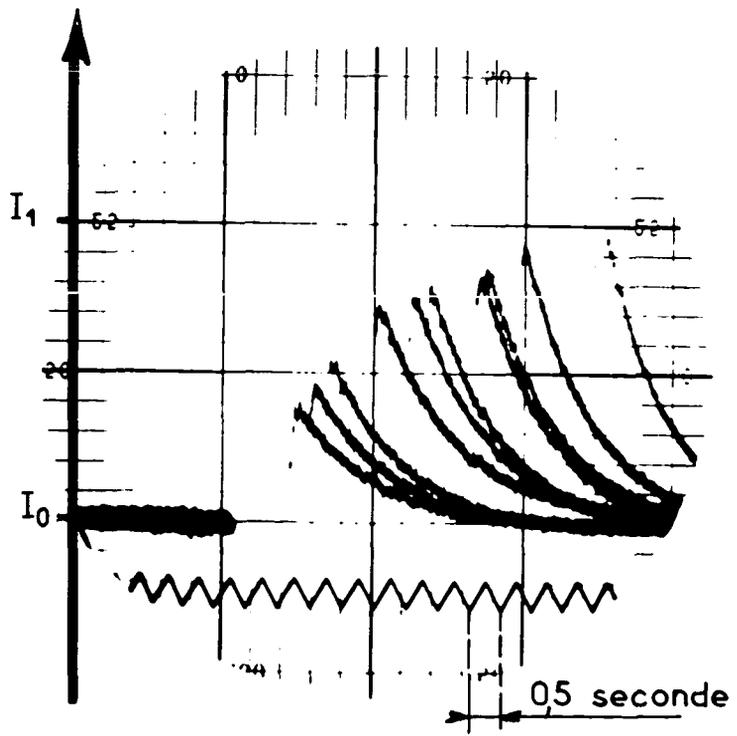


Fig. 11 a

Fig. 11 b

Fig. 11 c

Fig. 11 d



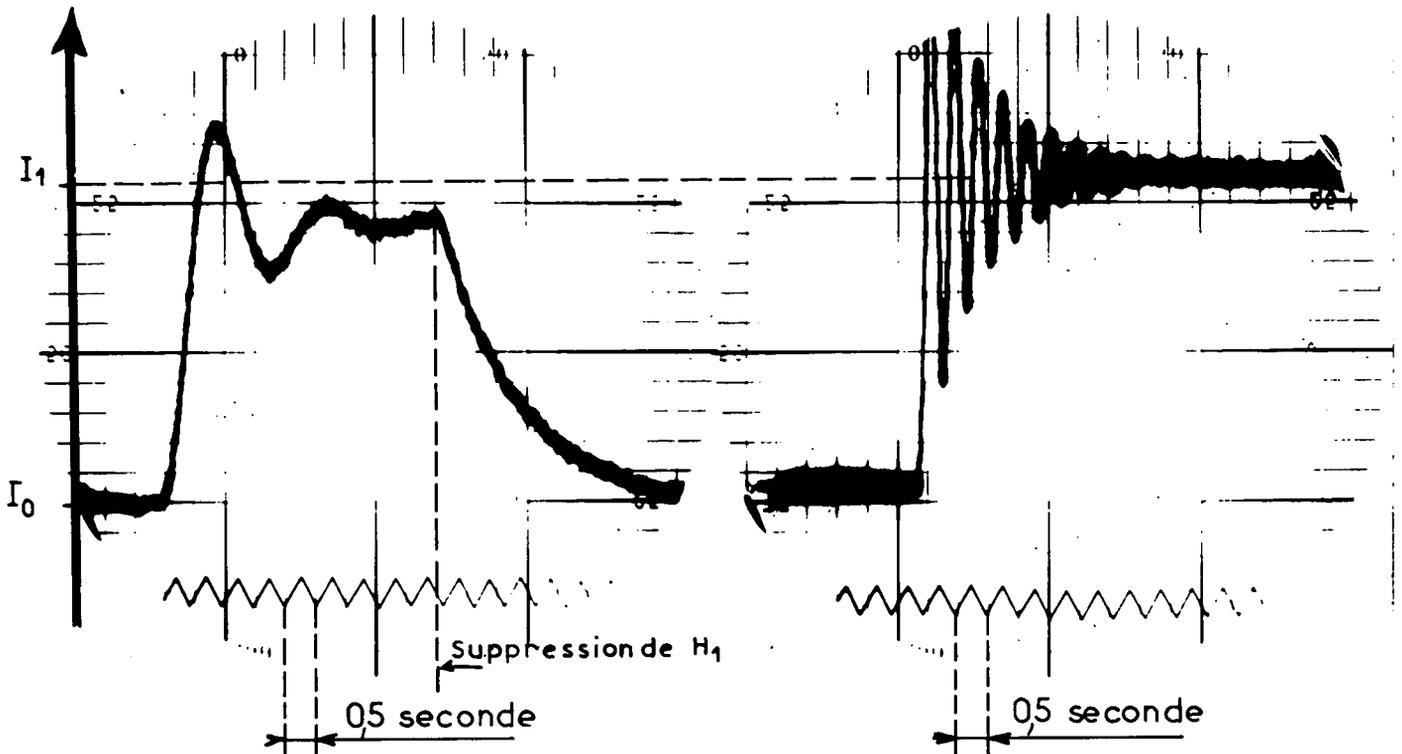
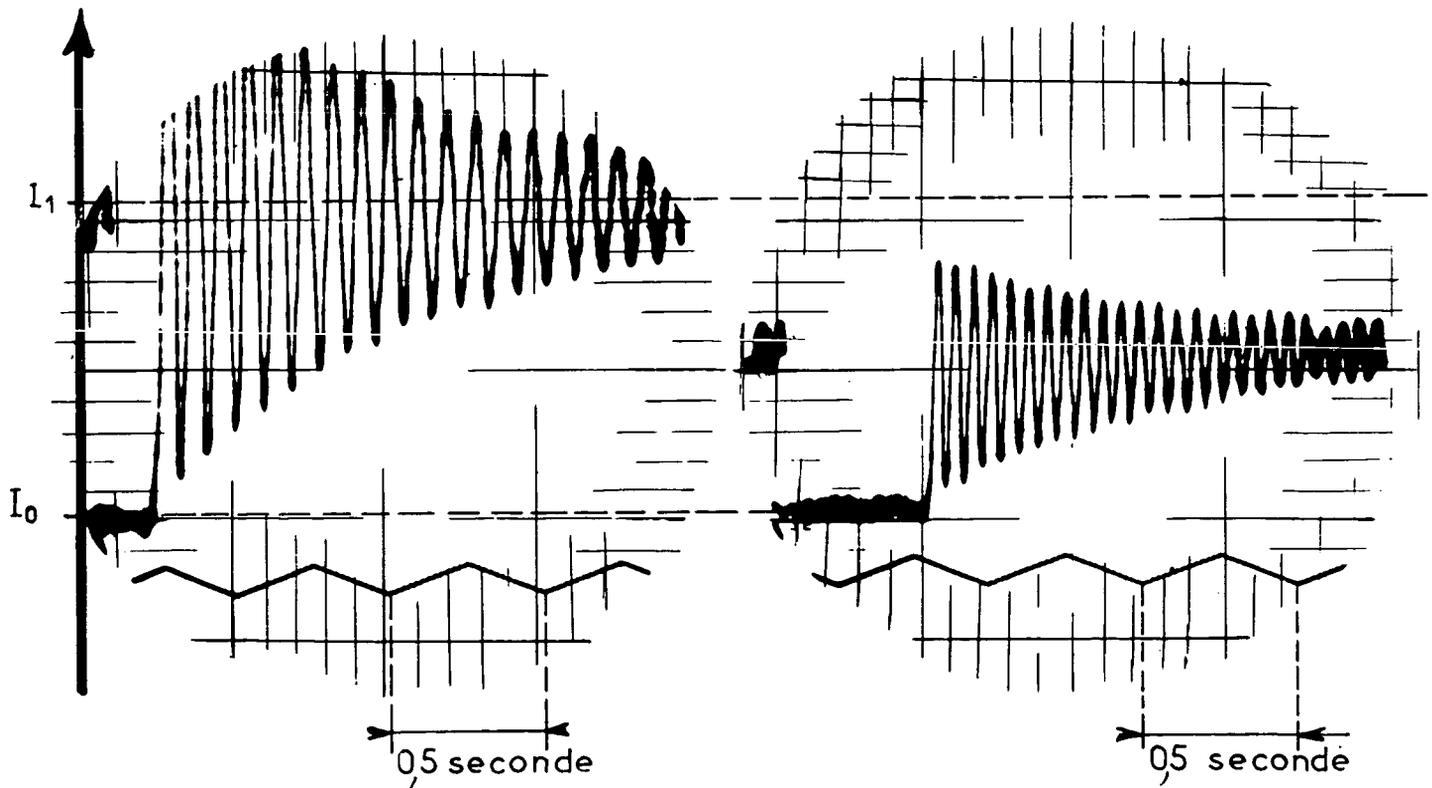


Fig. 12 a

Fig. 12 b

Fig. 12 c

Fig. 12 d



$$\frac{2}{\odot} = \frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2}$$

Fig. 13 a

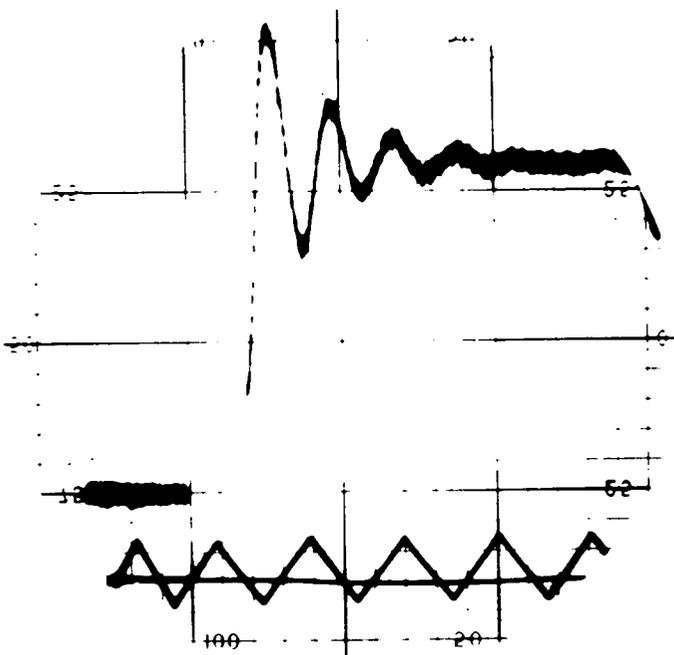


Fig. 13 b

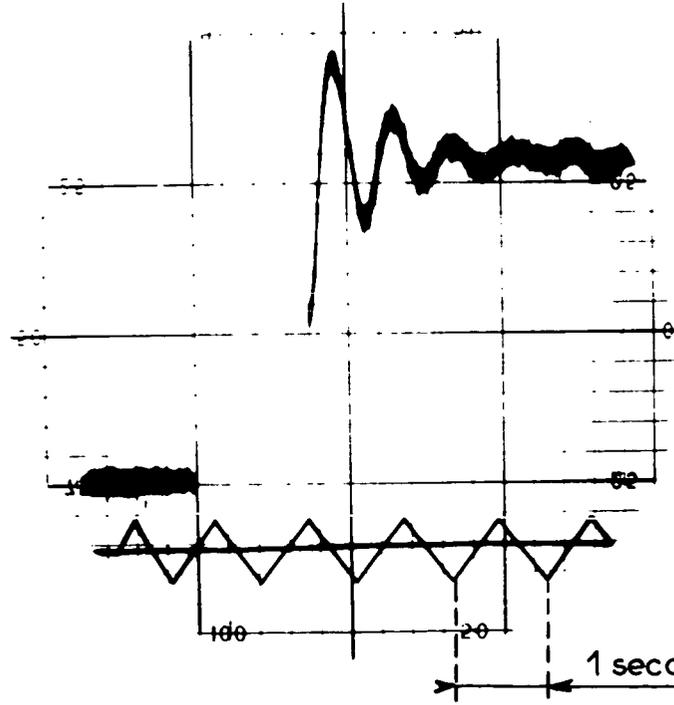
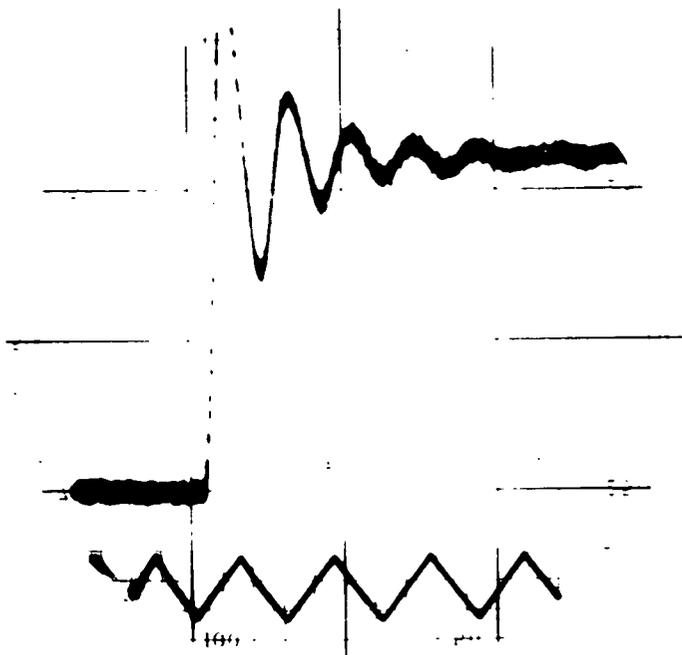


Fig. 13 c

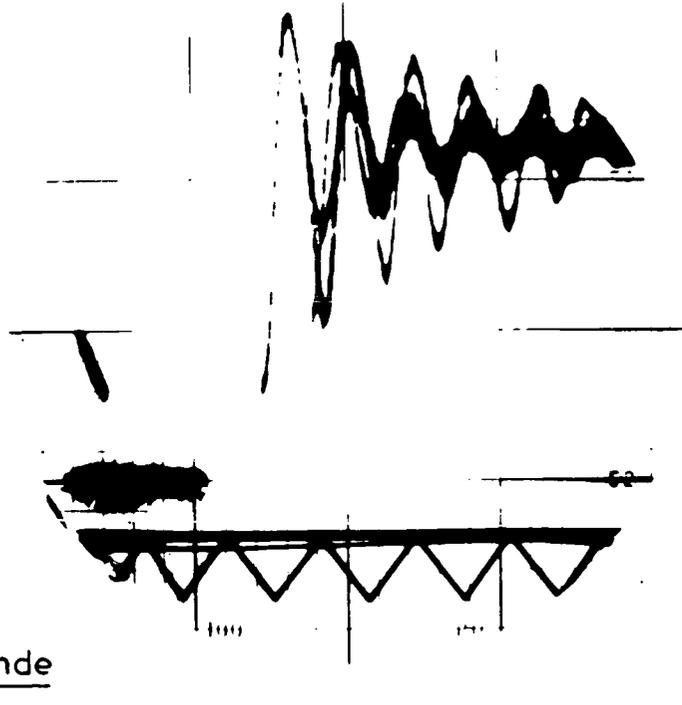


Fig. 13 d

(lampe à ^{204}Hg Transitoires)

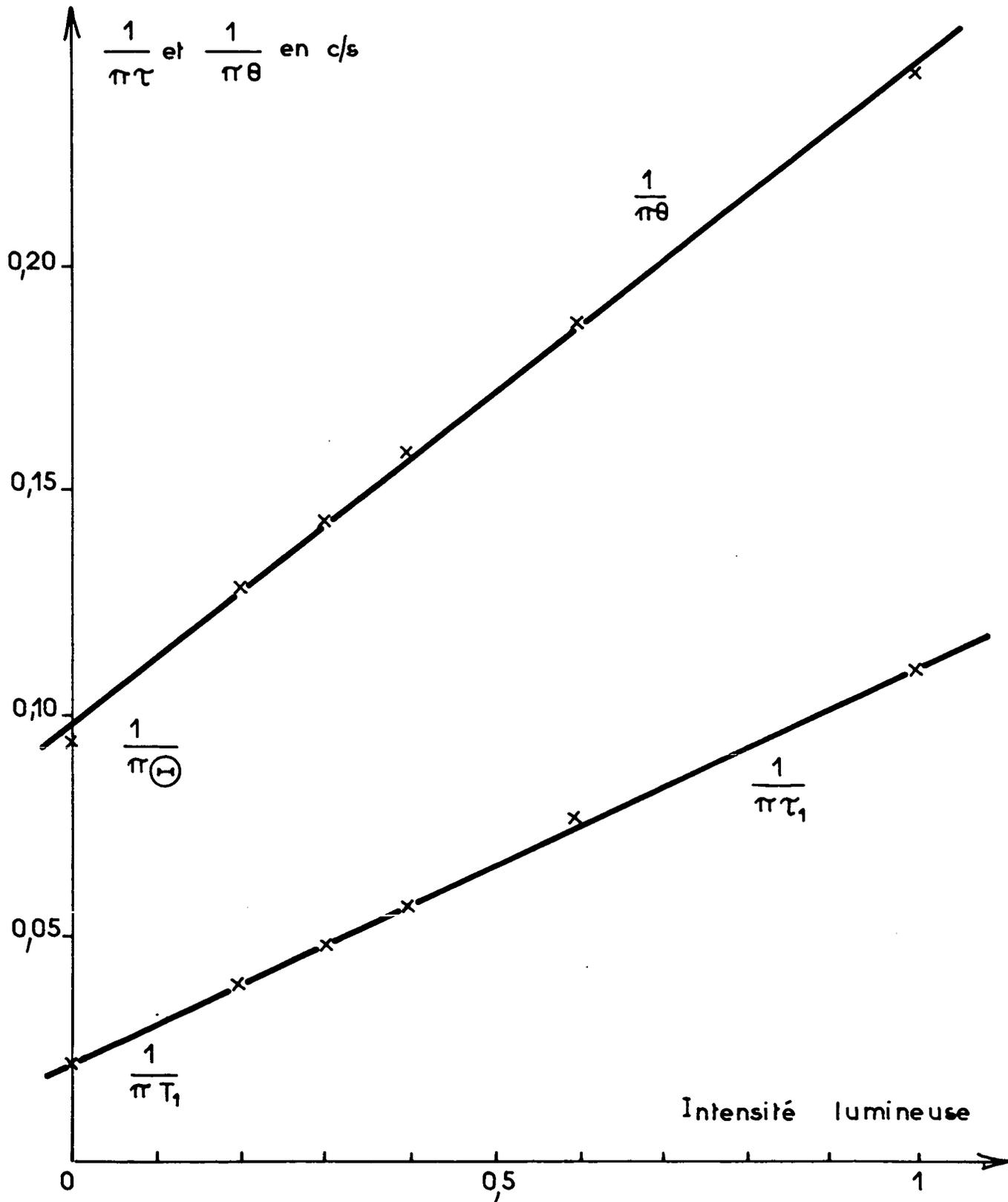


Fig. 15 a

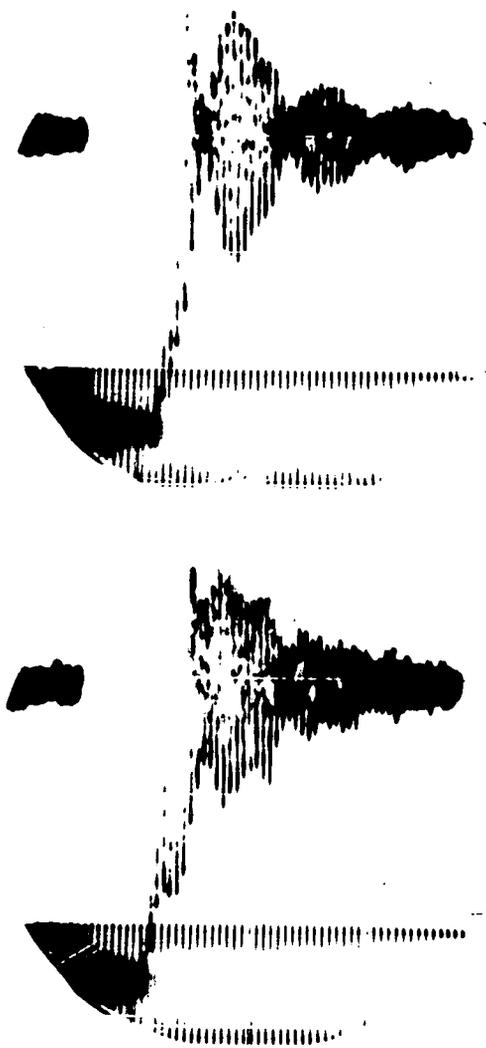


Fig 15 c

Fig. 15 b

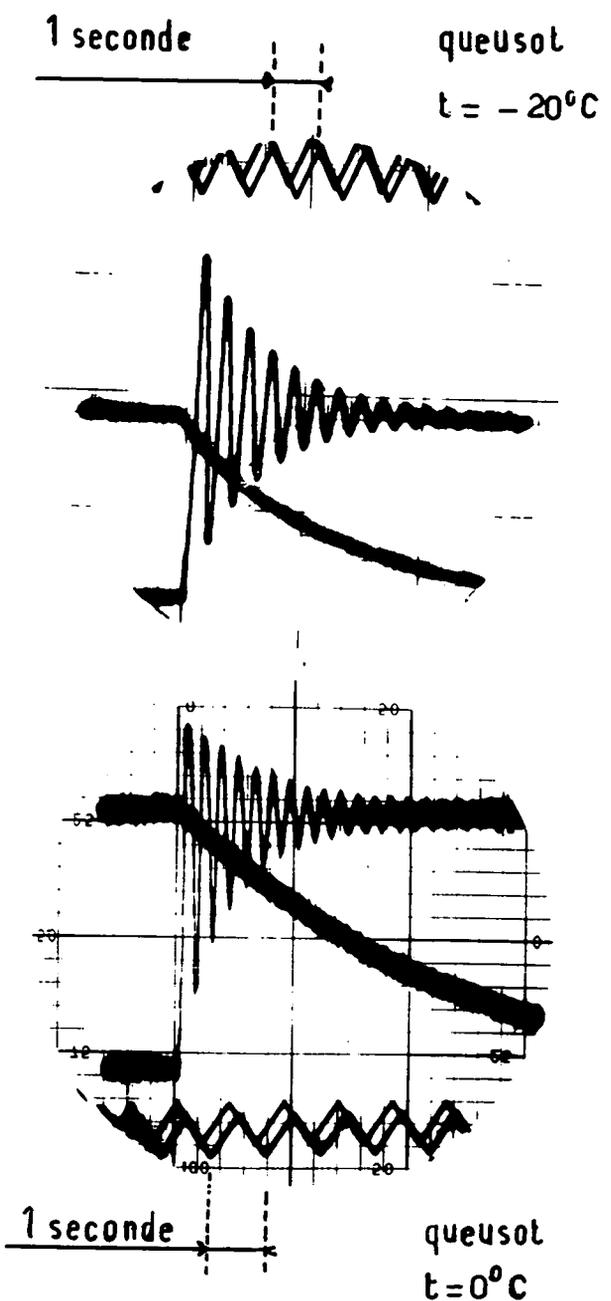
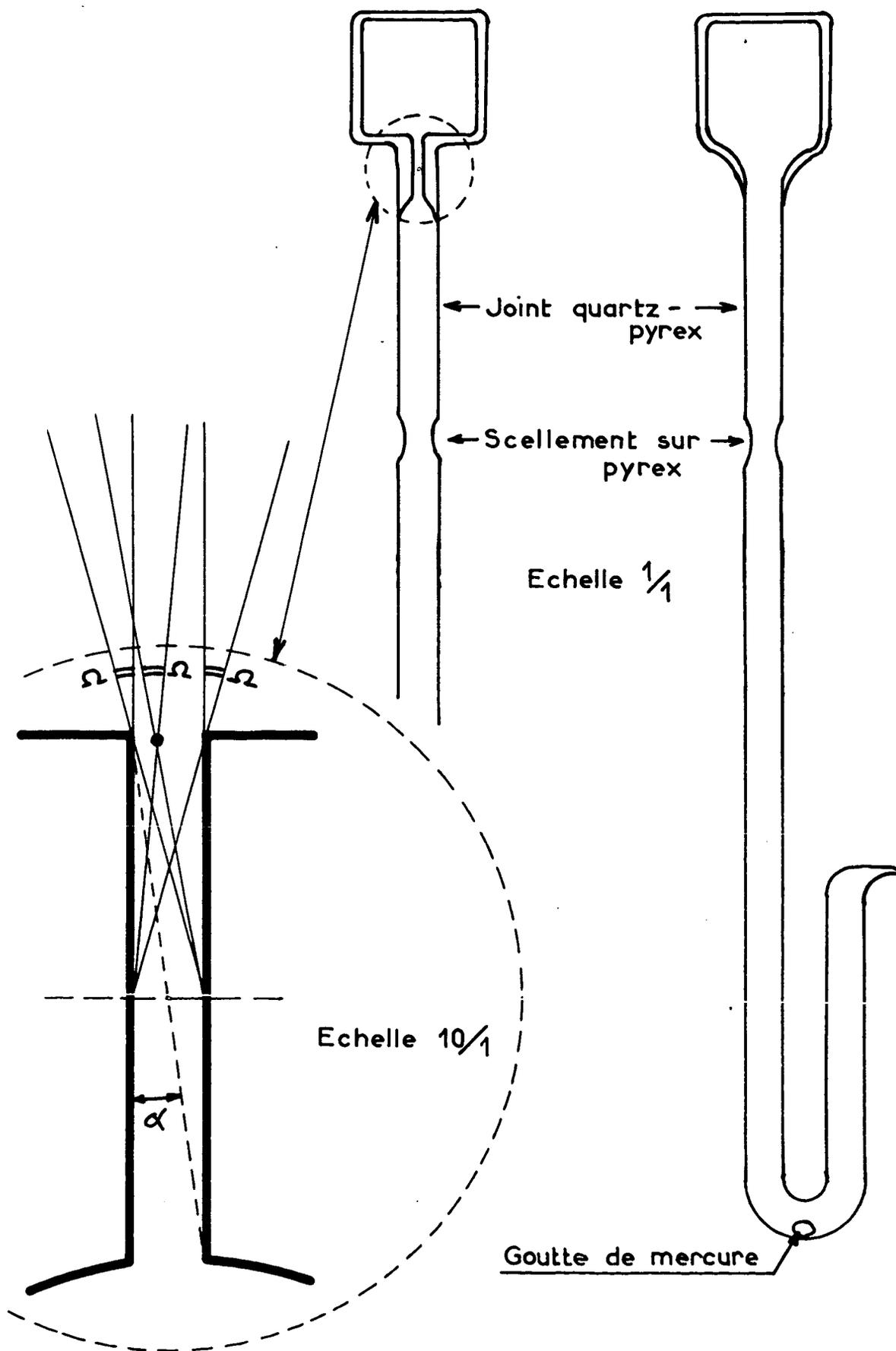


Fig 15 d

Fig. 16 a

Fig. 16 b



RELAXATION NUCLEAIRE

Hg¹⁹⁹

Fig. 17

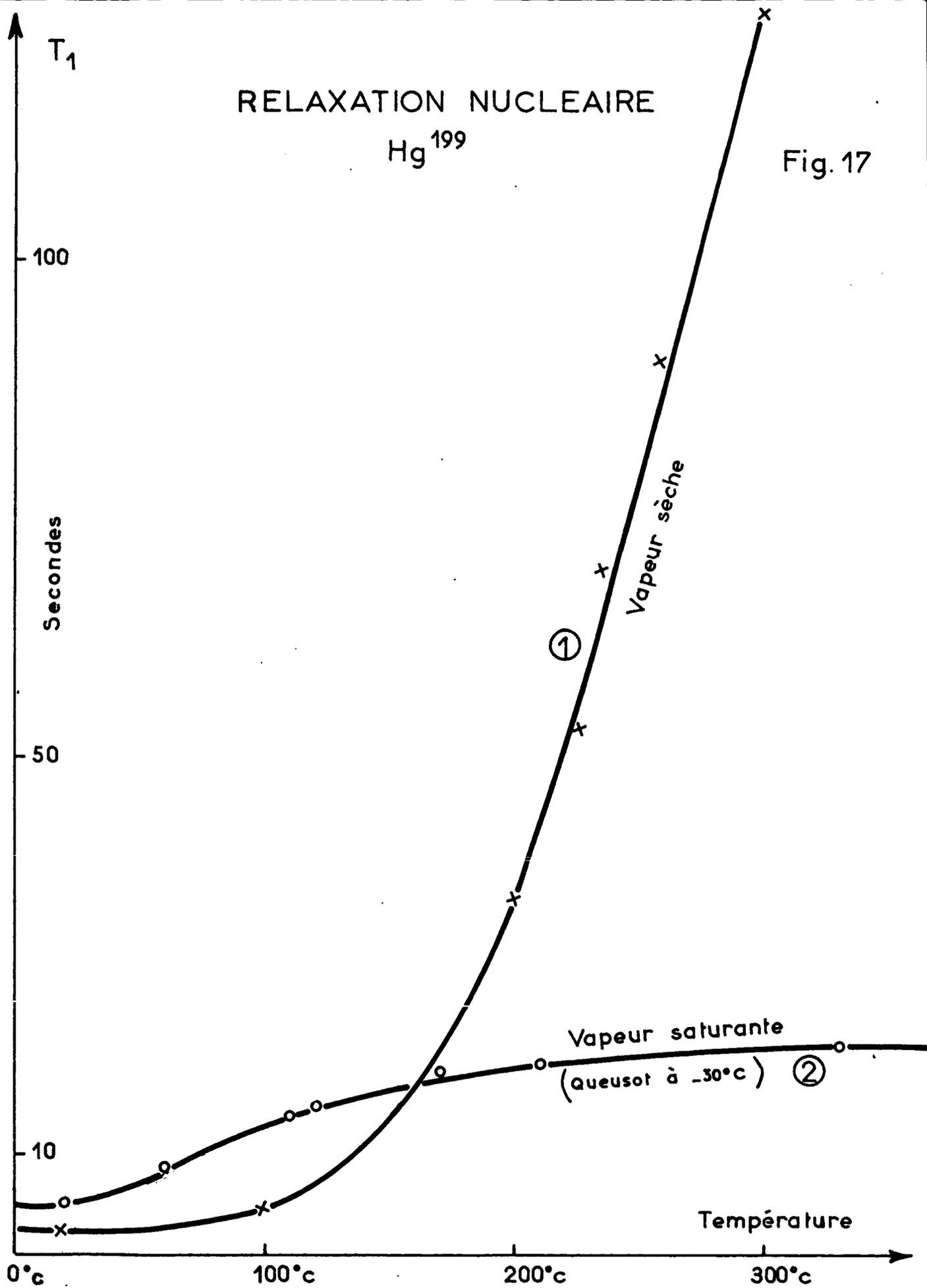


Fig. 18

RELAXATION NUCLEAIRE

Hg¹⁹⁹

(Vapeur saturante
queusot à -30°C)

