

Quelques expériences d'orientation nucléaire par pompage optique

Michèle Leduc

► To cite this version:

Michèle Leduc. Quelques expériences d'orientation nucléaire par pompage optique. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 1972. Français. NNT: . tel-00011815

HAL Id: tel-00011815 https://theses.hal.science/tel-00011815

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. UNIVERSITÉ DE PARIS

LABORATOIRE DE PHYSIQUE DE L'ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE



THESE DE DOCTORAT D'ETAT ES SCIENCES PHYSIQUES

présentée

à l'Université de PARIS VI

par

Michèle LEDUC

pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences

Sujet de la thèse :

"QUELQUES EXPERIENCES D'ORIENTATION NUCLEAIRE PAR POMPAGE OPTIQUE"

Soutenue le AVRIL 1972 devant la Commission d'Examen :

MM. A. KASTLER, Président J. BROSSEL C. COHEN-TANNOUDJI P. JACQUINOT J.C. PEBAY-PEYROULA au C.N.R.S. A.O. 6 9'4 9

THESE DE DOCTORAT D'ETAT ES SCIENCES PHYSIQUES présentée

à l'UNIVERSITE DE PARIS VI

par

Michèle LEDUC

pour obtenir

le grade de Docteur ès Sciences

<u>Sujet de la thèse</u> : "QUELQUES EXPERIENCES D'ORIENTATION NUCLEAIRE PAR POMPAGE OPTIQUE"

Soutenue le 17 AVRIL 1972 devant la Commission d'Examen :

MM. A. KASTLER Président

J. BROSSEL C. COHEN-TANNOUDJI P. JACQUINOT J.C. PEBAY-PEYROULA

Examinateurs

Le travail décrit dans ce mémoire a été effectué au Laboratoire de Physique de l'Ecole Normale Supérieure au cours des années 1966-1971. Je remercie Messieurs les Professeurs A. KASTLER et J. BROSSEL de m'avoir accueillie dans leur groupe de recherches; ils m'ont ainsi offert des possibilités exceptionnelles d'acquérir des connaissances en Physique Atomique, grâce à la très stimulante ambiance intellectuelle qu'ils ont su développer dans leur laboratoire.

Je suis heureuse d'exprimer ici toute ma reconnaissance à Monsieur J. BROSSEL pour l'aide qu'il m'a constamment fournie, grâce aux très nombreuses discussions que nous avons eues, si fructueuses pour moi; ce travail n'aurait pu être mené à bien sans ses idées, ses encouragements et sa contribution aux expériences, en dépit de toutes les tâches qu'il assume pour faire bénéficier son groupe de recherches d'excellentes conditions de travail.

Je remercie J.C. LEHMANN pour m'avoir enseigné les techniques expérimentales du pompage optique du cadmium et pour m'avoir cédé un montage complètement réalisé.

Comme il apparaît clairement dans ce qui suit, le travail relatif au pompage optique dans les décharges présenté ici a été en grande partie réalisé en équipe; je suis heureuse de pouvoir remercier tous mes camarades, avec qui c'est un plaisir constant de poursuivre ces recherches. En particulier, j'ai la très grande chance de travailler en collaboration étroite avec mon ami F. LALOË, qui a bien voulu m'associer à ses recherches dans le domaine déjà défriché par lui du pompage de l'hélium; il m'a constamment apporté des idées pour guider mon travail, avec la très grande compétence, l'enthousiasme et l'extrême gentillesse qui sont les siennes. Il est également toujours très intéressant et agréable pour moi de discuter avec J. DUPONT-ROC, à qui certaines parties théoriques de cette thèse doivent beaucoup.

C. COHEN-TANNOUDJI a accepté, malgré son emploi du temps si chargé, de s'intéresser très régulièrement à ce travail; je lui suis tout particulièrement reconnaissante d'avoir effectué une lecture critique du manuscrit de cette thèse.

L'équipe d'ingénieurs et de techniciens du groupe m'a constamment fait bénéficier de son aide; je tiens à les remercier tous ici, et en particulier Madame BERLAND et Monsieur LEGAUT, toujours disponibles pour résoudre les problèmes d'électronique les plus ingrats, ainsi que MM. GUILLAUME et LAISNE qui ont toujours fait preuve d'efficacité et d'esprit d'initiative.

Mademoiselle BRODSCHI a assuré la frappe de cette thèse, avec la rapidité, la compétence et l'amabilité qui la caractérisent; je lui exprime ici toute ma gratitude.

Madame AUDOIN a bien voulu se charger du tirage de ce mémoire dans des délais très courts et je lui en suis très reconnaissante.

ENGLISH ABSTRACT

"SOME EXPERIMENTS OF NUCLEAR ORIENTATION BY OPTICAL PUMPING"

We describe in this thesis some experiments in which a nuclear polarization in the ground state of diamagnetic atoms which have a nuclear spin (odd isotopes) is obtained by optical pumping. This work is divided in two parts, which can be considered mostly as independent.

In chaptersA, we examine the case where the resonance line of the studied element can be experimentally employed for optically pumping the gas vapour and for detecting its orientation (as for example for odd isotopes : 199 Hg, 111 Cd, etc.). We have extended this method to other elements, such as radioactive 109 Cd (I = 5/2) and 67 Zn (I = 5/2).

In chapters B, we consider the case of the noble gases, for which the previous technique of orientation can hardly be used, as their resonance lines lie in the far ultraviolet region. It is known, after COLEGROVE and al's works, that it is possible to create a nuclear orientation of the ³He ground states by optically pumping the $2^{3}S_{1}$ metastable states which are produced in a weak discharge maintained in the gaseous ³He. Generally speaking, the use of gaseous discharges have a double advantage : they allow first the creation of a great variety of atomic species (excited, metastable atoms, ions, electrons, molecules, etc.), secondly their study through the strong coupling between the orientations of the so created atomic systems; this last fact results mainly from the conservation of the orientation of the nuclear spin during the various collisions occuring in the discharge, which are of electrostatic character and last a time too short for the hyperfine couplings to be effective.

We first report the ¹⁰⁹Cd orientation and alignement in the $5^{1}S_{0}$ ground state, through optical pumping with the 3.261 Å line of cadmium (§ A.III); we describe the various techniques we used to measure the nuclear relaxation time constants of longitudinal and transversal observables. Results and discussion of ¹⁰⁹Cd relaxation as a function of the cell temperature are presented in § A.IV; this study shows evidence for the existence of a perturbing interaction between the quadrupole moment of the ¹⁰⁹Cd nucleus and random electric field gradients created at the nucleus when the atom is adsorbed on the quartz cell walls.

In § A.V we give the results of high precision measurements of the nuclear magnetic moment μ (¹¹¹Cd, 5¹S₀) of ¹¹¹Cd, compared to μ (¹⁰⁹Cd, 5¹S₀) and to μ (¹⁹⁹Hg, 6¹S₀); this allows relating the cadmium isotope nuclear moments to the proton moment. In § A.VI we report on the nuclear polarization of ⁶⁷Zn, through optical pumping with the 4³P₁-4¹S₀ (λ = 3.076 Å) line of zinc.

The second part of this thesis first includes a detailed study of the metastability exchange collisions in a ³He vapour discharge. In § B.II we give a full theory of the coupled evolution of the stationary orientations in the three levels : F = 3/2 and F' = 1/2 hyperfine sublevels of $2^{3}S_{1}$ metastable state, and $1^{1}S_{0}$ ground state of ³He. It is clear that the angular proprieties of these collisions had not been treated carefully enough in previous papers, especially regarding the partial survival of the coherences in each $2^{3}S_{1}$ hyperfine sublevel after collision, and the orientation transfer between the F and F' levels. We present a detailed experimental verification of the theory regarding the resonance line shapes in the F and F' levels of (³He, '2³S_{1}); this leads to a new precise determination of the metastability exchange cross-section in ³He, rather different from the previously admitted value. In § B.III the theory and the experimental verification are extended to the case of ³He-⁴He mixtures, taking into account the "cross-collisions" between different helium isotopes.

In § B.IV, we present a very accurate measurement of the ratio $\mu_J({}^{4}\text{He}, 2^{3}S_{1}) / \mu_I({}^{3}\text{He}, 1^{1}S_{0})$. The main interest of measuring $\mu_J({}^{4}\text{He}, 2^{3}S_{1})$ is to compare its experimental value to its theoretical very precise estimate (its calculation, through quantum electrodynamics, includes several relativistic corrections in addition to the radiative corrections). Our measurement relative precision is of the order of 10^{-7} ; it shows a clear disagreement ($\approx 10^{-6}$) with the theoretical value and with the result of a previous but less precise atomic beam experiment.

2/

Next a yet simpler system, the ${}^{3}\text{He}^{+}$ ion, is studied. In § B.V we present the magnetic resonance observed in the F = 1 hyperfine level of the ${}^{2}S_{1/_{2}}$ ground state of ${}^{3}\text{He}^{+}$. This resonance is identified by the measure of its hyperfine decoupling in a large magnetic field and by the hyperfine constant value which can be deduced from it. The study of this ion resonance line width shows that it is limited by charge exchange collisions at high ${}^{3}\text{He}$ pressures; we derive from this a value of the charge exchange cross-section for thermal ${}^{3}\text{He}^{+}$ ions, in good agreement with previous measurements dealing with more energetic ions.

3/

In § B.VI the method of optical pumping in a discharge is extended to 21 Ne (I = 3/2). The metastable $(2p^{5}3s)^{3}P_{2}$ neon level is optically polarized; it is shown that one simultaneously creates in this way a nuclear orientation in the ${}^{1}S_{0}$ ground state of 21 Ne, which can be detected on the pumping light absorbed either by the ${}^{3}P_{2}$ or the ${}^{3}P_{0}$ metastable levels of 21 Ne; then we show that this nuclear orientation can be also detected on the circular polarization of the optical neon lines emitted by the discharge. This work opens the way to several spectroscopic measurements and to collision studies in neon. The extension of this method to the other noble gases is anticipated.

TABLE DES MATIERES

"QUELQUES EXPERIENCES D'ORIENTATION NUCLEAIRE PAR POMPAGE OPTIQUE"

INTRODUCTION

•

 	A) Orientation nucléaire par pompage optique des isotopes du cadmium et du zinc	impairs	
	A.I.INTRODUCTION	р.	5
1) 2)	Rappels historiques Présentation de notre travail	р. р.	5 6
	A.II.CONDITIONS D'OBTENTION D'UNE POLARISATION NUCLEAIRE PAR POMPAGE OPTIQUE	p.	9
1)	Rappels sur le mécanisme de l'orientation nucléaire	p۰	9
2)	Montage expérimental	р.	12
	α) Schéma général	p .	12
	β) La cellule de résonance et son chauffage	р.	12
	γ) Les sources lumineuses	р.	13
	0) Les lames biréfringentes	р.	14
	A.III.OBTENTION D'UNE POLARISATION NUCLEAIRE DE ¹⁰⁹ Cd	p.	17
1)	Production de l'isotope et remplissage de la cellule	р.	17
2)	Etude de l'émission radioactive de la cellule	р.	19
3)	Détection de l'orientation et de l'alignement nucléaires	р.	21
	α) Calcul des signaux de détection optique	р.	21
	β) Choix des lampes de détection	р.	24
÷	γ) Mise en évidence de l'orientation nucléaire	р.	26
	δ) Mise en évidence de l'alignement nucléaire	р.	28
	A.IV.ETUDE DE LA RELAXATION NUCLEAIRE DE ¹¹¹ Cd et ¹⁰⁹ Cd	р.	31
1)	Relaxation de ¹¹¹ Cd	D.	31
	α) Résultats expérimentaux	P• D.	31
	β) Discussion	р. р.	32
2)	Relaxation de ¹⁰⁹ Cd	р.	35
	α) Résultats expérimentaux	р.	35
	β) Mise en évidence de la relaxation quadrupolaire de ¹⁰⁹ Cd	p.	35
	γ) Relation entre les temps de relaxation des différentes observables		38
	δ) Présentation des résultats en fonction de la température	. p .	41
3)	Tentative d'interprétation	`p∙	42
	α) Relaxation quadrupolaire électrique de ¹⁰⁹ Cd	p.	42
	β) Relaxation dipolaire magnétique de ¹¹ Cd et ¹⁰ Cd	р.	45
	A.V.MESURE DU MOMENT MAGNETIQUE NUCLEAIRE DE 109Cd	p.	47
1)	Mesure du rapport des moments magnétiques nucléaires de ¹¹¹ Cd et ¹⁰⁹ Cd	` n	47
•	α) Résultats	יי ה	47
	β) Discussion	р.	49

Mesure du rapport des moments magnétiques nucléaires de ¹¹¹ Cd et ¹⁹⁹ Hg	p.	50
α) But de la mesure	р.	50
β) Remplissage de la cellule	p.	51
γ) Mesures et résultats	р .	52
o) Discussion	p.	22
A.VI.OBTENTION D'UNE POLARISATION NUCLEAIRE DE 67Zn	p.	59
Etude des lampes émettant la raie 3.076 ^Å du zinc	p.	59
Détection de l'alignement et de l'orientation nucléaires	p.	60
α) Structure isotopique de la raie $\lambda = 3.076$ Å	p.	60
β) Mise en évidence de l'alignement nucléaire longitudinal	p.	61
a) Methode de transitoires	р.	61
c) Evaluation du taux d'alignement obtenu	р. Р.	62
Y) Mise en évidence de l'orientation nucléaire	P•	64
Etude de la relaxation nucléaire de ⁶⁷ Zn	p.	64
B) Orientation pucléaire des gaz rares dans une décharge	•	
2) offentation nationale des gas fores dans and decharge		•
B.I.INTRODUCTION	р.	67
Rappel de la méthode du pompage optique des gaz rares dans une décharge	p.	67
Présentation de notre travail	p.	71
	-	
Description générale du montage expérimental utilisé	p.	74
Description générale du montage expérimental utilisé <u>B.II.ETUDE DE L'ECHANGE DE METASTABILITE DANS ³He</u>	p.	74 77
Description générale du montage expérimental utilisé <u>B.II.ETUDE DE L'ECHANGE DE METASTABILITE DANS ³He</u> Rappel du schéma de la collision d'échange de métastabilité	р. р.	74 77 77
Description générale du montage expérimental utilisé <u>B.II.ETUDE DE L'ECHANGE DE METASTABILITE DANS ³He</u> Rappel du schéma de la collision d'échange de métastabilité Equations d'évolution des orientations atomiques sous l'effet des	р. р. р.	74 77 77 80
Description générale du montage expérimental utilisé <u>B.II.ETUDE DE L'ECHANGE DE METASTABILITE DANS ³He</u> Rappel du schéma de la collision d'échange de métastabilité Equations d'évolution des orientations atomiques sous l'effet des collisions d'échange de métastabilité	р. р. р.	74 77 77 80
Description générale du montage expérimental utilisé <u>B.II.ETUDE DE L'ECHANGE DE METASTABILITE DANS ³He</u> Rappel du schéma de la collision d'échange de métastabilité Equations d'évolution des orientations atomiques sous l'effet des collisions d'échange de métastabilité Causes d'évolution des orientations autres que l'échange de métastabilité	р. р. р. р.	74 77 77 80 81
Description générale du montage expérimental utilisé <u>B.II.ETUDE DE L'ECHANGE DE METASTABILITE DANS ³He</u> Rappel du schéma de la collision d'échange de métastabilité Equations d'évolution des orientations atomiques sous l'effet des collisions d'échange de métastabilité Causes d'évolution des orientations autres que l'échange de métastabilité α) le pompage optique	р. р. р. р. р.	74 77 77 80 81 81
Description générale du montage expérimental utilisé <u>B.II.ETUDE DE L'ECHANGE DE METASTABILITE DANS ³He</u> Rappel du schéma de la collision d'échange de métastabilité Equations d'évolution des orientations atomiques sous l'effet des collisions d'échange de métastabilité Causes d'évolution des orientations autres que l'échange de métastabilité α le pompage optique β la relaxation	 p. p. p. p. p. p. p. p. 	74 77 80 81 81 82
Description générale du montage expérimental utilisé <u>B.II.ETUDE DE L'ECHANGE DE METASTABILITE DANS</u> ³ He Rappel du schéma de la collision d'échange de métastabilité Equations d'évolution des orientations atomiques sous l'effet des collisions d'échange de métastabilité Causes d'évolution des orientations autres que l'échange de métastabilité α le pompage optique β la relaxation γ les champs magnétiques Etude théorique de la résonance magnétique dans l'un des sous-pivoaux F	р. р. р. р. р. р. р.	74 77 80 81 81 82 82 82
Description générale du montage expérimental utilisé B.II.ETUDE DE L'ECHANGE DE METASTABILITE DANS ³ He Rappel du schéma de la collision d'échange de métastabilité Equations d'évolution des orientations atomiques sous l'effet des collisions d'échange de métastabilité Causes d'évolution des orientations autres que l'échange de métastabilité (a) le pompage optique (b) la relaxation (c) les champs magnétiques Etude théorique de la résonance magnétique dans l'un des sous-niveaux F du métastable 2 ³ S1 de ³ He	р. р. р. р. р. р. р. р.	74 77 80 81 81 82 82 83
Description générale du montage expérimental utilisé B.II.ETUDE DE L'ECHANGE DE METASTABILITE DANS ³ He Rappel du schéma de la collision d'échange de métastabilité Equations d'évolution des orientations atomiques sous l'effet des collisions d'échange de métastabilité Causes d'évolution des orientations autres que l'échange de métastabilité a) le pompage optique b) la relaxation y) les champs magnétiques Etude théorique de la résonance magnétique dans l'un des sous-niveaux F du métastable 2 ³ S1 de ³ He a) Approximation b) Méthode de résolution	р. р. р. р. р. р. р. р. р.	74 77 80 81 81 82 83 83 84
<pre>Description générale du montage expérimental utilisé <u>B.II.ETUDE DE L'ECHANGE DE METASTABILITE DANS</u> ³He Rappel du schéma de la collision d'échange de métastabilité Equations d'évolution des orientations atomiques sous l'effet des collisions d'échange de métastabilité Causes d'évolution des orientations autres que l'échange de métastabilité α le pompage optique β la relaxation γ les champs magnétiques Etude théorique de la résonance magnétique dans l'un des sous-niveaux F du métastable 2³S1 de ³He α) Approximation β) Méthode de résolution a) Résonance dans le niveau F = 3/2</pre>	p. p. p. p. p. p. p. p.	74 77 80 81 81 82 83 84 85 85
<pre>Description générale du montage expérimental utilisé <u>B.II.ETUDE DE L'ECHANGE DE METASTABILITE DANS ³He</u> Rappel du schéma de la collision d'échange de métastabilité Equations d'évolution des orientations atomiques sous l'effet des collisions d'échange de métastabilité Causes d'évolution des orientations autres que l'échange de métastabilité a) le pompage optique β) la relaxation γ) les champs magnétiques Etude théorique de la résonance magnétique dans l'un des sous-niveaux F du métastable 2³S1 de ³He a) Approximation β) Méthode de résolution a) Résonance dans le niveau F = 3/2 b) Résonance dans le niveau F' = 1/2</pre>	p. p. p. p. p. p. p. p. p. p.	74 77 80 81 82 83 84 85 85 88
<pre>Description generale du montage expérimental utilisé <u>B.II.ETUDE DE L'ECHANGE DE METASTABILITE DANS</u>³He Rappel du schéma de la collision d'échange de métastabilité Equations d'évolution des orientations atomiques sous l'effet des collisions d'échange de métastabilité Causes d'évolution des orientations autres que l'échange de métastabilité α le pompage optique β la relaxation γ les champs magnétiques Etude théorique de la résonance magnétique dans l'un des sous-niveaux F du métastable 2³S1 de ³He α) Approximation β) Méthode de résolution a) Résonance dans le niveau F = 3/2 b) Résonance dans le niveau F' = 1/2 γ) Discussion des résultats</pre>	p. p. p. p. p. p. p. p. p. p.	74 77 80 81 82 82 83 84 85 85 88 89
<pre>Description générale du montage expérimental utilisé <u>B.II.ETUDE DE L'ECHANGE DE METASTABILITE DANS</u>³He Rappel du schéma de la collision d'échange de métastabilité Equations d'évolution des orientations atomiques sous l'effet des collisions d'échange de métastabilité Causes d'évolution des orientations autres que l'échange de métastabilité α le pompage optique β la relaxation γ) les champs magnétiques Etude théorique de la résonance magnétique dans l'un des sous-niveaux F du métastable 2³S1 de ³He α) Approximation β) Méthode de résolution a) Résonance dans le niveau F = 3/2 b) Résonance dans le niveau F' = 1/2 γ) Discussion des résultats δ) Calcul du déplacement de fréquence des résonances</pre>	P. p. p. p. p. p. p. p. p. p. p.	74 77 80 81 81 82 83 84 85 85 88 89 91
<pre>Description générale du montage expérimental utilisé <u>B.II.ETUDE DE L'ECHANGE DE METASTABILITE DANS</u> ³He Rappel du schéma de la collision d'échange de métastabilité Equations d'évolution des orientations atomiques sous l'effet des collisions d'échange de métastabilité Causes d'évolution des orientations autres que l'échange de métastabilité (a) le pompage optique (b) la relaxation (c) les champs magnétiques Etude théorique de la résonance magnétique dans l'un des sous-niveaux F du métastable 2³S1 de ³He (c) Approximation (b) Méthode de résolution a) Résonance dans le niveau F = 3/2 b) Résonance dans le niveau F' = 1/2 (c) Calcul du déplacement de fréquence des résonances a) Résonance dans le niveau F = 3/2 (c) Calcul du déplacement de fréquence des résonances a) Résonance dans le niveau F = 3/2 (c) Calcul du déplacement de fréquence des résonances (c) Résonance dans le niveau F = 3/2 (c) Calcul du déplacement de fréquence des résonances (c) Résonance dans le niveau F = 3/2 (c) Calcul du déplacement de fréquence des résonances (c) Résonance dans le niveau F = 3/2 (c) Calcul du déplacement de fréquence des résonances (c) Résonance dans le niveau F = 3/2 (c) Calcul du déplacement de fréquence des résonances (c) Résonance dans le niveau F = 3/2 (c) Résonance dans le niveau F = 3/2 (c) Calcul du déplacement de fréquence des résonances (c) Résonance dans le niveau F = 3/2 (c) Calcul du déplacement de fréquence des résonances (c) Résonance dans le niveau F = 3/2 (c) Calcul du déplacement de fréquence des résonances (c) Résonance dans le niveau F = 3/2 (c) Calcul du déplacement de fréquence des résonances (c) Résonance dans le niveau F = 3/2 (c) Résonance dans le niveau F</pre>	p. p. p. p. p. p. p. p. p. p. p. p. p.	74 77 80 81 82 83 84 85 85 88 89 91 92
Description générale du montage expérimental utilisé B.II.ETUDE DE L'ECHANGE DE METASTABILITE DANS ³ He Rappel du schéma de la collision d'échange de métastabilité Equations d'évolution des orientations atomiques sous l'effet des collisions d'échange de métastabilité Causes d'évolution des orientations autres que l'échange de métastabilité Causes d'évolution des orientations autres que l'échange de métastabilité Q le pompage optique β) la relaxation γ) les champs magnétiques Etude théorique de la résonance magnétique dans l'un des sous-niveaux F du métastable 2 ³ S1 de ³ He c) Approximation β) Méthode de résolution a) Résonance dans le niveau F = 3/2 b) Résonance dans le niveau F' = 1/2 γ) Discussion des résultats δ) Calcul du déplacement de fréquence des résonances a) Résonance dans le niveau F = 3/2 b) Résonance dans le niveau F = 3/2 b) Résonance dans le niveau F = 1/2	p. p. p. p. p. p. p. p. p. p. p. p. p. p	74 77 80 81 82 82 83 84 85 85 85 88 89 91 92 94
<pre>Description générale du montage expérimental utilisé <u>B.II.ETUDE DE L'ECHANGE DE METASTABILITE DANS</u> ³He Rappel du schéma de la collision d'échange de métastabilité Equations d'évolution des orientations atomiques sous l'effet des collisions d'échange de métastabilité Causes d'évolution des orientations autres que l'échange de métastabilité a) le pompage optique β) la relaxation γ) les champs magnétiques Etude théorique de la résonance magnétique dans l'un des sous-niveaux F du métastable 2³S1 de ³He a) Approximation β) Méthode de résolution a) Résonance dans le niveau F = 3/2 b) Résonance dans le niveau F' = 1/2 γ) Discussion des résultats δ) Calcul du déplacement de fréquence des résonances a) Résonance dans le niveau F = 3/2 b) Résonance dans le niveau F = 3/2 c) Discussion</pre>	P. p. p. p. p. p. p. p. p. p. p	74 77 80 81 82 82 83 84 85 85 88 89 91 92 94 95
<pre>Description générale du montage expérimental utilisé <u>B.II.ETUDE DE L'ECHANGE DE METASTABILITE DANS</u>³He Rappel du schéma de la collision d'échange de métastabilité Equations d'évolution des orientations atomiques sous l'effet des collisions d'échange de métastabilité Causes d'évolution des orientations autres que l'échange de métastabilité a) le pompage optique β) la relaxation γ) les champs magnétiques Etude théorique de la résonance magnétique dans l'un des sous-niveaux F du métastable 2³S1 de ³He a) Approximation β) Méthode de résolution a) Résonance dans le niveau F = 3/2 b) Résonance dans le niveau F' = 1/2 γ) Discussion des résultats 6) Calcul du déplacement de fréquence des résonances a) Résonance dans le niveau F = 3/2 b) Résonance dans le niveau F = 1/2 c) Discussion Vérification expérimentale Calcul expé</pre>	p. p. p. p. p. p. p. p. p. p. p. p. p. p	74 77 80 81 82 83 84 85 88 89 91 92 94 95 96
 Description générale du montage expérimental utilisé <u>B.II.ETUDE DE L'ECHANGE DE METASTABILITE DANS</u> ³He Rappel du schéma de la collision d'échange de métastabilité Equations d'évolution des orientations atomiques sous l'effet des collisions d'échange de métastabilité Causes d'évolution des orientations autres que l'échange de métastabilité (auses d'évolution des orientations autres que l'échange de métastabilité (b) la relaxation (c) les champs magnétiques Etude théorique de la résonance magnétique dans l'un des sous-niveaux F du métastable 2³S₁ de ³He (c) Approximation (c) Méthode de résolution (c) Résonance dans le niveau F = 3/2 (c) Discussion des résultats (c) Discussion Vérification expérimentale (c) Discussion (c) Discussion 	p. p. p. p. p. p. p. p. p. p. p. p. p. p	 74 77 80 81 82 83 84 85 85 88 89 91 92 94 95 96 96

. .

.

	R TIT FTUDE DE L'ECHANCE DE METASTARTITTE DANS LES MELANCES	n 103
	$^{3}He^{-4}He$	p.105
1)	Schéma des collisions d'échange de métastabilité dans un mélange ³ He- ⁴ He	p.103
2)	Equations d'évolution des orientations atomiques sous l'effet des colli-	p.108
	sions d'échange de métastabilité dans un mélange ³ He- ⁴ He	
3)	Causes d'évolution des orientations autres que l'échange	p.111
	α) le pompage optique	p.111
	β) la relaxation	p.111
. \	Y) les champs magnetiques	p.111
+)	$de^{3}He$ et $de^{4}He$ dans les mélanges	h•111
	a) Approximations	p.111
	β) Forme des courbes de résonance dans les 3 niveaux métastables	p.112
	a) Résonance dans le niveau F=3/2 de (³ He, 2 ³ Sı)	p.112
	b) Résonance dans le niveau F'=1/2 de (³ He, 2 ³ S ₁)	p.114
	c) Résonance dans le niveau (⁴ He, 2 ³ S ₁)	p.114
	γ) Discussion des résultats	p.115
- \	6) Déplacement des fréquences de résonance	p.116
5)	Verification experimentale	p.118
	a) Methode de detection des 3 resonances	p.118
•	³ He ⁻⁴ He	. p. 110
	b) Cas particulier de ⁴ He pur	p.119
	c) Origine des signaux dans notre expérience	p.120
	β) Résultats expérimentaux pour un mélange contenant 50% de ³ He et 507 de ⁴ He	p.120
	γ) Largeurs des résonances dans les différents niveaux métastables $2^{3}S_{1}$	p.121
	pour les mélanges ³ He- ⁴ He	•
	B. IV. MESURE DU RAPPORT ENTRE LES MOMENTS MAGNETTQUES DU	л. 123
	NIVEAU 2 ³ S1 DE ⁴ He ET DU NIVEAU FONDAMENTAL DE ³ He	P
-		
1)	Rappels sur la valeur théorique du moment magnétique du niveau métastable	p.123
27	Z'S1 de He Description de la magura: disparsion des résultata	
2)	a) Disperitif expérimentel	p.126
	 B) Mesure du rannort des moments magnétiques: dispersion des résultats 	p.120
	expérimentaux	p.127
3)	Discussion des erreurs systématiques	p.128
	α) Influence du faisceau lumineux de pompage	p.129
	β) Influence du niveau de la décharge	p.130
	γ) Influence de la pression	p.130
	0) Influence des inhomogénéités du champ magnétique statique	p.131
	E) Influence de l'intensité du champ magnétique statique	p.132
+)	Comparaison avec les résultats antérieurs	p.133
	u) valeur de x	.p.134
	p) valeur de y	p.134
), valeur de 2 δ) Combinaison des résultats précédents	p.134
	a comprised on the regarded procedulies	0.130
5)	Discussion	n. 137

	B.V. ETUDE DE LA RESONANCE DE L'ION ³ He ⁺ DANS L'ETAT FONDAMENTAL	p.141
1)	Mise en évidence de la résonance de $({}^{3}\text{He}^{+}, 1{}^{2}\text{S}_{1})$	p.142
2)	Etude en champ fort : identification de la résonance de ³ He ⁺	p.144
•	α) Principe de la mesure	p.144
	β) Détermination de la structure hyperfine de $({}^{3}\text{He}^{+}, 1{}^{2}\text{S}_{1})$	p.145
3)	Processus d'orientation et de relaxation de ³ He ⁺ ²	p.148
	α) Discussion des mécanismes de couplage entre les orientations	p.148
;	β) Etude expérimentale de la largeur de la résonance de 3 He $^{+}$	p.150
۰.	γ) Tentative d'interprétation des résultats expérimentaux	p.151
	a) aux pressions fortes	p.151
	b) aux pressions faibles	. p.154
4)	Conclusion	p.157
	B. VI. POMPAGE OPTIQUE DE ²¹ Ne	p.159
. 1)	Etude de la désorientation de (⁴ He, 2 ³ S ₁) dans les mélanges He-Ne	p.161
2)	Orientation du métastable ${}^{3}P_{2}$ de ${}^{21}Ne$	p.164
·	α) Résultats expérimentaux	p.164
·	β) Discussion des largeurs des résonances	p.165
3)	Orientation nucléaire de ²¹ Ne	p.166
	α) Couplage avec les métastables ${}^{3}P_{2}$	p.166
	β) Couplage avec les métastables ${}^{3}P_{0}$	p.166
-4)	Etude de la relaxation nucléaire de ²¹ Ne	p.168
5)	Orientation électronique de niveaux excités de ²¹ Ne	p.170
6)	Conclusion	p.172
CO	NCLUSION	p.175

BIBLIOGRAPHIE

:

Appendice a.I

Appendice a.II

Appendice a.III

Appendice a.IV

INTRODUCTION

Le pompage optique [1] constitue une méthode très efficace de polarisation des atomes libres. Il permet de produire des taux importants d'orientation électronique et nucléaire pour certains groupes d'atomes, en particulier les alcalins, les gaz rares et les éléments de la deuxième colonne de la classification périodique. C'est pourquoi la découverte de la non-conservation de la parité dans la désintégration β [²] a suscité un grand intérêt pour l'orientation de noyaux radioactifs par pompage optique : à de nombreuses reprises, il fut envisagé de détecter des anisotropies spatiales de rayonnement résultant de la désintégration de noyaux optiquement polarisés. On sait que ce moyen de détecter la résonance magnétique est très sensible. Depuis sa découverte, il a été appliqué dans de très nombreux cas, en conjugaison avec des méthodes fort variées de polarisation des noyaux. Par exemple, on peut citer l'observation de l'anisotropie du rayonnement β émis par des jets atomiques de ¹⁹Ne [3] et ³⁵A [4] polarisés par déflection magnétique; de la même façon, on a pu détecter la résonance magnétique des noyaux de ¹¹⁶In [⁵] et ¹¹⁰Ag [⁶] orientés par capture de neutrons polarisés.

L'application de cette méthode de détection de la résonance magnétique à des noyaux polarisés par pompage optique présentait donc un double intérêt : d'une part la mesure de l'anisotropie de rayonnement devait fournir des résultats de spectroscopie nucléaire complémentaires sur les noyaux étudiés (spin et moment magnétique des différents niveaux nucléaires, nature et multipolarité des rayonnements émis, etc.); d'autre part, on pouvait s'attendre à augmenter considérablement la sensibilité de la détection de la résonance magnétique dans les expériences de pompage optique, ce qui permettrait de les étendre au cas où le nombre d'atomes étudiés est trop faible pour que la détection optique elle-même soit possible.

Cette méthode de détection par les anisotropies radioactives n'est cependant applicable que si les atomes de la vapeur rebondissent élastiquement sur les parois de la cellule de résonance : en effet, s'ils y restent fixés en proportion importante, ils sont à l'origine d'un rayonnement isotrope masquant l'effet cherché. L'intérêt pour ces questions au Laboratoire remonte au début du pompage optique des alcalins, qui avait été entrepris en partie en vue de l'orientation nucléaire de l'isotope radioactif ²¹Na. C'est à cette occasion que l'on a étudié la disparition des atomes d'alcalins dans les parois des cellules, qu'elles soient en verres "nus" d'origines diverses ou bien recouvertes d'enduits siliconés ou paraffinés [']. Signalons que malgré cet inconvénient majeur, une faible anisotropie du rayonnement β a pu être observée par SCHEARER et OTTEN pour²¹Na pompé optiquement [⁸][⁹].

L'expérience a été ensuite reprise avec d'autres éléments, notamment le ³⁷K orienté par échange de spin $[1^{10}]$. Il faut signaler à cet égard l'ensemble des expériences réalisées par OTTEN et coll., où plusieurs variantes extrêmement élégantes ont été mises au point, de façon à diminuer fortement la contribution du fond continu isotrope : par exemple l'utilisation d'un gaz tampon ralentissant la diffusion vers les parois de l'isotope radioactif, lui-même de durée de vie plus courte que ce temps de diffusion et fabriqué par réaction nucléaire au sein de la cellule elle-même, etc.

Cependant, on avait au Laboratoire l'expérience du pompage optique du mercure $[\![1^1]\!]$, qui ne présente pas, contrairement aux alcalins, l'inconvénient de se fixer sur le verre. En effet, il avait été constaté qu'on peut garder indéfiniment de la vapeur sèche de mercure dans une cellule de silice fondue, sans qu'aucune désorption soit décelable lorsqu'on la chauffe à haute température. Ainsi les temps de relaxation de l'orientation nucléaire peuvent être très longs et les taux d'orientation considérables.

C'est pourquoi, lorsque nous avons entrepris le travail décrit dans ce mémoire, notre but initial était d'utiliser l'orientation nucléaire obtenue par pompage optique direct des isotopes impairs radioactifs de Hg, Cd ou Zn, pour mettre en évidence les anisotropies éventuelles des rayonnements γ émis. En particulier, nous envisagions d'étudier le rayonnement γ consécutif à la désintégration par capture électronique de noyaux de ⁶⁵Zn optiquement polarisés. Nous avons pour cela commencé par nous familiariser avec les techniques de pompage optique des isotopes stables ¹¹¹Cd et ¹¹³Cd. Nous avons ensuite étendu la méthode à l'isotope radioactif ¹⁰⁹Cd. Comme nous cherchions à obtenir les plus grands

- 2 -

taux possibles de polarisation nucléaire de ¹⁰⁹Cd, nous avons été conduits à une étude de la relaxation de cet isotope sur les parois de silice : le comportement de cette relaxation présente de très grandes analogies avec celui de ²⁰¹Hg [¹¹][¹²]; en particulier, dans les deux cas, on observe un effet analogue de la température et un allongement irréversible des temps de relaxation, consécutifs à plusieurs cycles de chauffage de la cellule de silice en présence de vapeur métallique [13]. En outre, des mesures d'activité radioactive nous ont indiqué que ¹⁰⁹Cd ne contamine pas la surface des cellules. Cependant, nous savions a priori que le rayonnement γ émis par ¹⁰⁹Cd après capture électronique resterait dans tous les cas isotrope, car le niveau nucléaire intermédiaire à partir duquel il est émis est métastable et de durée de vie trop longue. En vue d'études ultérieures sur ⁶⁵Zn, nous avons alors entrepris d'orienter nucléairement le zinc, en commençant par l'isotope stable ⁶⁷Zn. Cette étude s'est révélée très difficile et ses résultats assez décevants : malgré nos multiples essais, les temps de relaxation de 67Zn sont restés très courts et les taux de polarisation nucléaire obtenus n'ont pas dépassé 1%. L'extension de la méthode au 65Zn n'a pas été poursuivie jusqu'au bout, bien que l'ordre de grandeur des anisotropies radioactives attendues soit mesurable; en effet, la cible de cuivre que nous avions fait irradier dans un cyclotron à deutérons, en vue de la production de l'isotope ⁵⁵Zn, a été gravement contaminée auprès du cyclotron lors de cette opération : une cellule de ⁶⁵Zn propre au pompage optique n'a donc pas pu être remplie. Cette expérience sera sans doute reprise à une date ultérieure.

A ce stade, il nous est apparu que d'autres isotopes impairs radioactifs étaient susceptibles d'être orientés optiquement : ceux des gaz rares. En effet, l'orientation nucléaire de ³He avait déjà été obtenue par pompage optique dans des décharges faibles [14]. La méthode semblait offrir des possibilités d'extension aux autres gaz rares. En particulier nous avions la perspective d'étudier, en accord avec notre but initial, des anisotropies de rayonnement pour les isotopes impairs radioactifs du Xe. Nous nous sommes donc orientés vers les problèmes du pompage optique des gaz rares dans les décharges et, dans une première étape, vers le cas de l'hélium. Il s'est alors révélé que ce domaine de recherches était d'une très grande richesse et offrait des sujets d'études théoriques et expérimentales très variés et.intéressants. Dans le but de mieux comprendre les mécanismes du pompage et de la détection optiques dans ces expé-

- 3 -

riences, nous avons été conduits à une étude détaillée des collisions d'échange de métastabilité dans ³He. On sait en effet que ces collisions entre deux atomes de ³He, l'un dans l'état fondamental $1^{1}S_{0}$, l'autre dans l'état métastable triplet $2^{3}S_{1}$, sont à l'origine de la polarisation des noyaux de ³He à partir de l'orientation des atomes métastables pompés optiquement. Nous avons ensuite généralisé l'étude de l'échange de métastabilité aux mélanges ³He - ⁴He. A cette occasion, nous avons effectué une mesure très précise du facteur de Landé de (⁴He, $2^{3}S_{1}$), qui présente l'intérêt de pouvoir être comparée à sa valeur théorique, elle-même connue avec une très grande précision. Nous avons également étudié le processus d'échange de charge dans les décharges dans l'hélium. Puis nous avons appliqué les méthodes d'orientation nucléaire ainsi mises au point au cas de ²¹Ne. Nous envisageons leur extension aux autres gaz rares. Il existe de nombreux prolongements à ces expériences, qui présentent un intérêt au moins aussi grand que le thème de recherches que nous nous étions initialement fixé.

Le mémoire de thèse que nous présentons comporte donc deux parties relativement indépendantes, mais dont les remarques précédentes indiquent la continuité. Dans la première partie, nous décrivons l'obtention d'une polarisation nucléaire de ¹⁰⁹Cd et ⁶⁷Zn et son application à des études de relaxation, ainsi qu'à des mesures précises de moments magnétiques nucléaires. La seconde partie concerne le pompage optique des gaz rares dans les décharges. Dans les introductions de chacune de ces parties, nous présentons le détail de leur articulation.

ORIENTATION NUCLEAIRE PAR POMPAGE OPTIQUE DES ISOTOPES IMPAIRS DU CADMIUM ET DU ZINC

A)

A.I INTRODUCTION

1) Rappels historiques

Comme nous l'avons déjà signalé plus haut, nos premières études ont porté sur l'obtention par pompage optique d'une orientation nucléaire d'isotopes impairs d'atomes diamagnétiques. Dès 1950, KASTLER avait suggéré que la méthode du pompage optique pouvait permettre d'orienter dans leur état fondamental les atomes diamagnétiques possédant un spin nucléaire [1]. Un premier essai infructueux, dû au manque d'intensité des sources lumineuses, avait été tenté dans ce sens en 1952 par BROSSEL et BITTER [15], à la suite de la réussite de leur expérience de double résonance dans l'état 6³P₁ du mercure [16]. L'orientation nucléaire des deux isotopes impairs ¹⁹⁹Hg et ²⁰¹Hg dans leur état fondamental 6¹S₀, par pompage optique à l'aide de la raie 6³P₁-6¹S₀ ($\lambda = 2.537$ Å), fut observée pour la première fois par CAGNAC [¹¹]. Le succès de cette expérience, ainsi que l'élaboration de la théorie quantique du cycle de pompage optique par BARRAT et COHEN-TANNOUDJI [¹⁷], ouvrit un champ de recherches extrêmement fructueux, tant sur le plan théorique que sur le plan expérimental ([¹⁸][¹⁹][²⁰] etc.).

L'orientation nucléaire du mercure rendit également possible l'étude des processus de relaxation nucléaire, lors des collisions des atomes de la vapeur contre les parois de la cellule de résonance. C'est ainsi que dans le cas du ²⁰¹Hg, qui possède un spin nucléaire I = 3/2, on put mettre en évidence un processus de relaxation lié à l'interaction du moment quadripolaire du noyau avec les gradients de champ électrique apparaissant lors de la collision de l'atome avec les parois $[1^{11}][1^{22}][1^{13}]$. Citons aussi les nombreuses mesures qui fournirent, avec une grande précision, la valeur des moments magnétiques nucléaires des différents isotopes impairs, stables ou radioactifs, du mercure : 199 Hg, 201 Hg $[1^{11}]$, 197 Hg $[2^{11}]$, 203 Hg $[2^{12}]$ etc... Signalons enfin que l'on observa aussi un alignement nucléaire dans le niveau fondamental du 201 Hg, en utilisant pour le pompage la raie de résonance 6^{1} P1- 6^{1} S0 ($\lambda = 1.850$ Å) non polarisée $[2^{13}]$.

En 1965, LEHMANN montra qu'on pouvait étendre ces méthodes au cas des isotopes impairs du cadmium [24]. En utilisant l'une ou l'autre des deux raies de résonance 5¹P₀-5¹S₀ (λ = 2.288 Å) et 5³P₁-5¹S₀ (λ = 3.261 Å) du cadmium, il réussit à obtenir des taux d'orientation nucléaire importants dans des vapeurs de ¹¹¹Cd et de ¹¹³Cd (tous deux de spin nucléaire I = $\frac{1}{2}$). Par contre, à la même époque, toutes ses tentatives portant sur ⁶⁷Zn (I = 5/2) se révélèrent infructueuses : il utilisait la raie de résonance $4^{1}P_{1}-4^{1}S_{0}$ (λ = 2.138 Å) du zinc pour le pompage, de préférence à la raie d'intercombinaison $4^{3}P_{1}-4^{1}S_{0}$ (λ = 3.076 Å); en effet la probabilité d'absorption de cette dernière par les atomes de zinc est plus faible, compte tenu de la très longue durée de vie du niveau $4^{3}P_{1}$ [25], comparée à celle du niveau $4^{1}P_{1}$ [26]. L'origine de cet échec pour orienter 67 Zn par la raie 2.138 Å ne fut comprise qu'après l'analyse théorique faite par LEHMANN du processus d'orientation nucléaire par pompage optique [27]. C'est à cette occasion que fut dégagé le rôle essentiel joué par l'interaction hyperfine aI.J dans l'état atomique excité pour l'obtention d'une orientation nucléaire < I > dans l'état fondamental diamagnétique de l'atome.

2) Présentation de notre travail

La première partie de notre travail, qui fait l'objet des chapitres A, s'inscrit dans le prolongement des travaux que nous venons de rappeler. Elle concerne l'orientation nucléaire de l'isotope radioactif ¹⁰⁹Cd (I = 5/2), puis de l'isotope stable ⁶⁷Zn (I = 5/2).

Dans le chapitre A.II, nous rappelons brièvement l'interprétation physique des résultats théoriques relatifs à l'obtention d'une orientation nucléaire par pompage optique. Nous en tirons les conséquences pour le cas des isotopes impairs du cadmium et du zinc. Nous donnons ensuite une description rapide du dispositif expérimental utilisé et des améliorations techniques apportées aux montages antérieurs.

Dans le chapitre A.III, nous rapportons comment nous avons produit le ¹⁰⁹Cd radioactif, par réaction nucléaire sur une cible d'argent, puis rempli avec cet isotope une cellule de résonance propre au pompage optique (le noyau de ¹⁰⁹Cd a une période de désintégration suffisamment longue, égale à 453 jours). Nous décrivons ensuite la mise en évidence d'une orientation et d'un alignement nucléaires détectés optiquement pour l'état fondamental de ¹⁰⁹Cd.

- 6 -

Nous présentons dans A.IV nos résultats expérimentaux sur la relaxation des différentes observables nucléaires de ¹⁰⁹Cd, sous l'effet des collisions contre les parois de silice fondue de la cellule de résonance [²⁸].

Les mesures des temps de relaxation sont effectuées en fonction de la température et comportent une comparaison directe entre les cas de 109 Cd et de 111 Cd, les deux isotopes étant orientés simultanément dans la même cellule. Cette étude révèle pour 109 Cd l'existence d'un processus de relaxation absent pour 111 Cd et dont l'influence diminue avec la température : par analogie avec le cas de 201 Hg (I = 3/2), nous l'avons attribué aux interactions désorientatrices entre le moment quadripolaire nucléaire de 109 Cd (I = 5/2) et les gradients de champ électrique aléatoires au niveau des parois de la cellule. A la fin de A.IV, nous montrons l'intérêt que présente l'interprétation à l'échelle microscopique des processus de relaxation nucléaire de 109 Cd. Au stade actuel de cette étude, une telle interprétation soulève encore d'importantes difficultés; elle serait beaucoup simplifiée si l'on disposait d'une mesure indépendante des temps de corrélation des interactions désorientatrices.

Dans le chapitre A.V, nous rendons compte de la mesure très précise que nous avons effectuée pour le moment magnétique nucléaire μ (¹⁰⁹Cd, 5¹S₀) de l'état fondamental 5¹S₀ de ¹⁰⁹Cd [²⁹]. Celui-ci est rapporté à μ (¹¹¹Cd, 5¹S₀), l'expérience consistant à déterminer le rapport des fréquences de résonance des isotopes ¹¹¹Cd et ¹⁰⁹Cd dans le même champ magnétique. Nous présentons ensuite une mesure du rapport des moments magnétiques nucléaires de ¹¹¹Cd et ¹⁹⁹Hg [³⁰]. Cette dernière expérience nous a en particulier permis de relier les valeurs des moments nucléaires des isotopes impairs du cadmium à celle du moment magnétique du proton.

Le chapitre A.VI décrit l'obtention d'une polarisation nucléaire de ⁶⁷Zn, par pompage optique à l'aide de la raie d'intercombinaison ($\lambda = 3.076$ Å). La très longue durée de vie du niveau $4^{3}P_{1}$ (3.10^{-5} s) [²⁵], ainsi que la valeur élevée du spin nucléaire de ⁶⁷Zn (I = 5/2) nous ont imposé une étude préalable de l'émission des sources lumineuses à zinc sur cette raie. Nous rapportons la mise en évidence de signaux d'alignement dans l'état fondamental de ⁶⁷Zn, correspondant à un faible taux de polarisation des noyaux (de l'ordre de 1%). Ces résultats sont voisins et même meilleurs que ceux obtenus simultanément par SPENCE

- 7 -

et McDERMOTT [³¹]. Ils sont cependant assez décevants (eu égard à l'investissement engagé); nous expliquons ce fait par des mesures de temps de relaxation nucléaire : contrairement à ce qui se passe pour le mercure et le cadmium, ceux-ci sont restés très courts pour ⁶⁷Zn à toutes les températures accessibles dans cette expérience.

A la lumière des résultats obtenus sur ⁶⁷Zn, nous abordons enfin brièvement le cas de l'isotope radioactif ⁶⁵Zn (I = 5/2), pour lequel on peut attendre des taux d'orientation nucléaire très comparables. Bien que nous n'ayons pas encore pu réaliser cette expérience, faute d'une cellule à ⁶⁵Zn propre au pompage, il nous a paru intéressant de présenter dans l'appendice a.I l'évaluation des anisotropies γ prévues dans ce cas : le calcul de leur ordre de grandeur indique qu'elles sont parfaitement détectables.

- 8 -

A.II CONDITIONS D'OBTENTION D'UNE POLARISATION

NUCLEAIRE PAR POMPAGE OPTIQUE

Dans ce chapitre, nous rappelons d'abord qualitativement quelques uns des résultats théoriques établis par LEHMANN à l'occasion de l'obtention d'une orientation nucléaire de ¹¹¹Cd et ¹¹³Cd $[2^4][2^7]$. Ce travail a mis en évidence le rôle prépondérant joué par l'interaction hyperfine dans l'élaboration de l'orientation nucléaire des atomes diamagnétiques dans leur état fondamental. Ces rappels permettent de comprendre et de prévoir les résultats expérimentaux relatifs aux isotopes impairs du cadmium et du zinc. Puis nous décrivons le schéma général du montage expérimental que nous avons utilisé pour le pompage optique aussi bien de ¹⁰⁹Cd par la raie 3.261 Å que de ⁶⁷Zn par la raie 3.076 Å. Ce dispositif étant analogue à celui employé par LEHMANN [²⁴], nous nous bornons à fournir quelques précisions sur les différentes parties auxquelles nous avons apporté des améliorations.

1) Rappels sur le mécanisme de l'orientation nucléaire

Au cours du cycle de pompage optique subi par un atome, son spin nucléaire \vec{I} n'interagit pas directement avec le faisceau lumineux de pompage. En effet, lors de l'absorption ou de l'émission de photons dipolaires électriques polarisés par l'atome, seules les variables orbitales électroniques de l'atome sont directement modifiées. On s'est donc demandé comment, dans ces conditions, le pompage optique permet d'obtenir des orientations nucléaires importantes, comme le révèle l'expérience dans le cas des isotopes impairs des atomes diamagnétiques. LEHMANN a montré que l'orientation $\langle \vec{I} \rangle$ est alors obtenue de façon indirecte, par l'intermédiaire du couplage hyperfin entre \vec{I} et le moment cinétique électronique \vec{J} de l'atome. Reprenons son analyse.

Soient Δ la largeur spectrale de la raie excitatrice, a la constante de structure hyperfine de l'état excité de l'atome et τ sa durée de vie. Supposons que $\Delta >>$ a, c'est-à-dire que l'excitation optique s'effectue "en raie large" par rapport à l'ensemble de la structure hyperfine de l'état excité atomique. Selon la méthode décrite par BARRAT et COHEN-TANNOUDJI [1'7], décomposons le cycle de pompage optique subi par l'atome en trois étapes successives et indépendantes :

- 9 --

α) <u>absorption</u> d'un photon de résonance par l'atome. On peut se la représenter comme le passage d'un train d'ondes de largeur spectrale Δ, pendant lequel l'atome est susceptible d'être porté dans l'état excité. Ce processus se déroule sur une échelle de temps de l'ordre de $1/\Delta$ [¹⁸]. Comme Δ >> a, l'évolution des moments cinétiques atomiques sous l'effet des couplages hyperfins a $\vec{1}$. \vec{J} est négligeable pendant cette étape : on peut considérer le processus d'absorption comme instantané. En particulier, il n'affecte pas le spin nucléaire $\vec{1}$, qui est transféré sans altération de l'état fondamental à l'état excité des atomes. Aucune orientation nucléaire $\langle \vec{1} \rangle$ n'est donc créée à ce stade. Par contre, une orientation électronique $\langle \vec{J} \rangle$ est produite, si le faisceau pompant est circulairement polarisé.

B) <u>évolution propre</u> de l'atome dans l'état excité. Pendant la durée τ de cette étape, l'atome subit l'influence du champ magnétique extérieur (effet Zeeman) et du couplage hyperfin. Le hamiltonien hyperfin a \vec{I} . \vec{J} couple les variables nucléaires et électroniques. Il en résulte l'apparition d'une orientation nucléaire $\langle \vec{I} \rangle$. Cette transformation partielle de $\langle \vec{J} \rangle$ en $\langle \vec{I} \rangle$ ne sera appréciable que si le couplage hyperfin a le temps de s'établir pendant la durée de vie τ de l'état excité, c'est-à-dire si at $\gtrsim 1$.

 γ) <u>désexcitation</u> de l'atome consécutive à l'émission spontanée d'un photon. La durée des processus transitoires associés à cette étape est de l'ordre de l'inverse de la fréquence de la transition optique. Cette durée ($\ge 10^{-13}$ s) est extrêmement petite devant l/a; l'orientation nucléaire < \vec{I} > est donc transférée sans modification lors de la retombée de l'atome dans l'état fondamental.

En résumé, pour le pompage en "raie large" des atomes diamagnétiques dans l'état fondamental, une orientation nucléaire n'est créée que lors du passage de l'atome dans l'état excité (étape β), et ceci à la condition que sa structure hyperfine a soit plus grande que sa largeur naturelle Γ .

On peut ensuite considérer le cas où l'hypothèse $\Delta >>$ a n'est plus valable (bien qu'on ait toujours a $\gtrsim \Gamma$). Ceci se produit lorsque le faisceau pompant n'est absorbé que par l'une des composantes hyperfines de l'état excité atomique (pompage hyperfin, comme par exemple dans le cas de ¹⁹⁹Hg). On ne peut plus alors considérer le processus d'absorption d'un photon par l'atome comme instantané; une certaine orientation nucléaire $< \vec{I} >$ peut donc être également créée au cours de l'étape α).

- 10 -

Isotope	Transition	λ(Å)	τ(s)	Γ = 1/2πτ (MHz)	a (MHz)	$\Delta v_{\rm D}$ (MHz)
⁶⁷ Zn	$4^{1}P_{1}-4^{1}S_{0}$	2.138	2,28.10 ⁻¹⁰ [^{2.6}]	700	< 30 [[³⁶]]	2.500
¹¹¹ Cd	5 ¹ P ₁ -5 ¹ S ₀	2.288	1,6.10 ⁻⁹ [³²]	100	186 [³²]	1.850
199 _{Hg}	$6^{1}P_{1}-6^{1}S_{0}$	1.850	1,3.10 ⁻⁹ [³³]	123	3.570 [³⁷]	1.370
⁶⁷ Zn	$4^{3}P_{1} - 4^{1}S_{0}$	3.076	3.10 ⁻⁵ [²⁵]	0,010	609 [³⁸]	1.950
¹¹¹ Cd	5 ³ P ₁ -5 ¹ S ₀	3.261	$2,2.10^{-6}$	0,073	4.124 [³⁹]	1.300
¹⁹⁹ Hg	$6^{3}P_{1}-6^{1}S_{0}$	2.537	1,18.10 ⁻⁷ [³⁵]	1,35	15.100 [40]	1.000

TABLEAU I

Dans ce tableau, nous avons porté la longueur d'onde λ de la transition atomique indiquée dans la première colonne. T représente la durée de vie du niveau excité correspondant, Γ sa largeur naturelle et a sa constante de structure hyperfine. $\Delta v_{\rm D}$ est la largeur Doppler de la raie. Appliquons ces résultats au cas des isotopes impairs du mercure, du cadmium et du zinc. Sur le tableau I nous avons rassemblé les valeurs des paramètres T, Γ et a caractérisant leurs niveaux de résonance n¹P₁ et n³P₁. Nous y avons indiqué également la longueur d'onde λ de la transition reliant le niveau excité correspondant au niveau fondamental n¹S₀ de l'atome. Dans la dernière colonne du tableau, nous avons fait figurer la valeur de la largeur Doppler $\Delta v_{\rm D}$ des raies, qui donne un ordre de grandeur pour Δ .

On constate sur le tableau I que les durées de vie T des niveaux triplets sont très longues, comparées à celles des niveaux singulets. Inversement les constantes de structure hyperfine des niveaux triplets sont beaucoup plus grandes que celles des niveaux singulets. Ceci s'explique par le fait que le couplage entre les variables orbitales L et de spin S de ces atomes est voisin d'un couplage de type $\overrightarrow{AL.S}$ pur (et ceci d'autant plus que l'atome est plus léger) : les durées de vie radiatives des niveaux ³P₁ et les structures hyperfines des niveaux ¹P₁ sont liées au faible "mélange" entre les états ¹P et ³P.

Comparons les valeurs de a et Γ pour ces différentes raies. On voit d'abord sur le tableau I que pour le niveau 4^1P_1 du zinc, a $<<\Gamma$: d'après ce que nous avons vu plus haut, ceci explique entièrement l'inefficacité totale constatée pour le pompage optique de ⁶⁷Zn par la raie 2.138 Å. Pour le niveau ment ¹¹¹Cd par la raie 2.288 Å et de mettre en évidence un certain nombre d'effets nouveaux propres à ce cas [²⁴][²⁷]. Par contre, on voit sur le tableau I que les niveaux triplets de tous ces éléments satisfont la condition a $>> \Gamma$: les raies correspondantes sont donc théoriquement utilisables pour le pompage optique des isotopes impairs de Hg, Cd et Zn. Elles ont d'ailleurs été employées avec succès dans le cas de ¹⁹⁹Hg [¹¹] et ¹¹¹Cd [²⁴]. Leur inconvénient est d'avoir une force d'oscillateur nettement moins grande que les raies de singulet, particulièrement dans le cas du zinc (ceci est en rapport avec les longues durées de vie des niveaux ³P1) : leur probabilité d'absorption par les atomes de la vapeur à orienter est faible. Leur emploi en pompage optique nécessite l'obtention de sources lumineuses intenses.

De ces remarques, il résulte que nous avons choisi la raie $4^{3}P_{1}-4^{1}S_{0}(\lambda = 3.076 \text{ Å})$, de préférence à la raie $4^{1}P_{1}-4^{1}S_{0}(\lambda = 2.138 \text{ Å})$, pour tenter

- 11 -

un nouvel essai de polarisation nucléaire de ⁶⁷Zn par pompage optique. Comme nous avons également utilisé la raie de triplet (λ = 3.261 Å) dans le cas de ¹⁰⁹Cd, le montage expérimental employé dans les deux expériences s'est trouvé être tout à fait analogue.

2) Montage expérimental

α) Schéma général

La figure 1 indique le schéma de l'expérience. Pour augmenter la probabilité d'absorption de la lumière de pompage par les atomes, nous avons employé deux faisceaux lumineux de part et d'autre de la cellule de résonance, se propageant dans la direction zz' parallèlement au champ magnétique statique Bo. De plus, les sources lumineuses L ont été rapprochées autant que possible de la cellule, ce qui permet d'obtenir des faisceaux de pompage très ouverts. Les courtes longueurs d'onde utilisées impliquent l'emploi d'une optique entièrement en silice fondue (qualité Ultrasil). Dans le cas où l'on veut créer de l'orientation nucléaire, les faisceaux de pompage sont polarisés circulairement à l'aide d'un polariseur linéaire P (de type Polaroid 150 UVR ou PL 40), suivi d'une lame biréfringente A. Par contre, si l'on désire obtenir de l'alignement de la vapeur, on supprime P et A. Sur la figure 1, nous avons schématisé l'une des méthodes de détection optique que nous avons couramment utilisées : on observe la lumière de fluorescence L_{p} émise par la vapeur dans une direction yy' perpendiculaire à \vec{B}_{0} ; entre le photomultiplicateur P.M. (Radiotechnique 105 UVP) et la cellule sont interposés un polariseur P', qui transmet par exemple la polarisation π de L_p, et un filtre coloré F, qui coupe les longueurs d'onde visibles. Un champ magnétique oscillant \vec{B}_1 cos ω t, perpendiculaire à \vec{B}_0 , permet d'effectuer la résonance magnétique nucléaire.

β) La cellule de résonance et son chauffage

La cellule de résonance, en silice fondue (Ultrasil), est un cube de 4 cm de côté. Elle est remplie par la vapeur saturante du métal étudié. La réserve de métal (quelques microgrammes) est située dans le queusot. La pression dans la cellule est déterminée essentiellement par la température θ_Q du queusot. La température θ_c de la cellule doit rester constamment supérieure à θ_Q d'au moins 50°C, sinon la cellule risque de se "contaminer" (formation d'un très mince dépôt

- 12 -



FIGURE 1 : Vue générale du montage expérimental (échelle 1/10). La cellule de résonance est au centre, à l'intérieur d'un double four muni de fenêtres. L représente les lampes dans leurs fours, P et P' les polariseurs linéaires, Λ les lames biréfringentes par compression, F le filtre ultra-violet.



FIGURE 2 : Chauffage de la cellule; blindage des rayonnements radioactifs (échelle 1)

métallique sur les parois, conduisant à des valeurs très courtes des temps de relaxation nucléaire). Ceci impose l'utilisation de deux fours distincts pour la cellule et son queusot (voir figure 2). On sait que, pour éviter les effets de la diffusion multiple, la tension de vapeur doit être choisie dans une gamme telle que l'intensité de la lumière de fluorescence L_F soit une fonction croissante de θ_0 . En se reportant à la figure 3, on voit que cette condition implique pour θ_Q une valeur d'environ 200°C dans le cas du cadmium pompé par la raie λ = 3.261 Å et environ 300°C pour le zinc par la raie λ = 3.076 Å. Pour maintenir la cellule à une température θ_{c} variable et supérieure à θ_{0} , nous avons confectionné un four formé de deux boîtes concentriques en feutre d'alumine, muni de doubles fenêtres de silice et chauffé par des enroulement de thermocoax (voir figure 2) (le courant de chauffage ne crée pas de champs magnétiques parasites, car il se propage en sens contraire dans deux fils parallèles et très proches, court-circuités à une extrémité). En fait, dans nos expériences, θ_c est limitée à une valeur inférieure à 900°C. En effet les cellules, avant d'être scellées, sont remplies après un étuvage extrêmement soigné vers 1000°C pendant 24 heures (sa description détaillée est donnée dans la référence [24]) : un dégazage des parois de la cellule scellée lors d'un chauffage prolongé à $\theta_c \gtrsim 900^{\circ}$ C est donc à redouter; des pressions très appréciables de gaz libéré par les parois peuvent être atteintes rapidement. Ceci a pour conséquence de substituer au pompage optique de type "Kastler" [1] un pompage de type "Dehmelt" [41] en présence de gaz tampon ; en pratique, ceci se traduit par une perte de signal de détection (sur L_F) de la résonance nucléaire. Nous reviendrons sur ce point plus en détail en décrivant nos résultats pour ⁶⁷Zn.

y) Les sources lumineuses

Les lampes que nous avons utilisées pour l'émission intense de la raie $\lambda = 3.261$ Å du cadmium et $\lambda = 3.076$ Å du zinc sont des cylindres de silice fondue de 4 cm de diamètre et 4 cm d'épaisseur, dépourvus de queusot et contenant quelques milligrammes de métal. Elles sont placées dans des fours appropriés (voir figure 1) de façon à obtenir une tension de vapeur suffisante pour l'émission maximale de la raie intéressante (le chauffage provoqué par la décharge elle-même n'est pas assez grand). Nous les avons fait fonctionner "contaminées" par le métal, car le renversement des raies d'intercombinaison par autoabsorption n'est pas beaucoup à craindre. Les fours sont cependant adaptés pour créer des gradients de température propres à éviter un dépôt métallique sur la face émissive des lampes.

- 13 -

Celles-ci contiennent également un gaz rare comme support de la décharge, de préférence du néon sous 2,5 torr de pression environ. Le plasma est excité par décharge sans électrode à une fréquence de 2,4 GHz; la puissance H.F. est émise par des magnétrons dont les alimentations sont stabilisées en courant. Nous rendons compte plus loin de l'étude systématique de l'intensité émise par ces sources, que nous avons effectuée pour la raie 3.076 Å du zinc.

δ) Les lames biréfringentes

Pour obtenir une polarisation circulaire de la raie 3.261 Å du cadmium, LEHMANN utilisait des lames biréfringentes en quartz cristallin taillées parallèlement à leur axe ; malgré leur faible épaisseur (20,1 mm), ces lames étaient encore (4n+1) $rac{\lambda}{4}$, avec n entier de l'ordre de 20 ou 30; elles étaient ainsi très loin d'être quart d'onde dès que les faisceaux lumineux n'étaient plus rigoureusement perpendiculaires à leur face in the elles étaient donc tout à fait inadaptées pour notre expérience, où les faisceaux de pompage sont très convergents. Nous avons plutôt utilisé un système de lames rendues biréfringentes par compression ; une plaque de silice fondue, de 0,8 cm d'épaisseur et 8 cm de côté, subit une compression latérale appliquée à l'aide d'un support en duralumin de forme appropriée (voir la figure 4). L'uniformité de la répartition de la pression sur la face latérale de la lame est assurée par un joint de caoutchouc (ou mieux, de téflon), sur lequel appuient des vis de serrage par l'intermédiaire d'une plaque métallique (voir figure 4). Nous réglons ces lames à l'aide d'un montage annexe comportant successivement : une lampe spectrale à cadmium (ou à zinc), un diaphragme, un filtre interférentiel, un polariseur linéaire P, la lame à étudier, un analyseur linéaire A et un photomultiplicateur P.M.. P polarise la lumière à 45° des axes de biréfringence de la lame. On effectue le réglage de la manière suivante : soit i le courant de P.M. mesuré pour une certaine direction de polarisation de A, i_b lorsque celle-ci a varié de 90°. On règle la compression de la lame de façon à obtenir i_a et i_b aussi peu différents que possible. On déplace ensuite le diaphragme dans le faisceau, afin de réaliser un bon réglage pour toute la surface de la lame. On parvient ainsi à obtenir $\frac{i_a - i_b}{i_a} \leq 5\%$. Nous avons ajouté sur le support de la lame un refroidissement par circulation d'eau, de façon à supprimer le dérèglage lié à la dilatation du support, sous l'effet de la chaleur dégagée par le four de la cellule. L'intérêt de ce type de lames

- 14 -



FIGURE 3-b

Intensité $L_{\rm F}$ de la lumière de fluorescence émise par la cellule de résonance, en fonction de la température $\theta_{\rm Q}$ du queusot (N est le nombre d'atomes de la vapeur par cm³)





biréfringentes est qu'elles sont accordables (les mêmes lames ont servi pour le cadmium et le zinc); en outre, elles ont une grande surface utilisable et ne sont que une fois $\lambda/4$: elles sont donc bien adaptées à la polarisation des faisceaux de pompage très ouverts de notre expérience.

<u>:</u> .

A.III OBTENTION D'UNE POLÀRISATION NUCLEAIRE DE 109Cd

1) Production de l'isotope et remplissage de la cellule

L'isotope 109 du cadmium est radioactif. Sa période de 453 jours est suffisamment longue pour permettre d'en remplir une cellule aisément transportable et étudiable sur un montage de pompage optique. La technique pour produire et récupérer l'isotope a été décrite par McDERMOTT et coll., pour des expériences de double résonance $[4^2]$ et de croisements de niveaux $[4^3]$ dans l'état 5^3P_1 de ¹⁰⁹Cd. Le schéma de désintégration du noyau ¹⁰⁹Cd est donné sur la figure 5-a : il comporte 100% de capture électronique, suivie d'un rayonnement γ de 88 keV. Le noyau final ¹⁰⁹Ag est stable. L'isotope ¹⁰⁹Cd a été produit par irradiation d'une cible d'argent naturel (qui contient 49% de ¹⁰⁹Ag et 51% de ¹⁰⁷Ag). La réaction nucléaire utilisée :

 $^{109}_{47}$ Ag (d, 2n) $^{109}_{48}$ Cd

a été effectuée en bombardant la cible par le faisceau de deutérons très intense émis par le cyclotron de Philips Duphar à Amsterdam, qui donne environ 400 μ A. L'énergie choisie pour les deutérons était de 21 MeV, ce qui correspond sensiblement à un maximum pour les sections efficaces des réactions ${}^{109}_{47}$ Ag (d, 2n) ${}^{109}_{48}$ Cd et ${}^{107}_{47}$ Ag (d, 2n) ${}^{107}_{48}$ Cd. Après un temps d'irradiation de 2 heures, et après avoir attendu quelques jours la disparition de l'isotope ${}^{107}_{48}$ Cd de plus courte durée (6,7 heure), nous avons obtenu une activité de 0,30 mC de 109 Cd, déterminée en mesurant l'intensité de son rayonnement γ de 88 keV (en tenant compte du fait que ce rayonnement γ est fortement concurrencé par le processus de conversion interne, car la transition nucléaire correspondante $\frac{7}{2} \rightarrow \frac{1}{2}$ - de 109 Ag est très interdite). Pour mesurer les intensités γ , nous avons utilisé un ensemble de comptage de type classique, comportant un compteur à scintillations formé d'un monocristal de NaI, suivi d'un photomultiplicateur (ensemble "Integral line" 3" × 3" de Harshaw), un préamplificateur et un analyseur d'amplitude multicanaux (SA 40B de Intertechnique).

- 17 --

La fabrication d'une cellule contenant l'isotope radioactif ¹⁰⁹Cd et propre au pompage optique pose un problème particulier : il s'agit d'éviter au maximum la contamination par les isotopes stables du cadmium, qui tous en effet contribuent aux signaux de détection optique (absorption ou fluorescence). Pour réduire la proportion relative des isotopes stables du cadmium, nous avons donc pris un certain nombre de précautions :

- a) le métal constituant la cible à irradier a été choisi aussi pur que possible : argent électrolytique (de provenance Johnson-Mattey), contenant moins de l ppm de cadmium;
- b) avant l'irradiation, la cible d'argent a été très soigneusement dégazée vers 800°C pendant plusieurs heures sur un banc de pompage, puis expédiée sous vide au laboratoire à irradiation dans un récipient en silice fondue;
- . c) au cours de l'irradiation, toutes les précautions ont été prises pour que la cible ne soit manipulée qu'avec des instruments préalablement "nettoyés" par chauffage; on a évité la contamination par l'huile des pompes du cyclotron, etc.;
- d) avant la récupération de ¹⁰⁹Cd, et selon un procédé déjà employé par McDERMOTT et coll. [⁴²][⁴³], nous avons limé, avec un outil dégazé, la surface de la cible sur une épaisseur de 1/10 mm environ, la plus grande partie de l'activité s'y trouvant concentrée. On réduit de cette façon la quantité d'argent à chauffer pour provoquer la distillation du ¹⁰⁹Cd : on minimise ainsi la contamination par les isotopes stables du cadmium, inclus dans la masse cristalline. Le rendement de cette opération pour le ¹⁰⁹Cd, mesuré par l'activité γ, a été de 90%.

Pour récupérer les atomes de ¹⁰⁹Cd seuls, nous avons opéré prudemment, par chauffage des râclures d'argent à l'aide de la flamme d'un chalumeau, suivi par la condensation des produits de distillation dans un piège à azote liquide. Ce travail a été recommencé plusieurs fois, le rayonnement γ servant à suivre la trace du ¹⁰⁹Cd. Nous avons ainsi recueilli 95% de l'activité des râclures en fin de distillation, avec une élimination complète de l'isotope ¹¹⁰Ag^A (de 253 jours de période) produit en même temps que ¹⁰⁹Ag par la réaction ¹⁰⁹Ag (d, p) ¹¹⁰Ag^A. Puis nous avons rempli, suivant le procédé habituel, une

- 18 -











cellule avec les traces de ¹⁰⁹Cd ainsi récupérées : le miroir de ¹⁰⁹Cd est visible sur le verre d'un tube en U refroidi à l'air liquide. Simultanément, nous avons introduit dans la cellule une très petite quantité de ¹¹¹Cd, destinée aux expériences de comparaison entre les deux isotopes. Cette quantité devait être telle que les signaux de résonance de ¹⁰⁹Cd et ¹¹¹Cd soient à peu près du même ordre de grandeur ; ceci impliquait que les masses des dépôts métalliques soient comparables pour les deux isotopes. Nous avons pour cela utilisé un procédé fort périlleux, mais qui a donné des résultats satisfaisants : nous avons simplement apprécié à l'oeil l'importance des miroirs métalliques formés par chacun des isotopes sur la paroi de verre des tubes collecteurs. Juste avant le scellement final, de manière à éliminer au maximum les dernières impuretés, nous avons chauffé la cellule à 600°C pendant trois jours, en présence d'un "getter" au baryum, que nous avons "flashé" au dernier moment (le processus correspondant est décrit en détail dans la référence [²⁴]).

2) Etude de l'émission radioactive de la cellule

Nous avons ainsi recueilli au total, dans l'ensemble constitué par la cellule et son queusot, une activité de 0,28 mC, correspondant à 6.1014 atomes de ¹⁰⁹Cd. Cette quantité de métal est juste égale au nombre d'atomes que renfermerait la cellule si elle était remplie de vapeur saturante de cadmium, en équilibre avec une réserve de métal à la température $\theta_0 = 240^{\circ}$ C dans le queusot (voir figure 3). C'est pourquoi nous pensions a priori que le ¹⁰⁹Cd serait encore à l'état de vapeur saturante dans la cellule jusque vers cette température, à moins qu'une importante fraction des atomes ne reste adsorbée sur les parois de la cellule, comme cela se passe dans le cas des alcalins par exemple. Pour nous en assurer, nous avons fait une étude préalable de l'intensité \mathcal{H}_{\downarrow} du rayonnement γ de 88 keV émis par la cellule, en fonction de θ_0 (θ_c étant maintenue constante et égale à 500°C). Nous avons pour cela confectionné un blindage en plomb, destiné à éliminer au maximum l'activité provenant du queusot; une enveloppe de plomb entourant entièrement le queusot est placée à l'intérieur du four de chauffage de ce dernier (voir figure 2); elle est complétée par une épaisseur de plomb extérieure au four (signalons que ce blindage avait aussi un but de radioprotection, en dehors des périodes de chauffage). Les résultats de

- 19 -
cette étude sont indiqués sur la figure 6. On constate que pour θ_0 < 100°C, l'activité \mathcal{A}_{γ} reste constante et très faible, de l'ordre de l \mathbb{Z} de l'activité totale $\mathcal{A}_{\gamma}^{\circ}$ de l'ensemble cellule + queusot, mesurée sans blindage. \mathcal{A}_{γ} croît à partir de 120°C et vaut environ 0,5 $\mathcal{R}_{\gamma}^{\circ}$ pour θ_{Q} = 200°C. Nous n'avons pas dépassé 220°C pour θ_0 , de peur de "contaminer" la cellule. On remarque que l'allure de la courbe de la figure 6 est tout à fait analogue à celle de la figure 3-a, qui donne en fonction de θ_0 l'intensité L_F de la lumière de fluorescence émise sur la raie 3.261 Å par une cellule remplie de cadmium. On en conclut d'une part que la vapeur de ¹⁰⁹Cd dans la cellule est encore saturante pour $\theta_Q \simeq 200$ °C (cette température de queusot correspond à une absorption de la raie 3.261 Å qui convient bien à une expérience d'orientation de ¹⁰⁹Cd par pompage optique). D'autre part, nous trouvons que lors du refroidissement du queusot, l'activité détectée représente environ 6.10¹² atomes, soit 2% du nombre d'atomes présents dans la vapeur à $\theta_0 = 200^{\circ}$ C (voir figure 6). Ceci pourrait correspondre à une adsorption très faible d'atomes de cadmium sur les parois de la cellule, pendant le temps où elles sont en contact avec la vapeur de ¹⁰⁹Cd (remarquons que ce nombre d'atomes supposés adsorbés dans le quartz resterait très inférieur à l'équivalent d'une couche monomoléculaire de cadmium sur toute la surface de la cellule, soit 1017 atomes environ). Cependant, il semble que cette activité résiduelle n'augmente pas systématiquement avec le nombre des cycles de chauffage; ceci suggère qu'elle est plus vraisemblablement une activité parasite détectée par le compteur en provenance de la réserve de métal; ceci résulte du fait que, lors du refroidissement du queusot et de son blindage en plomb, les atomes de ^{1:09}Cd se condensent probablement dans le tube intermédiaire entre la cellule et le queusot (voir figure 2), plutôt que dans le queusot lui-même. De toutes manières, cette activité parasite reste très faible devant celle de la vapeur. Il est vraisemblable que cette propriété est également valable dans le cas des autres métaux appartenant à la même colonne de la classification périodique : ils présentent en effet des propriétés chimiques voisines et ont des chances d'interagir d'une façon analogue avec la paroi de quartz ^(*). Ce résultat, concernant le comportement des atomes de ¹⁰⁹Cd sur les parois des cellules, semble bien indiquer la possibilité d'observer des anisotropies de rayonnement pour des éléments tels que 67Zn ou 203Hg pompés optiquement.

(*) Notons que CAGNAC est parvenu à une conclusion analogue [['']] pour le mercure, fondée sur l'observation de la fluorescence d'une cellule à vapeur sèche : aucune désorbtion de mercure n'est décelable lorsqu'on augmente la température de la cellule.

- 20 -



<u>FIGURE 6</u> : Intensité A_{γ} du rayonnement γ de 88 keV émis par la cellule à ¹⁰⁹Cd en fonction de la température θ_Q du queusot (N est le nombre d'atomes de la vapeur par cm³).

3) Détection de l'orientation et de l'alignement nucléaires de ¹⁰⁹Cd

Nous avons choisi de détecter l'orientation ainsi que l'alignement nucléaires de la vapeur de ¹⁰⁹Cd à l'aide d'un faisceau lumineux peu intense, perpendiculaire à la direction zz' du champ \vec{B}_0 et des deux faisceaux de pompage. Un champ de radiofréquence \vec{B}_1 cos ω t oscillant à la pulsation ω et perpendiculaire à \vec{B}_0 est appliqué en permanence sur la cellule (voir figure 1). On sait que certaines des observables de l'état fondamental des atomes évoluent à des pulsations multiples de w, sous l'effet du champ de radiofréquence. Le faisceau détecteur transporte donc en général des modulations ayant ces pulsations. Nous avons décidé de détecter les modulations à ω , correspondant dans un cas à l'orientation, dans l'autre à l'alignement. Nous avons pour cela choisi le dispositif de détection (polariseur P et analyseur A du faisceau détecteur) de façon à recueillir les plus grandes modulations lumineuses possibles dans chacun des cas. Nous nous sommes bornés à prendre pour P, et A des polariseurs linéaires π_1 et π_2 , en évitant la complication d'avoir à employer des lames biréfringentes à la détection; nous montrons dans le calcul qui suit que ce choix est justifié, à condition de pouvoir disposer pour la détection d'un faisceau soit résonnant (on utilise ainsi les propriétés d'absorption de la vapeur), soit non résonnant (c'est alors la dispersion de la vapeur qui intervient); nous montrons enfin que ceci est réalisable expérimentalement pour ¹⁰⁹Cd en utilisant les coïncidences isotopiques de la raie 3.261 Å du cadmium, d'une façon analogue à ce qui a été fait et décrit par ailleurs [18][44] pour ²⁰¹Hg dans le cas de la raie 2.537 Å.

a) Calcul des signaux de détection optique

COHEN-TANNOUDJI et LALOË [⁴⁵] ont établi des expressions générales, utilisant le formalisme de la matrice polarisation de la lumière, qui permettent de calculer dans tous les cas les signaux de détection observés en transmission dans une expérience de pompage optique. En collaboration avec LALOË et MINGUZZI, nous avons explicité ces formules en fonction des divers paramètres du faisceau détecteur : direction de propagation, composition spectrale, nature du polariseur et de l'analyseur. Ces calculs ont fait l'objet de 2 articles théoriques [⁴⁶]; ils ont été vérifié expérimentalement en détail sur une vapeur de ²⁰¹Hg [⁴⁷][⁴⁸]. C'est pourquoi nous nous bornerons à nous référer à [⁴⁶] pour les principaux résultats utiles ici.

- 21 -

Dans le cas de l'interaction d'un faisceau lumineux détecteur avec la vapeur de ¹⁰⁹Cd polarisée dans l'état fondamental, la modification de la polarisation lumineuse du faisceau transmis est due à l'asymétrie angulaire de la matrice densité des atomes; c'est l'effet "paramagnétique" : l'état fondamental des atomes ne comporte pas de structure hyperfine et les champs magnétiques sont suffisamment faibles pour que les différences d'énergie dues à l'effet Zeeman soient inférieures à la largeur de la raie excitatrice Δ . Par contre la structure hyperfine du niveau 5³P₁ du cadmium n'est pas très grande devant Δ (voir figure 8); c'est pourquoi nous considèrerons que le faisceau lumineux détecteur peut faire subir aux atomes des transitions vers chacun des 3 sous-niveaux hyperfins F de l'état excité 5³P₁. Nous sommes donc exactement dans les conditions où l'on peut appliquer la formule (I.D.5) de la référence [⁴⁶], qui donne l'expression du signal de détection optique ΔI_d en séparant l'influence des différents paramètres de l'expérience :

$$\Delta I_{d} = -\alpha I_{0} \sum_{F,n} b_{n}^{F}(t) \left[\frac{\Gamma'F}{2} R_{n} - \Delta E'_{F} V_{n} \right]$$
(1)

Dans cette expression, α est un paramètre sans dimension. Les quantités Γ'_F et $\Delta E'_F$ correspondent à la contribution de la composante hyperfine F à l'élargissement et au déplacement de l'état fondamental sous l'effet du faisceau lumineux détecteur; Γ'_F et $\Delta E'_F$ dépendent de la composition spectrale du faisceau détecteur ; Γ'_F est relatif aux transitions réelles que celui-ci induit dans la vapeur, $\Delta E'_F$ aux transitions virtuelles; leur définition est donnée par l'expression (I.D.2) de [[⁴⁶]]. Les nombres b_n^F(t) caractérisent les observables atomiques, qui évoluent avec le temps. Rappelons leur expression, tirée des formules (I.C.4) à (I.C.7) de [[⁴⁶]], pour un faisceau détecteur se propageant dans la direction Oy, perpendiculaire à la direction Oz du champ magnétique statique \vec{B}_0 (voir figure 7) :

$$b_{1}^{F}(t) = \frac{1}{2} C^{(2)}(F) < I_{z} I_{x} + I_{x} I_{z} > b_{z}^{F}(t) = \frac{C^{(1)}(F)}{\sqrt{2}} < I_{y} > b_{2}^{F}(t) = \frac{C^{(0)}(F)}{\sqrt{2}} - C^{(2)}(F) [< I_{z}^{2} > -\frac{1}{3} I(I+1)]$$

$$-b_{0}^{F}(t) - b_{3}^{F}(t) = \frac{C^{(0)}(F)}{\sqrt{3}} + \frac{C^{(2)}(F)}{2} [< I_{z}^{2} > -\frac{1}{3} I(I+1)]$$

$$-\frac{1}{2} < (I_{x} + iI_{y})^{2} + (I_{x} - iI_{y})^{2} >]$$
(2)

- 22 -



FIGURE 7 : Le faisceau détecteur, perpendiculaire à \vec{B}_0 , est issu d'une lampe L. Il comporte un polariseur plan π_1 et un analyseur plan π_2 de part et d'autre de la cellule de résonance C.

n	R _n	v _n
0	2 $\cos^2(\theta_1+\theta_2)\cos^2(\psi_1-\psi_2)$ + 2 $\sin^2(\theta_1+\theta_2)\cos^2(\psi_1+\psi_2)$	0
1	sin 2 ψ_1 cos 2 θ_1 + sin 2 ψ_2 cos 2 θ_2	sin $2\psi_1 \cos 2\psi_2 \sin 2\theta_1$ + sin $2\psi_2 \cos 2\psi_1 \sin 2\theta_2$
2	sin 2 ψ_1 sin 2 θ_1 - sin 2 ψ_2 sin 2 θ_2	$\begin{array}{r} \cos 2\psi_1 \sin 2\psi_2 \cos 2\theta_2 \\ - \cos 2\psi_2 \sin 2\psi_1 \cos 2\theta_1 \end{array}$
3	2 cos ($\psi_1 + \psi_2$) cos ($\psi_1 - \psi_2$)	- sin 2 ψ_1 sin 2 ψ_2 sin 2 ($\theta_1 + \theta_2$)

TABLEAU II-a : Cas général

'n	R _n	V n
0	1	0
1	±1	0
2	0	±1
3.	1	0

TABLEAU II-b : notre expérience

Les quantités $C^{(k)}(F)$ sont des coefficients numériques. $b_2^F(t)$ est une composante transversale de l'orientation; elle évolue à la pulsation ω ; $b_1^F(t)$ est une composante transversale de l'alignement, qui évolue aussi à la pulsation ω . $b_0^F(t)$ et $b_3^F(t)$ comportent des composantes de l'alignement et des populations; la quantité $-b_0^F(t) - b_3^F(t)$ est statique, tandis que $-b_0^F(t) + b_3^F(t)$ évolue à la pulsation 2 ω .

Dans l'expression (1), les nombres R_n et V_n caractérisent l'influence du polariseur P et de l'analyseur A; ils sont indépendants du niveau hyperfin F. Ils sont calculés sur le tableau (II.a) (d'après $[\!\![^{46}]\!]$); on y a fait intervenir les angles ψ_1 et ψ_2 des polarisations transmises par les polariseurs linéaires π_1 et π_2 (voir figure 7), ainsi que les angles θ_1 et θ_2 des déphasages introduits par les lames biréfringentes. Pour notre expérience, R_n et V_n sont calculables en faisant $\theta_1 = \theta_2$ dans le tableau (II.a) (pas de lames biréfringentes sur le faisceau détecteur) et en prenant $\psi_1 = 0$ et $\psi_1 - \psi_2 = \pm 45^\circ$. On obtient ainsi les valeurs simples de R_n et V_n qui sont indiquées sur le tableau (II.b). On voit qu'avec un tel montage, on détecte :

i) avec un faisceau <u>non résonnant</u> (termes V_n), la quantité $\pm b_2^F(t)$, c'est-à-dire uniquement une composante transversale de l'<u>orientation</u>, modulée à ω .

ii) avec un faisceau <u>résonnant</u> (termes R_n), la quantité $\pm b_1^F(t) + b_0^F(t) + b_3^F(t)$; en observant la modulation à ω , on ne détecte ainsi que $b_1^F(t)$, c'est-à-dire une composante transversale de l'<u>alignement</u> (l'orientation est éliminée).

Enfin examinons l'influence de la composition spectrale du faisceau lumineux. Puisqu'on sépare dans chacun des 2 cas précédents les signaux relatifs à des observables du même ordre tensoriel k (k = 1 pour l'orientation, k = 2 pour l'alignement), on peut utiliser la formule (I.D.7) de $[4^6]$ obtenue pour un faisceau résonnant :

$$\sum_{\mathbf{F}} \mathbf{C}^{(\mathbf{k})}(\mathbf{F}) \Gamma'_{\mathbf{F}} \propto \sum_{\mathbf{F}} (-1)^{\mathbf{I}+\mathbf{F}} (2\mathbf{F}+1) \begin{cases} \mathbf{I} & \mathbf{I} & \mathbf{k} \\ & & \\ 1 & 1 & \mathbf{F} \end{cases} \Gamma'_{\mathbf{F}}$$
(3)

On a la même expression en remplaçant Γ'_F par $\Delta E'_F$ pour un faisceau non résonnant. Pour le cas de ¹⁰⁹Cd (I = 5/2; F = 3/2, 5/2 et 7/2), on obtient l'expression des signaux de détection modulés à la pulsation ω :

i) pour l'orientation, avec un faisceau non résonnant :

$$\Delta I_{d} = \pm \frac{\alpha}{\sqrt{2}} I_{0} < I_{y} > \sum_{F} C^{(1)}(F) \Delta E'_{F} \propto < I_{y} > \left[7 \Delta E_{\frac{1}{2}}^{!} + 3 \Delta E_{\frac{1}{2}}^{!} - 10 \Delta E_{\frac{1}{2}}^{!} \right] \qquad (4)$$
ii) pour l'alignement, avec un faisceau résonnant :

$$\Delta I_{d} = \mp \frac{1}{2} \alpha I_{0} < I_{z} I_{x} + I_{x} I_{z} > \sum_{F} C^{(2)}(F) \frac{\Gamma'_{F}}{2}$$

$$\propto < I_{z} I_{x} + I_{x} I_{z} > \left[-7 \Gamma_{\frac{1}{3}}^{!} + 12 \Gamma_{\frac{1}{2}}^{!} - 5 \Gamma_{\frac{1}{2}}^{!} \right] \qquad (5)$$

On vérifie bien sur ces expressions (4) et (5) que les signaux de détection sont nuls dans le cas d'une illumination en "raie large" sur les 3 composantes hyperfines du niveau excité. Rappelons l'interprétation physique de ce résultat, donnée dans [⁴⁶] : on sait qu'aux phénomènes transitoires liés à l'absorption d'un photon par un atome est associé un temps $1/\Delta$ (Δ : largeur spectrale du faisceau lumineux). Or l'absorption lumineuse ne fait intervenir aucun couplage direct entre l'orientation du spin nucléaire \vec{T} et l'onde lumineuse; elle ne peut être sensible à l'orientation nucléaire de l'état fondamental que par l'intermédiaire du couplage hyperfin a $\vec{1}$. \vec{J} entre les observables nucléaires $\vec{1}$ et électroniques \vec{J} dans l'état excité (a : constante de structure hyperfine de l'état excité). Ceci implique que ce couplage ait le temps de se produire pendant la durée $1/\Delta$ du processus d'absorption, donc que $\frac{1}{\Delta}$. a >> 1 : la raie excitatrice ne doit pas recouvrir l'ensemble de la structure hyperfine du niveau excité.

Il reste à examiner la structure isotopique de la raie 3.261 Å; on choisira les isotopes de cadmium à mettre dans les lampes de façon à réaliser un faisceau détecteur soit résonnant, soit non résonnant.

β) Choix des lampes de détection

La figure 8 représente l'ensemble de la structure isotopique de la raie $\lambda = 3.261$ Å du cadmium [⁴⁹]. On y a également porté la largeur Doppler Δv_D de cette raie à 200°C, qui donne un ordre de grandeur de la largeur spectrale de la raie excitatrice ^(*). La position des 3 composantes hyperfines de ¹⁰⁹Cd a

(*) L'expérience montre que Δ est couramment de l'ordre de 3 Δv_{p} .

- 24 -





.

été déterminée par McDERMOTT et coll. [⁴²] en utilisant la méthode de double résonance. On voit qu'il y a presque coïncidence d'une part entre les composantes F = 3/2 de ¹⁰⁹Cd et F = 1/2 de ¹¹¹Cd et ¹¹³Cd, d'autre part entre F = 7/2 de ¹⁰⁹Cd et F = 3/2 de ¹¹¹Cd et ¹¹³Cd. C'est pourquoi nous avons rempli des lampes avec du ¹¹¹Cd (de 94% de pureté isotopique) : leur profil spectral, qui comporte deux maximums centrés sur les composantes F = 3/2 et F = 7/2 de ¹⁰⁹Cd, est susceptible d'induire des transitions résonnantes dans la vapeur de ¹⁰⁹Cd, sans que l'illumination soit en "raie large" sur l'ensemble de la structure hyperfine du niveau 5³P1 (la composante F = 5/2 est beaucoup moins éclairée : $\Gamma'_{3/2}$ et $\Gamma'_{7/2}$ sont seuls importants). Nous avons donc utilisé ces lampes pour la détection de l'alignement, par absorption résonnante d'un faisceau croisé comportant un polariseur π_1 et un analyseur π_2 linéaires à 45° l'un de l'autre, comme décrit plus haut; on voit sur la formule (5) que cette situation est favorable, car les signaux en $\Gamma_{3/2}^{\prime}$ et $\Gamma_{7/2}^{\prime}$ ont le même signe et s'ajoutent. Remarquons que le profil spectral de ces lampes à ¹¹¹Cd n'est sans doute pas tout à fait symétrique au voisinage de la raie d'absorption correspondant à la composante F = 5/2 de ¹⁰⁹Cd; la quantité $\Delta E_{5/2}^{i}$ n'est probablement pas exactement nulle; le signal de détection doit donc comporter également des modulations à w liées aux transitions virtuelles, c'est-à-dire à l'orientation d'après le paragraphe précédent. Cependant cet inconvénient n'existe pas, car on ne crée pas d'orientation dans une expérience où les faisceaux de pompage ne sont pas polarisés, comme nous le verrons au paragraphe suivant. Signalons que des lampes à ¹¹¹Cd ont été utilisées également pour les 2 faisceaux de pompage.

De plus, nous avons rempli des lampes avec l'isotope ¹¹⁶Cd (pureté 96%), pour détecter l'<u>orientation</u> à l'aide d'un faisceau <u>non résonnant</u>. Ces lampes émettent une raie distante environ de 0,5 Δv_{D} , 1,5 Δv_{D} et 3 Δv_{D} des composantes F = 7/2, 5/2 et 3/2 de ¹⁰⁹Cd respectivement. Elles donnent donc des valeurs importantes aux quantités $\Delta E'_{F}$; de plus $\Delta E'_{3/2}$ et $\Delta E'_{5/2}$ sont de même signe et de signe opposé à $\Delta E'_{1/2}$, si bien que les contributions des 3 composantes s'ajoutent (cf. formule (4)), lors de la détection de l'orientation avec le dispositif où les polariseurs linéaires π_1 et π_2 sont à 45° l'un de l'autre (voir plus haut). Le profil spectral de ces lampes à ¹¹⁶Cd est cependant tel que les quantités Γ'_{F} ne sont pas rigoureusement nulles (en particulier $\Gamma'_{3/2}$); la modulation à ω ainsi détectée pourrait donc comporter, en plus du signal lié à l'orientation créée par les 2 faisceaux de pompage polarisés circulairement, une partie liée à l'alignement qui est toujours produit simultanément \Box cf. formule (5) \supset . On pourrait penser éliminer plus complètement l'absorption résonnante par ¹⁰⁹Cd en interposant un filtre contenant du ¹¹¹Cd très pur entre la lampe de ¹¹⁶Cd et la cellule; on annule ainsi strictement $\Gamma'_{3/2}$ et $\Gamma'_{1/2}$; mais comme on ne change pas sensiblement $\Gamma'_{5/2}$, on voit sur la formule (5) qu'on augmente plutôt le signal parasite ! [c'est d'ailleurs bien ce que nous avons constaté expérimentalement]. C'est pourquoi, dans tous les cas où nous voulions isoler l'orientation avec ce dispositif de détection, nous avons dû contrôler que l'alignement ne contribuait pas de manière appréciable à la modulation détectée; par exemple, nous avons supprimé les lames biréfringentes sur les faisceaux de pompage : le signal d'alignement observé tombe alors à moins de 2% de la valeur qu'il avait en présence d'orientation de la vapeur.

γ) Mise en évidence de l'orientation nucléaire de ¹⁰⁹Cd

Le montage est celui qui vient d'être décrit; il comporte deux faisceaux de pompage très ouverts polarisés circulairement (lampes à ¹¹¹Cd) et un faisceau croisé de détection (lampe à ¹¹⁶Cd) qui traverse 2 polariseurs linéaires à 45° l'un de l'autre de part et d'autre de la cellule. Nous avons ainsi mis en évidence une modulation intense à la pulsation ω du champ de radiofréquence. Cette modulation du courant issu du photomultiplicateur est préamplifiée, puis analysée en fréquence à l'aide d'une détection synchrone (PAR, HR8) dont la référence est commandée par le générateur de radiofréquence. En réglant la phase du signal de référence, on extrait la composante de l'aimantation transversale en phase avec le champ de radiofréquence tournant; on enregistre ainsi une courbe de dispersion, en balayant lentement le champ magnétique Bo autour de la valeur correspondant à la résonance nucléaire de ¹⁰⁹Cd. La courbe de la figure 9 donne un exemple de signal obtenu dans ces conditions : il correspond à une fréquence de résonance de 11 KHz, c'est-à-dire à une valeur de Bo voisine de 44 Gs. Pour cet enregistrement, la constante de temps de la détection synchrone était de 1 seconde, la température θ_c de la cellule de 450°C. De la largeur $\Delta \omega$ de ce signal, extrapolée à intensité nulle du champ de radiofréquence, on peut déduire, en faisant varier l'intensité I des faisceaux de pompage, une mesure du temps de pompage T_p et du temps de relaxation de l'orientation transversale T_2^{or} , reliés par :

$$\pi\Delta\omega = \frac{1}{T_{p}} + \frac{1}{T_{2}^{or}}$$

<u>.</u> .

(6)

- 26 -



<u>FIGURE 9</u> : Signal d'<u>orientation nucléaire</u> de ¹⁰⁹Cd Température de cellule : $\theta_{C} = 450^{\circ}C$ Fréquence de résonance : 11 KHz Constante de temps de l'enregistrement : 1 s



Cette mesure est illustrée par la figure 10, d'où l'on déduit : $T_2^{or} = 0,25$ s et $T_p = 0,16$ s pour l'intensité de pompage maximale. Cependant la précision obtenue pour la détermination de T_2^{or} par cette méthode est limitée par la nécessité de faire deux extrapolations successives. C'est pourquoi nous avons employé plutôt des méthodes de transitoires pour mesurer les temps de relaxation transversal T_2^{or} et longitudinal T_1^{or} de l'orientation du ¹⁰⁹Cd. Nous décrivons ici brièvement les techniques utilisées. Les résultats de cette étude sont présentés plus loin, en même temps que ceux relatifs à l'alignement.

a) Mesure de T_2^{Or}

En l'absence de champ de radiofréquence, les faisceaux de pompage ne créent que de l'orientation longitudinale $\langle I_z \rangle$: on ne détecte aucune modulation lumineuse. MANUEL a montré [⁴⁴] que si l'on applique au système atomique ainsi orienté une impulsion de champ de radiofréquence \vec{B}_1 cos ω t de durée très courte, mais juste suffisante pour faire précesser l'orientation $\langle \vec{I} \rangle$ d'un angle de $\pi/2$ autour du champ \vec{B}_1 fixe dans le référentiel tournant ("pulse de $\pi/2$ "), on crée ainsi à un instant donné de l'aimantation transversale. Celle-ci relaxe ensuite avec une constante de temps égale, en présence de faisceau pompant, à $[(T_2^{or})^{-1} + (T_p)^{-1}]^{-1}$.

Si l'on applique cette technique à notre expérience, il apparaît au début de l'impulsion une modulation à ω , dont l'amplitude décroît; pour la détecter, nous avons remplacé la détection synchrone du montage précédent par un amplificateur sélectif (Hewlett Packard 504) de 50 Hz de bande passante, centré sur la pulsation ω (Δ quelques KHz). Nous avons photographié directement la décroissance de la modulation sur le cadran de l'oscillographe. Remarquons que la méthode de détection par effet Faraday utilisée ici présente l'avantage que le faisceau détecteur n'introduit pas de cause de relaxation supplémentaire. Il suffit d'extrapolér la constante de temps ainsi mesurée à intensité de pompage nulle $(T_p^{-1} = 0)$. Pour éviter cette extrapolation, nous avons compliqué légèrement le dispositif expérimental : en synchronisation avec le générateur d'impulsions de radiofréquence, on déclenche simultanément, à l'aide d'un dispositif de relais, le balayage de l'oscillographe et un interrupteur mécanique placé sur le trajet d'un des faisceaux de pompage (le second étant supprimé dans cette expérience); la relaxation de l'aimantation transversale créée par le "pulse de $\pi/2$ " s'effectue dans le noir. La constante de temps de l'exponentielle, enveloppe de la modulation à ω , est alors égale à T_2^{or} , que l'on mesure ainsi directement. La figure ll-a représente une photographie prise dans ces conditions; on remarque que le rapport signal sur bruit est moins bon que celui de la figure 9, enregistrée après détection synchrone; ce désavantage est cependant très largement compensé par le fait qu'on évite ainsi une double extrapolation; la précision sur les mesures de constante de temps par cette méthode de transitoires est de l'ordre de 10%.

b) Mesure de T_1^{or}

Nous avons utilisé une méthode analogue et le même montage pour mesurer la constante de temps T_1^{Or} de décroissance de l'aimantation longitudinale. Les "pulses" de radiofréquence sont ici deux fois plus longs que dans le cas précédent : ce sont des "pulses de π ". De plus, un délai variable est introduit entre l'obturation du faisceau de pompage et le "pulse de π ", le déclenchement du balayage de l'oscillographe restant synchronisé sur l'interrupteur mécanique. Cette méthode, dite de "relaxation dans le noir", a été utilisée de façon analogue dans le cas de ¹⁹⁹Hg par MANUEL [⁴⁴], suivant la séquence déjà mise au point par FRANZEN [⁵⁰]. Pour ¹⁰⁹Cd on obtient ainsi un cliché analogue à celui de la figure 10-b; l'enveloppe des "pics" de modulation constitue une exponentielle dont la constante de temps est directement égale à T_1^{Or} .

δ) Mise en évidence expérimentale de l'alignement de 109 Cd

Pour créer de l'alignement nucléaire dans la vapeur de ¹⁰⁹Cd, nous avons utilisé deux faisceaux de pompage non polarisés issus de lampes à ¹¹¹Cd et se propageant parallèlement à \vec{B}_0 . Le dispositif de détection par faisceau croisé a été décrit plus haut. Nous avons bien observé une modulation à ω avec un analyseur à 45° de \vec{E}_0 sur le faisceau détecteur résonnant issu d'une lampe à ¹¹¹Cd. La figure 12 représente ce signal, enregistré après une détection synchrone comportant une constante de temps de 3s; il est nettement moins intense que celui de la figure 9 correspondant à l'orientation. L'amplitude de la modulation étant trop faible par rapport au bruit pour permettre l'application des méthodes de transitoires décrites plus haut pour l'orientation, nous avons seulement mesuré la largeur des courbes de résonance, extrapolée à intensité du champ de radiofréquence

- 28 -









FIGURE 11-b

Relaxation dans le noir de l'orientation nu léaire longitue de l' $^{100}{\rm Ce}$



FIGURE 12 : Signal d'alignement nucléaire de ¹⁰⁹Cd Température de la cellule : 450°C Fréquence de résonance : 11 KHz Constante de temps de l'enregistrement : 3 s nulle et à intensité pompante nulle. Nous en avons déduit T_2^{al} , le temps de relaxation de la composante transversale de l'alignement < I I $_{z}$ I $_{x}$ + I $_{x}$ I $_{z}$ >, qui est détectée avec ce montage (cf. formule (5)). La précision sur la valeur de T_2^{al} obtenue est de l'ordre de 20%. Les temps de relaxation des autres composantes de l'alignement n'ont pas été mesurés.

- 29 -

A.TV ETUDE DE LA RELAXATION NUCLEAIRE DE ¹¹¹Cd ET ¹⁰⁹Cd

A l'aide de la cellule précédente, contenant un mélange de ¹⁰⁹Cd et ¹¹¹Cd, nous avons entrepris une étude comparée des temps de relaxation nucléaire de ¹¹¹Cd et ¹⁰⁹Cd. ¹⁰⁹Cd et ¹¹¹Cd n'ayant pas le même spin nucléaire (I = 1/2 pour ¹¹¹Cd et I = 5/2 pour ¹⁰⁹Cd), on peut en effet s'attendre à des comportements assez différents pour les 2 isotopes, notamment à cause du fait que le noyau de ¹⁰⁹Cd possède un moment quadripolaire électrique Q, alors que ¹¹¹Cd n'en a pas. Une étude analogue pour le couple d'isotopes ¹⁹⁹Hg (I = 1/2) et ²⁰¹Hg (I = 3/2) a été réalisée par CAGNAC [¹¹], COHEN-TANNOUDJI [¹²] et LEMEIGNAN [¹³]. Nous rapportons d'abord très brièvement nos résultats pour ¹¹¹Cd, que nous comparons à ceux de LEHMANN [²⁴][⁵¹]; puis nous présentons ceux que nous avons trouvés pour l'orientation et l'alignement de ¹⁰⁹Cd [²⁸]; enfin nous proposons une tentative d'interprétation à l'échelle microscopique de nos résultats et montrons les difficultés auxquelles elle se heurte.

1) Relaxation de ¹¹¹Cd

a) <u>Résultats expérimentaux</u>

Nous avons fait une étude des temps de relaxation T_1^{or} et T_2^{or} de l'orientation longitudinale et transversale de ¹¹¹Cd, à l'aide des techniques de transitoires décrites plus haut pour ¹⁰⁹Cd. Nous avons bien constaté, comme LEHMANN [⁵¹], que plusieurs cycles de chauffage de la cellule, en présence de vapeur métallique, sont nécessaires pour obtenir des valeurs assez longues et reproductibles des temps de relaxation. Les résultats trouvés pour T_1^{or} et T_2^{or} après "stabilisation" de la cellule sont portés sur la figure 13 en fonction de la température θ_c de la cellule ^(*). On constate qu'à toute température $T_2^{or} < T_1^{or}$ et que ces deux constantes de temps augmentent notablement avec θ_c [ainsi T_1^{or} passe

(*) Nous avons constaté, sur une cellule contenant à la fois du mercure et du cadmium (voir § A.V.2) qu'une paroi de silice peut être "stabilisée" au sens précédent (c'est-à-dire donner des temps de relaxation longs) pour le mercure sans l'être pour autant pour le cadmium.

- 31 -

de 0,2 à 0,6 s quand θ_c croît de 320 à 950°C] . Ces résultats sont tout à fait comparables à ceux obtenus par LEHMANN avec une autre cellule, contenant du ¹¹¹Cd seul [⁵¹]; cependant, tous les temps mesurés ici sont nettement plus courts que ceux rapportés dans la référence [⁵¹] (par un facteur 2 environ) : il est en effet fréquent qu'ils varient d'une manière appréciable d'une cellule à l'autre.

On peut rapprocher ces résultats de ceux obtenus pour ¹⁹⁹Hg [[¹¹]] [[¹³]] : on observe dans ce cas $T_2 << T_1$ avant la "formation" des parois, mais la différence entre T_1 et T_2 diminue au cours des cycles de chauffage successifs de la cellule en présence de vapeur de mercure, pour disparaître complètement sur une cellule "stabilisée". Cependant, pour ¹¹¹Cd, contrairement à ce qu'on observe pour ¹⁹⁹Hg avec des cellules non "stabilisées" [[¹¹]], nous n'avons trouvé aucune variation des temps de relaxation transversal et longitudinal avec le champ magnétique B₀ (pour B₀ compris entre 10 et 400 Gs).

β) <u>Discussion</u>

En dépit de nombreuses tentatives, le mécanisme de la relaxation nucléaire de ¹⁹⁹Hg à l'échelle microscopique n'est pas réellement élucidé à l'heure actuelle; on doit admettre qu'il en est de même pour ¹¹¹Cd. On peut cependant avancer quelques considérations sur l'origine physique possible des interactions désorientatrices dans le cas de ces deux isotopes.

Les atomes ¹⁹⁹Hg et ¹¹¹Cd ont tous deux un spin nucléaire I = 1/2 : le seul processus de relaxation nucléaire concevable est l'interaction entre le moment magnétique des noyaux et les champs magnétiques aléatoires rencontrés par l'atome pendant le temps τ_S où il est adsorbé sur la paroi. On peut chercher à imaginer l'origine physique possible de ces champs magnétiques aléatoires. Par analogie avec le cas de la relaxation magnétique des alcalins, en phase vapeur et sur les parois, on peut d'abord penser à une interaction désorientatrice du type "spin-orbite", entre le spin nucléaire \vec{I} de l'atome et le moment angulaire orbital relatif \vec{N} de l'atome et de la paroi où il est adsorbé ; le hamiltonien d'interaction correspondant , proportionnel à $\vec{I}.\vec{N}$, serait l'analogue du hamiltonien en $\vec{S}.\vec{N}$ envisagé pour les alcalins dans la référence [temps] et aurait la même origine physique; cette interaction serait présente pendant tout le temps de séjour τ_S de

- 32 -



l'atome sur la paroi; on peut déduire un ordre de grandeur de cet effet à partir des calculs développés dans la référence $[5^3]$ pour un cas assez semblable : l'interaction $\vec{I}.\vec{N}$ apparaît beaucoup trop faible pour expliquer les probabilités de relaxation observées pour ¹⁹⁹Hg et ¹¹¹Cd.

On peut plutôt envisager que la relaxation magnétique est produite par des centres paramagnétiques présents sur la paroi ; ces centres peuvent être par exemple des inclusions paramagnétiques dans la silice (étant donnée la qualité de l'Ultrasil employé, leur nombre doit être très faible), ou encore des centres colorés produits par l'irradiation ultraviolette des parois. Suivant la valeur des champs magnétiques aléatoires mis en jeu, ainsi que du temps de corrélation τ_c de ces interactions ($\tau_c \leq \tau_s$), celles-ci peuvent avoir une importance et un comportement très différents : en particulier, elles sont susceptibles d'apparaître comme des interactions "faibles", obéissant au critère de moyennage par le mouvement, ou au contraire comme des interactions "fortes"; ces dernières correspondraient alors à un processus qui aurait une probabilité égale à 1 de désorienter les noyaux, mais qui ne se produirait que très rarement par rapport à la fréquence des collisions d'un atome avec les parois, compte tenu de la longueur des temps de relaxation observés (voir la figure 13). On peut illustrer ce cas par un exemple : au cours de son adsorption sur la paroi, un atome migre sur la surface de silice; celle-ci présente des centres paramagnétiques dont la concentration est très faible; l'atome a donc très peu de chance de rencontrer un tel "site" pendant son temps d'adsorption τ_s ; si, par contre, il passe au voisinage d'un "site" avant de quitter la paroi et y demeure un temps suffisant, on peut faire l'hypothèse qu'il y est totalement désorienté.

Pour déterminer si le processus de relaxation dominant est "faible" ou "fort", on peut penser à comparer les résultats relatifs à deux isotopes différents d'un même atome, possédant l'un et l'autre un spin nucléaire égal à 1/2: ainsi ¹¹¹Cd et ¹¹³Cd, ou ¹⁹⁹Hg et ¹⁹⁷Hg. En effet, si l'on suppose que l'interaction magnétique est du type "fort", les probabilités de relaxation des deux isotopes sont égales. Par contre, si elle est du type "faible", ces probabilités sont dans le rapport des carrés des facteurs gyromagnétiques γ des deux noyaux. Malheureusement, pour le couple ¹¹¹Cd-¹¹³Cd, γ ne diffère que très peu d'un noyau à l'autre (de 1% environ), si bien que la précision des mesures comparatives effec-

- 33 -

tuées par LEHMANN pour ces 2 isotopes [²⁴][⁵¹] n'a pas permis de trancher entre les deux types d'interaction possibles. Remarquons qu'il serait par contre très intéressant d'étudier à cet égard la relaxation du couple ¹⁹⁹Hg-¹⁹⁷Hg.

Des informations sur la "force" de l'interaction désorientatrice peuvent être également fournies par la comparaison des temps de relaxation T_1 et T_2 de l'orientation longitudinale et transversale; en effet, si l'interaction est "faible" et satisfait au critère du "rétrécissement extrême", T_1 et T_2 sont égaux. Nos mesures pour ¹¹¹Cd (voir figure 13) indiquent qu'ils diffèrent d'environ 20%, avec $T_2 < T_1$, dans un domaine où ces temps ne dépendent pas du champ magnétique B_0 ; cet écart est systématique dans toute la gamme de température étudiée : la relaxation de ¹¹¹Cd ne peut donc pas être considérée comme "faible" à 100%. Il en est de même pour celle de ¹⁹⁹Hg avant la "formation" des parois des cellules, d'après les résultats rappelés au paragraphe précédent.

On constate donc l'extrême complexité des phénomènes de relaxation magnétique de l'orientation nucléaire de ¹⁹⁹Hg et ¹¹¹Cd sur les parois de silice. Les difficultés d'interprétation sont encore accrues par l'évolution du comportement de la relaxation avec les cycles de chauffage, liée de toute évidence à un changement de nature des parois. La connaissance des processus microscopiques qui sont à l'origine de la relaxation passe obligatoirement par la détermination expérimentale des paramètres de l'interaction et en particulier du temps de corrélation τ_{c} . On peut donner une borne supérieure à la valeur de τ_{c} , à condition de faire l'hypothèse que l'interaction désorientatrice est "faible" : en effet, puisque les temps de relaxation mesurés pour 111 Cd ne varient pas avec B $_0$ (10 < Bo < 400 Gs), les atomes obéissent dans ce cas au critère du "rétrécissement extrême", c'est-à-dire $\omega_0\tau_c$ << 1 (ω_0 : fréquence de Larmor des noyaux dans le champ B₀) $[1^{2}]$; si l'on prend, pour obtenir un ordre de grandeur, $\omega_{0}\tau_{c} < 0,1$ et B₀ = 400 Gs, on obtient $\tau_c < 10^{-7}$ s. Une étude de T₁ et T₂ en champ magnétique plus élevé permettrait sans doute de déterminer la valeur de T et de progresser dans l'interprétation à l'échelle microscopique. Au stade actuel, il n'apparaît pas très utile d'élaborer des modèles détaillés permettant de rendre compte de la relaxation magnétique de ¹¹¹Cd.

- 34 -

2) Relaxation de ¹⁰⁹Cd

a) <u>Résultats expérimentaux</u>

Pour chaque valeur de la température θ_c de la cellule, nous avons mesuré,à l'aide des méthodes décrites plus haut (cf. § A.III,3), les temps de relaxation T_1^{or} et T_2^{or} de l'orientation longitudinale et transversale, ainsi que celui d'une des composantes transversales de l'alignement T^{al} de ¹⁰⁹Cd. Les résultats sont portés sur la figure 14. Nous avons de plus vérifié que les temps de relaxation des 3 observables étudiées ne varient pas avec le champ magnétique B₀ (10 < B₀ < 400 Gs).

On constate sur la figure 14 que les constantes de temps sont égales pour l'orientation transversale et longitudinale, à la précision des mesures près (nous désignerons dans la suite leur valeur commune par la notation T^{or}). Ce résultat est obtenu quelle que soit la température θ_c entre 300 et 950°C. Rappelons que ceci est différent de ce qu'on observe dans le cas de ¹¹¹Cd, où $T_2^{or} < T_1^{or}$ (voir figure 13).

Sur la figure 15, nous avons porté la valeur expérimentale du rapport $T^{or}({}^{109}Cd) / T_1^{or} ({}^{111}Cd)$ en fonction de la température θ_c . On voit que ce rapport est de l'ordre de l à basse température (300 < θ_c < 500°C) et qu'il croît jusqu'à une valeur voisine de 3 pour $\theta_c \sim 1.000°C$.

β) Mise en évidence de la relaxation quadrupolaire de ¹⁰⁹Cd

La différence de comportement entre la relaxation nucléaire de ¹¹¹Cd et ¹⁰⁹Cd suggère la présence, pour ¹⁰⁹Cd, d'un mécanisme de désorientation prépondérant qui diffère de celui envisagé plus haut pour ¹¹¹Cd (interaction dipolaire magnétique) ; ce processus, qui domine la relaxation de ¹⁰⁹Cd, est le même pour les composantes longitudinale et transversale de l'orientation, alors qu'il ne dépend pas du champ B₀ : ces faits sont compatibles avec l'hypothèse d'une interaction désorientatrice "faible", obéissant aux critères du moyennage par le mouvement et du "rétrécissement extrême [¹²]. Par analogie avec le cas de ²⁰¹Hg [¹¹][¹³], nous pouvons supposer que ce processus est lié à l'existence d'un moment quadrupolaire électrique Q pour le noyau de ¹⁰⁹Cd (I = 5/2) (rappelons que le noyau de ¹¹¹Cd (I = 1/2) n'en possède pas). Comme dans le modèle théorique développé par COHEN-TANNOUDJI pour expliquer la relaxation de ²⁰¹Hg [¹²], faisons l'hypothèse que l'atome ¹⁰⁹Cd interagit, par l'intermédiaire de Q, avec des gradients de champ électrique aléatoires q apparus au niveau du noyau lors de la collision de l'atome sur la paroi. q résulte par exemple de la déformation des couches électroniques de l'atome pendant le temps τ_S d'adsorption sur la paroi, ou encore de la présence de charges électriques. Rappelons que le modèle implique que cette interaction est du type "faible" [¹²].

Il est cependant légitime de supposer que les atomes de ¹⁰⁹Cd subissent aussi des interactions dipolaires magnétiques avec les parois : celles-ci doivent être les mêmes que pour les atomes de ¹¹¹Cd, puisque les deux isotopes sont contenus dans la même cellule (cette supposition ne fait intervenir aucune connaissance de la nature de cette interaction désorientatrice). Nous allons chercher à évaluer, à partir des résultats expérimentaux sur ¹¹¹Cd, la contribution de ces interactions magnétiques à la relaxation de l'orientation de ¹⁰⁹Cd, de façon à déterminer, par différence, l'importance de la relaxation quadrupolaire de ¹⁰⁹Cd. Pour cela, décomposons la probabilité $1/T^{\text{or}}$ de relaxation de l'orientation de ¹⁰⁹Cd en deux parties : l'une $1/T_m^{\text{or}}$ correspondant à la relaxation dipolaire magnétique, l'autre $1/T_Q^{\text{or}}$ à la relaxation quadrupolaire électrique. On obtient ainsi pour l'orientation de ¹⁰⁹Cd :

$$\frac{1}{T^{\text{or}}} = \frac{1}{T_{\text{m}}^{\text{or}}} + \frac{1}{T_{0}^{\text{or}}}$$
(7)

Pour évaluer T_m^{or} (¹⁰⁹Cd) à partir de T_1^{or} (¹¹¹Cd), il est nécessaire à ce stade de faire une hypothèse sur la "force" de l'interaction magnétique dans le cas de ¹¹¹Cd et ¹⁰⁹Cd. En effet, nous avons vu au (§ A.IV,1, β) que si elle est du type "fort", les probabilités de relaxation correspondantes pour les deux isotopes sont égales; par contre, si elle est du type "faible", celles-ci sont dans le rapport des carrés des facteurs gyromagnétiques γ de ¹¹¹Cd et ¹⁰⁹Cd. Un fait montre indubitablement que l'interaction magnétique, seule visible pour ¹¹¹Cd, n'est pas "forte" pour ¹¹¹Cd et ¹⁰⁹Cd dans toute la gamme de température étudiée : on voit sur la figure 15 qu'à basse température ($\theta_c \approx 350^{\circ}$ C), les temps de relaxation mesurés pour l'orientation de ¹¹¹Cd et ¹⁰⁹Cd sont très voisins; on pourrait être tenté d'interpréter ceci comme une preuve que l'interaction magnétique est "forte" pour les deux isotopes et

- 36 -



<u>FIGURE 14</u> : Temps de relaxation nucléaire de ¹⁰⁹Cd dans l'état fondamental en fonction de la température θ_{C} de la cellule



seule présente pour ¹⁰⁹Cd; cependant l'expérience montre que cette égalité des temps de relaxation de ¹¹¹Cd et ¹⁰⁹Cd ne se maintient pas à plus forte température, où l'on a T^{or} (¹⁰⁹Cd) > T_1^{or} (¹¹¹Cd). Il semble donc plausible de faire plutôt l'hypothèse que la relaxation magnétique est "faible" dans toute la gamme de température, bien que ceci ne soit pas totalement vrai pour ¹¹¹Cd, comme nous l'avons vu plus haut. On obtient alors :

(8)

$$\frac{T_{m}^{\text{or}} ({}^{109}\text{Cd})}{T_{1}^{\text{or}} ({}^{111}\text{Cd})} = \left[\frac{\gamma ({}^{111}\text{Cd})}{\gamma ({}^{109}\text{Cd})}\right]^{2} = 13$$

La valeur élevée de ce rapport appelle deux remarques : d'une part, elle laisse penser que l'interaction magnétique est nettement plus faible pour ¹⁰⁹Cd que pour ¹¹¹Cd; d'autre part, si l'on se reporte à la figure 15, on constate que la valeur expérimentale du rapport T^{Or} (¹⁰⁹Cd) / T^{Or}₁ (¹¹¹Cd) reste très inférieure à 13 dans toute la gamme de température étudiée; en particulier, à basse température (300 < θ_{c} < 500°C), T^{Or} (¹⁰⁹Cd) est 13 fois plus court que si l'interaction magnétique était seule présente pour ¹⁰⁹Cd.

Ce dernier résultat semble donc confirmer l'existence de la relaxation quadrupolaire pour ¹⁰⁹Cd : ce processus, absent pour ¹¹¹Cd, est dominant pour ¹⁰⁹Cd et masque sa relaxation dipolaire magnétique. Son influence est prépondérante à basse température et décroît lorsqu'on chauffe la cellule. Nous l'évaluons quantitativement, à partir des résultats expérimentaux, en effectuant la décomposition des deux interactions d'après la formule (7); T_m^{or} (¹⁰⁹Cd) est calculé à partir des valeurs expérimentales de T_1^{or} (¹¹¹Cd) en utilisant la formule (8). Nous donnons sur le tableau III un exemple d'une telle décomposition pour quelques valeurs de la température θ_c . L'ensemble des résultats est porté sur la figure 16. On constate que la relaxation quadrupolaire est largement dominante dans toute la gamme de température θ_c étudiée, bien que sa probabilité décroisse plus vite avec θ_c que celle de la relaxation dipolaire magnétique. Ceci explique les résultats de la figure 15 : on voit qu'il faudrait chauffer la cellule à une température θ_c très supérieure à 1.000°C pour obtenir une situation où la relaxation dipolaire magnétique serait dominante; il faudrait que le rapport T^{or} (¹⁰⁹Cd) / T_1^{or} (¹¹¹Cd) tende vers une valeur limite égale à 13. Remarquons que, dans le cas de ¹⁹⁹Hg et ²⁰¹Hg, cette condition est

	Résultats e: ¹¹¹ Cd	xpérimentaux ¹⁰⁹ Cd	Relaxation dipolaire magnétique de ¹⁰⁹ Cd	Relaxation quadru- polaire électrique de ¹⁰⁹ Cd
θ en °C	$\frac{1}{T_{1}^{\text{or}}(^{111}\text{Cd})}$ en s ⁻¹	$\frac{1}{T^{\text{or}}(109 \text{Cd})}$ en s ⁻¹	$\frac{1}{T_{m}^{or}(^{109}Cd)} = \frac{1}{13} \frac{1}{T_{1}^{or}(^{111}Cd)}$ en s ⁻¹	$\frac{\frac{1}{T_Q^{or}(109 \text{Cd})}}{\frac{1}{T^{or}(109 \text{Cd})} - \frac{1}{T_m^{or}(109 \text{Cd})}}$ en s ⁻¹
580	3,45	2,50	0,265	2,235
690	2,75	1,56	0,21	1,35
840	2,04	0,870	0,157	0,713
960	1,67	0,590	0,128	0,462

TABLEAU III

obtenue pour des valeurs de θ_c nettement plus faibles et accessibles à l'expérience [¹³].

γ) Relation entre les temps de relaxation des différentes observables

Nous avons vu que, pour les différentes interactions responsables de la relaxation de ¹⁰⁹Cd, supposées "faibles", on peut faire l'hypothèse du "rétrécissement extrême". On sait qu'alors toutes les observables atomiques d'un ordre tensoriel k donné évoluent avec la même constante de temps $T^{(k)}$ (soit T^{or} pour les 3 composantes de l'orientation, T^{al} pour les 5 composantes de l'alignement) [¹²]. FAROUX a montré [⁵⁴] que, dans ce cas, la probabilité de relaxation d'une observable d'ordre k par une interaction d'ordre tensoriel k' est donnée par (cf. formule (I.70) de [⁵⁴]) :

$$\frac{1}{T^{(k)}} = \alpha \left[\frac{1}{2I+1} - (-1)^{2I+k+k'} \begin{cases} I & I & k' \\ I & I & k \end{cases} \right]$$
(9)



où α caractérise l'intensité de l'interaction désorientatrice, mais est indépendant de k. On peut utiliser cette expression pour calculer le temps de relaxation de l'alignement de ¹⁰⁹Cd à partir de celui mesuré pour l'orientation. Pour cela on décompose la probabilité de relaxation de l'alignement en deux parties, l'une dipolaire magnétique, notée $1/T_{\Omega}^{al}$, l'autre quadrupolaire électrique, notée $1/T_{\Omega}^{al}$. On écrit donc :

$$\frac{1}{T^{a1}} = \frac{1}{T^{a1}} + \frac{1}{T^{a1}}$$

Cette formule est l'analogue de celle écrite en (7) pour l'orientation.

Pour l'interaction dipolaire magnétique, on utilise l'expression (9), en y faisant k' = 1; on trouve :

$$\frac{1}{T_{m}^{(k)}} \propto k(k+1)$$

d'où l'on déduit, en prenant k = 2 pour l'alignement et k = 1 pour l'orientation :

$$\frac{1}{T_m^{al}} = 3 \times \frac{1}{T_m^{or}}$$
(11)

A partir des valeurs déterminées pour $1/T_m^{or}$ au paragraphe précédent (voir tableau III), on calcule $1/T_m^{al}$ en appliquant (11). Sur le tableau IV, nous avons porté les valeurs ainsi trouvées à plusieurs températures θ_{a} :

θ en °C c	$\frac{1}{T_{m}^{or} en s^{-1}}$	$\frac{1}{T_{m}^{a1}} = 3 \times \frac{1}{T_{m}^{or}} \text{ en s}^{-1}$	
580	0,265	0,795	
690	0,210	0,630	
840	0,157	0,471	
960	0,128	0,384	

- 39 -

De même pour l'interaction quadrupolaire on obtient, d'après (9), en prenant k' = 2 :

(12)

$$\frac{1}{T_0^{a1}} = \frac{21}{8} \frac{1}{T_0^{or}}$$

Sur le tableau V, nous avons porté les valeurs de $1/T_Q^{al}$ ainsi déterminées :

θ _c en °C	$\frac{1}{T_Q^{\text{or}}}$ en s	$\frac{\frac{1}{T_{Q}^{a1}} = \frac{21}{8} \frac{1}{T_{Q}^{or}}}{\frac{1}{T_{Q}^{or}}}$
580	2,24	5,87
690	1,35	3,55
840	0,713	1,87
960	0,462	1,21

TABLEAU V

Enfin, sur le tableau VI, nous avons inscrit dans la première colonne les valeurs totales des probabilités de relaxation de l'alignement de ¹⁰⁹Cd : elles sont calculées en appliquant la formule (10) et en utilisant les valeurs de $1/T_m^{al}$ et $1/T_Q^{al}$ qui figurent sur les tableaux IV et V. Dans la 2ème colonne du tableau VI, nous avons indiqué les valeurs trouvées expérimentalement pour la relaxation de l'alignement de ¹⁰⁹Cd.

On voit sur ce tableau VI que les probabilités ainsi calculées pour la relaxation de l'alignement de ¹⁰⁹Cd coincident, à quelques pourcent près, avec les résultats des mesures. On peut de même le vérifier sur la figure 14 : on constate que les valeurs calculées pour l'alignement tombent à l'intérieur des barres d'erreurs des valeurs expérimentales correspondantes. Sur cette figure nous avons également tracé, en pointillé, la courbe qu'on obtiendrait pour l'alignement à partir de l'orientation si l'on supposait que l'origine de la relaxation de ¹⁰⁹Cd était uniquement dipolaire magnétique [on aurait alors

	Valeurs calculées	mesurées
θ _c en °C	$\frac{1}{T^{a1}} = \frac{1}{T^{a1}_{m}} + \frac{1}{T^{a1}_{Q}}$	$\frac{1}{T^{al}}$ en s
580	6,66	6,7
690	4,18	4,0
840	2,34	2,3
960	1,59	1,6

TABLEAU VI

simplement, d'après (11) : $T^{a1} = \frac{1}{3}T^{or}$] : on voit que les valeurs expérimentales ne tombent pas sur cette courbe; l'écart est significatif mais peu important.

En conclusion nous obtenons, pour la relaxation de l'alignement de ¹⁰⁹Cd, un très bon accord entre les valeurs expérimentales et calculées. Un tel calcul utilise la décomposition précédente pour la relaxation de l'orientation et de l'alignement en une partie dipolaire magnétique et une partie quadrupolaire électrique, ces deux interactions étant supposées du type "faible" et satisfaisant au critère de 'moyennage par le mouvement". Ce bon accord nous semble confirmer la validité d'une telle décomposition, ainsi que l'hypothèse d'une relaxation de ¹⁰⁹Cd de type quadrupolaire, prépondérante dans toute la gamme de température étudiée.

δ) Présentation des résultats en fonction de la température

On peut essayer de tirer des informations de la variation avec la température θ_c des probabilités de relaxation $1/T_m$ et $1/T_Q$ trouvées précédemment pour ¹⁰⁹Cd. Pour cela, nous présentons les résultats de la figure 16 sous une forme différente : sur la figure 17 nous avons porté le logarithme à base 10 des valeurs trouvées pour $1/T_m^{or}$ et $1/T_Q^{or}$, en fonction du paramètre x = $1000/\theta'_c$ (θ'_c en degrés Kelvin). On constate sur la figure 17 que dans toute la gamme de température étudiée, les points expérimentaux se répartissent sur 2 courbes dont la courbure est si faible qu'on peut les assimiler à des droites. Leurs prolonge-

ments se coupent pour une valeur de x de l'ordre de 0,15 ($\theta_c \approx 6.000^{\circ}$ C) : une telle extrapolation est à coup sûr hasardeuse; elle indique bien cependant que les deux processus de relaxation de ¹⁰⁹Cd (dipolaire et quadrupolaire) deviennent d'un ordre de grandeur comparable à une température très élevée de la cellule et inaccessible à l'expérience. Rappelons que dans le cas du mercure ceci se produit vers 500°C [¹³]. Remarquons enfin que les pentes des deux droites de la figure 17 sont dans un rapport sensiblement égal à 2.

3) Tentative d'interprétation

α) Relaxation quadrupolaire électrique de ¹⁰⁹Cd

On peut chercher à obtenir un ordre de grandeur des paramètres qui interviennent pour cette interaction à l'échelle microscopique. Nous reprenons le modèle théorique élaboré par COHEN-TANNOUDJI dans le cas de ²⁰¹Hg [[¹²]]. Rappelons que celui-ci suppose que l'interaction désorientatrice est "faible" et satisfait au critère de "moyennage par le mouvement", ce qui est bien compatible avec nos résultats expérimentaux, comme nous l'avons vu plus haut. D'après [¹²], on peut écrire la probabilité de la relaxation quadrupolaire sous la forme :

$$\frac{1}{T_Q} = \frac{\tau_S \tau_c}{\tau_v} < \mathcal{H}_Q^2 >$$
(13)

 \odot

 $\tau_{\rm S}$ représente le temps de séjour moyen de l'atome de ¹⁰⁹Cd adsorbé sur la paroi; $\tau_{\rm v}$ est le temps de vol moyen de l'atome d'une paroi à l'autre de la cellule ($\tau_{\rm v} \approx 10^{-4}$ s). La proportion d'atomes présents sur la paroi à un instant donné est égale à $\frac{\tau_{\rm S}}{\tau_{\rm S} + \tau_{\rm v}} \approx \frac{\tau_{\rm S}}{\tau_{\rm v}}$, car $\tau_{\rm S} << \tau_{\rm v}$. La formule (13) suppose que l'interaction quadrupolaire est présente pendant tout le temps $\tau_{\rm S}$ où l'atome est sur la paroi. $\tau_{\rm c}$ est le temps de corrélation de cette perturbation et $< \mathcal{H}_{\rm Q}^2 >$ la valeur quadratique moyenne, pendant le temps $\tau_{\rm S}$, du hamiltonien d'interaction quadrupolaire. D'après [¹²]:

$$\langle \mathcal{H}_{Q}^{2} \rangle = \alpha \, \frac{e^{2} q^{2} Q^{2}}{\hbar^{2}} \tag{14}$$

e représente la charge de l'électron, \hbar la constante de Planck; α est un coefficient numérique, qui diffère selon l'ordre tensoriel de l'observable étudiée; Q est le moment quadrupolaire électrique du noyau de ¹⁰⁹Cd, qui a été déterminé





expérimentalement $[\![^{42}]\!] (Q = 0,78 \text{ barn});$ la valeur moyenne q des gradients de champ électrique au niveau du noyau de cadmium résulte principalement de la polarisation de l'atome de cadmium par la paroi; un ordre de grandeur de q, sans doute surestimé, est donné dans la référence $[\![^{12}]\!] (q = 5,2.10^{13} \text{ c.g.s}) :$ cette valeur correspond au gradient de champ électrique créé par un électron à une distance de 2,65 Å.

Pour déterminer le temps de corrélation τ_c de l'interaction, il faudrait connaître les variations de q au cours du temps, qui sont très compliquées. Du fait de l'agitation thermique, la distance d'approche de l'atome sur la paroi varie; ces fluctuations comprennent des composantes très rapides, les constantes de temps associées étant de l'ordre de la période des vibrations thermiques de la paroi (~ 10^{-12} s) [⁵⁵]; remarquons que les vibrations de l'atome sur la paroi ne modifient pas le sens du gradient de champ, qui garde donc toujours le même signe. On sait de plus [⁵⁵] que le mouvement d'un atome adsorbé sur une surface constitue une migration : l'atome saute dans des "sites" successifs, correspondant à des minimums du potentiel sur la surface dont la profondeur moyenne est E₂; il demeure dans chacun de ces sites un temps moyen τ'_{S} ($\tau'_{S} < \tau_{S}$), pendant lequel les gradients de champ conservent une valeur moyenne non nulle, bien que l'atome soit soumis à l'agitation thermique. Il est clair dans ces conditions que l'interaction quadrupolaire doit avoir plusieurs temps de corrélation : l'un est très court, de l'ordre de la période des vibrations thermiques ($\simeq 10^{-12}$ s); l'autre est de l'ordre de t's; enfin on peut envisager un temps de corrélation encore plus long, de l'ordre de τ_s , car les gradients de champ ont de grandes chances d'avoir une valeur voisine dans les différents sites visités par l'atome, au cours de son adsorption sur la paroi. C'est d'ailleurs le plus long de ces temps de corrélation qui doit dominer la relaxation. Il semble donc raisonnable de prendre $\tau_c = \tau_s$.

On peut se demander comment ces différents paramètres de la relaxation quadrupolaire varient avec la température. τ_v est proportionnel à $\theta'_c^{-1/2}$ $(\theta'_c$: température absolue de la cellule); cette variation de τ_v est lente; on peut aisément en tenir compte, mais elle est très faible devant celle de τ_s , comme nous le verrons plus loin. $< \mathcal{H}_Q^2 >$ est relié à la distance d'approche de l'atome sur la paroi, qui dépend de l'agitation thermique : nous supposerons que les variations de cette distance moyenne sont lentes en fonction de la température et nous négligerons la variation de $< \mathcal{H}_Q^2 >$ avec θ'_c . Enfin, pour τ_s , on

- 43 -
admet en général une formule du type [⁵⁵] :

E_

$$\tau_{\rm S} = \tau_0 e^{\frac{a}{k\theta'c}}$$
(15)

où k est la constante de Boltzmann, θ'_{c} la température absolue de la paroi, E_{a} l'énergie d'adsorption moyenne et τ_{0} une constante dont les estimations varient par des ordres de grandeur ; certains auteurs $[5^{5}]$ supposent que τ_{0} est de l'ordre de la période des vibrations thermiques de la surface ($\simeq 10^{-12}$ s); mais d'autres expériences $[5^{6}]$ semblent indiquer que τ_{0} peut varier considérablement avec le degré d'occupation de la surface, et par suite avec la température. Dans le cas étudié ici, nous ferons l'hypothèse que le degré d'occupation de la surface de silice par les atomes de 10^{9} Cd adsorbés est très faible; nous négligerons donc les variations de τ_{0} avec θ'_{c} . On peut alors écrire l'égalité (13) sous la forme :

$$\log_{10} \left(\frac{1}{T}\right) = A + 2 \times \frac{E_a}{2,3 \ k\theta'_c}$$
(16)

où le facteur 2 résulte de l'hypothèse $\tau_c = \tau_s$ et la quantité A est supposée indépendante de θ'_c .

L'expression (16) permet d'interpréter les résultats expérimentaux de la figure 17, où l'on a porté $\log_{10} \left(\frac{1}{T_Q^{\text{or}}}\right)$ en fonction de x = $10^3/\theta'_c$ pour ¹⁰⁹Cd : de la pente de la droite a, correspondant à la relaxation quadrupolaire, on déduit pour E_a la valeur 0,16 eV ou 3,7 kcal/mole. Cet ordre de grandeur semble raisonnable; de BOER estime que les énergies d'adsorption varient entre 3 et 10 kcal/mole, selon la taille de l'atome (cf. [⁵⁵], p. 35); signalons que LEMEIGNAN avait trouvé [¹³], par la même méthode, E_a = 0,18 eV pour des atomes de mercure adsorbés sur des parois de silice fondue analogues.

De l'ordonnée à l'origine de la droite a dela figure 17 :

$$A = \log_{10} \frac{\alpha \tau_0^2 e^2 q^2 Q^2}{\tau_0 h^2}$$

on tire :

$$\tau_0 q = 4.7.10^3 \text{ c.g.s.}$$

- 44 -

En prenant pour q l'ordre de grandeur donné plus haut (q = 5,2.10¹³ c.g.s), on obtient $\tau_0 = 9.10^{-11}$ s. Ceci conduit pour le temps de séjour à 350°C à une valeur de 10⁻⁹ s. De cette valeur de τ_S , donc de τ_c , on déduit que $< \mathcal{H}_Q^2 > \tau_c^2 \simeq 2.10^{-4}$: ceci est cohérent avec l'hypothèse initiale que l'interaction quadrupolaire désorientatrice est du type "faible" et satisfait au critère de moyennage par le mouvement".

β) <u>Relaxation dipolaire magnétique de ¹¹¹Cd et ¹⁰⁹Cd</u>

On pourrait envisager d'analyser d'une façon analogue les résultats relatifs à l'interaction magnétique désorientatrice de ¹⁰⁹Cd (droite b de la figure 17) et de ¹¹¹Cd. Il semble cependant hasardeux de le faire, à ce stade de nos connaissances.

Une première difficulté est soulevée par le fait qu'on ne sait pas si cette interaction magnétique est ou non totalement du type "faible" dans toute la gamme de température ; nous avons déjà discuté ce point pour ¹¹¹Cd au § A.IV,1, β et pour ¹⁰⁹Cd au § A.IV,2, β . Résumons les conclusions de cette discussion : l'interaction ne peut pas être "forte" pour les deux isotopes à haute température; on peut envisager pour ¹¹¹Cd que la probabilité de désorientation magnétique, sans être très petite pour chaque collision individuelle (collision "faible") n'est cependant pas égale à 1 (collision "forte"); l'interaction magnétique est beaucoup plus nettement "faible" pour ¹⁰⁹Cd que pour ¹¹¹Cd; enfin nous avons interprété de façon satisfaisante nos mesures de temps de relaxation de l'alignement de ¹⁰⁹Cd, en faisant l'hypothèse que les relaxations magnétiques de ¹¹¹Cd et ¹⁰⁹Cd sont "faibles" (ce résultat néanmoins n'est pas très sensible à l'importance relative des interactions magnétique et quadrupolaire pour ¹⁰⁹Cd) : il semble donc qu'il n'est pas déraisonnable de faire l'hypothèse que la relaxation magnétique de ¹⁰⁹Cd est "faible".

Cela ne signifie pas pour autant qu'une formule analogue à (13) lui est applicable. En effet, comme nous l'avons vu au § A.IV,1, β , l'un des mécanismes les plus plausibles qu'on puisse imaginer pour la relaxation magnétique est lié à l'existence de centres paramagnétiques sur la paroi; or, on ne peut guère admettre que la paroi est uniformément recouverte de ces centres; l'atome ne subit donc l'interaction magnétique désorientante que s'il est adsorbé au voisinage d'un tel centre; la formule (13) doit être remplacée par :

$$\frac{1}{T_{\rm m}} = \frac{\tau_{\rm S}}{\tau_{\rm v}} p \tau_{\rm c} < \mathcal{H}_{\rm m}^2 >$$

où τ_c est le temps de corrélation de l'interaction magnétique supposée "faible" et $< \mathcal{H}_m^2 >$ la valeur quadratique moyenne du hamiltonien d'interaction; p représente la fraction de la surface de paroi occupée par les centres paramagnétiques.

Il est vraisemblable que p varie considérablement avec la température θ_c : c'est le cas par exemple pour la concentration des centres paramagnétiques créés par l'irradiation lumineuse; de plus p doit dépendre fortement de l'état d'occupation de la surface, lui-même fonction de θ_c . Enfin, tant qu'il n'est pas possible de préciser plus avant la nature de l'interaction magnétique, il est extrêmement hasardeux d'avancer des hypothèses sur la valeur possible de τ_c et de sa variation éventuelle avec θ_c . En résumé, on possède une mesure de $1/T_m$ pour déterminer la valeur du produit ($\tau_S p \tau_c < \mathcal{H}_m^2 >$); le nombre d'informations dont on dispose est trop faible pour qu'on puisse avancer un ordre de grandeur pour chacun des facteurs de ce produit. Une mesure directe de τ_c par l'étude de la relaxation en champ fort serait à cet égard extrêmement intéressante (*).

Enfin nous faisons une dernière remarque pour conclure cette discussion sur les mécanismes de la relaxation nucléaire de ¹⁰⁹Cd : les temps de relaxation quadrupolaire portés sur la figure 17 (courbe a) ont été déterminés en admettant la pondération entre les interactions magnétique et quadrupolaire résultant de l'hypothèse que les interactions magnétiques de ¹¹¹Cd et ¹⁰⁹Cd sont"faibles". Or nous avons vu que cela n'est pas strictement le cas pour ¹¹¹Cd. Les valeurs des paramètres E_a , τ_0 et τ_S que nous donnons ci-dessus doivent donc être considérées seulement comme de bons ordres de grandeur.

(*) Le rapport des pentes des droites a et b de la figure 17, relatives aux interactions quadrupolaire et dipolaire magnétique pour ¹⁰⁹Cd, est voisin de 2; le même résultat se retrouve d'ailleurs pour ²⁰¹Hg [¹³]. Si l'on fait l'hypothèse, non totalement justifiée, que la formule (13) s'applique à l'interaction magnétique, on est tenté d'empliquer ce résultat en admettant que τ_c est très court (de l'ordre de la période des vibrations thermiques), qu'il dépend peu de θ_c et que l'essentiel des variations de T avec θ_c provient de τ_s . A.V MESURE DU. MOMENT MAGNETIQUE NUCLEAIRE DE ¹⁰⁹Cd

Mesure du rapport des moments magnétiques nucléaires de ¹¹¹Cd et ¹⁰⁹Cd

a) <u>Résultats</u>

A l'aide de la cellule précédente, contenant un mélange de ¹⁰⁹Cd et de ¹¹¹Cd dans des proportions comparables, nous avons effectué une mesure du rapport des fréquences de résonance nucléaire v (¹¹¹Cd) et v (¹⁰⁹Cd) des deux isotopes dans le même champ magnétique [57]. Les deux isotopes sont orientés simultanément par 2 faisceaux de pompage issus de lampes à ¹¹¹Cd émettant la raie λ = 3.261 Å. On détecte l'orientation transversale de ¹¹¹Cd et de ¹⁰⁹Cd en utilisant la modulation de l'effet Faraday d'un faisceau croisé issu d'une lampe à ¹¹⁶Cd (cf.§A,III,3,γ). Ces deux modulations sont observées en appliquant simultanément 2 champs magnétiques oscillants aux deux fréquences v (¹¹¹Cd) et v (¹⁰⁹Cd). Elles sont analysées à l'aide de 2 détections synchrones dont on règle la phase des références de façon à obtenir 2 signaux de dispersion. Le champ magnétique statique Bo étant maintenu constant, on utilise le signal de dispersion relatif à l'un des isotopes comme signal d'erreur pour l'asservissement de Bo. Les fluctuations d'origine magnétique sont ainsi éliminées lors de l'enregistrement du signal de résonance de l'autre isotope, obtenu en balayant la fréquence du second champ de radiofréquence autour de la valeur correspondant à la résonance (le dispositif qui asservit B₀, à mieux que 10⁻⁷, a été mis au point par LEHMANN et BARBE [⁵⁸] pour une mesure analogue sur le couple d'isotopes ¹⁹⁹Hg et ²⁰¹Hg). La méthode précise de dépouillement des enregistrements ainsi obtenus tient compte du fait que les courbes ne sont pas purement de dispersion, le réglage de phase des détections synchrones étant imparfait : le détail des corrections apportées est décrit dans la référence [24], pour une expérience très semblable que nous avons réalisée pour le couple d'isotopes ¹¹¹Cd et ¹¹³Cd [⁵⁹].

La précision de la mesure du rapport des fréquences v (¹¹¹Cd) et v (¹⁰⁹Cd) est limitée par la largeur des signaux enregistrés : environ 3 Hz pour ¹¹¹Cd et 1,5 Hz pour ¹⁰⁹Cd (pour une température de cellule θ_c = 650°C). De plus

la mesure de ν (¹¹¹Cd)/ ν (¹⁰⁹Cd) doit être moins bonne que celle de ν (¹¹¹Cd)/ ν (¹¹³Cd), car le premier rapport est de l'ordre de 3, tandis que le second est de l'ordre de 1 : pour la valeur maximale de B₀ accessible (B₀ \simeq 400 Gs), on a ν (¹¹¹Cd $\simeq \nu$ (¹¹³Cd) \simeq 360 KHz, tandis que ν (¹⁰⁹Cd) \simeq 100 KHz : une même erreur absolue $\Delta\nu$ sur la position ν d'une des résonances correspond à une erreur relative $\Delta\nu/\nu$ 3 fois plus grande dans le cas de ¹⁰⁹Cd que dans celui de ¹¹¹Cd.

La figure 18 représente l'histogramme des 70 mesures de $v(^{111}Cd)/v(^{109}Cd)$ que nous avons effectuées à B₀ = 400 Gs ; on voit que son allure est sensiblement gaussienne.

Pour éliminer la possibilité d'erreurs systématiques, nous avons fait successivement varier les divers paramètres de l'expérience : en particulier, nous nous sommes placés à différentes valeurs du champ magnétique B_0 , pour lesquelles nous avons construit de semblables histogrammes; la précision de la mesure obtenue est, dans ces conditions, moins bonne qu'à 400 Gs, mais nous n'avons pas trouvé de variation significative du rapport des fréquences avec B_0 . De plus, nous avons réalisé alternativement le pompage en σ^+ et en σ^- sans trouver de différence; on élimine ainsi d'éventuels déplacements des fréquences de résonance sous l'effet des transitions virtuelles induites dans la vapeur atomique par les faisceaux lumineux de pompage $[1^{18}]$; de même nous avons contrôlé que l'effet lié aux transitions réelles est négligeable en atténuant l'intensité lumineuse de pompage.

On obtient finalement, en prenant comme erreur 2 fois l'écart standard de la distribution statistique des résultats de la figure 18 :

$$\frac{v(^{111}Cd)}{v(^{109}Cd)} = 3,5929795 \pm 10.10^{-7}$$
(17)

En tenant compte des spins nucléaires, le rapport des moments magnétiques trouvé pour les 2 isotopes dans l'état fondamental est :

$$\frac{\mu(^{111}Cd, 5^{1}S_{0})}{\mu(^{109}Cd, 5^{1}S_{0})} = \frac{1/2}{5/2} \frac{\nu(^{111}Cd)}{\nu(^{109}Cd)}$$
$$= 0,7185959 \pm 2.10^{-7}$$

(18)

- 48 -



La précision relative de ce résultat est meilleure que 3.10⁻⁷.

Cette mesure est en excellent accord avec celle effectuée par McDERMOTT et coll. [⁶⁰], dont on peut déduire :

$$\frac{v(^{111}Cd)}{v(^{109}Cd)} = 3,59296 \pm 4.10^{-5}$$
(19)

mais la précision que nous donnons est 200 fois supérieure.

β) <u>Discussion</u>

On peut remarquer que les moments magnétiques nucléaires dont nous avons mesuré le rapport (cf. (18)) sont ceux de l'état fondamental diamagnétique $(5s^2)^1S_0$ des deux atomes ¹¹¹Cd et ¹⁰⁹Cd. Leur rapport n'est pas strictement égal à celui des moments magnétiques des noyaux "nus" des deux isotopes, soit μ_I (¹¹¹Cd) et μ_I (¹⁰⁹Cd). En effet, pour passer de l'un à l'autre, il faut tenir compte des corrections diamagnétiques σ :

$$\frac{\mu(^{111}Cd, 5^{1}S_{0})}{\mu(^{109}Cd, 5^{1}S_{0})} = \frac{\mu_{I}(^{111}Cd)}{\mu_{I}(^{109}Cd)} \cdot \frac{1 - \sigma(^{111}Cd, 5^{1}S_{0})}{1 - \sigma(^{109}Cd, 5^{1}S_{0})}$$
(20)

Ces corrections diamagnétiques ơ résultent du champ magnétique additionnel B'(O) produit au niveau du noyau par les moments diamagnétiques des électrons atomiques qui sont induits lorsqu'on applique un champ magnétique extérieur B. Une expression de B'(O) a été donnée par LAMB [⁶¹], à la suite d'un calcul classique non relativiste :

$$\frac{B'(0)}{B} = -\frac{e}{3mc^2} v(0) = -\sigma$$
(21)

où e (> 0) et m sont la charge et la masse de l'électron, v(0) le potentiel électrostatique produit au noyau par les électrons. σ est donc une correction positive. En évaluant v(0) sur la base du modèle de THOMAS-FERMI de l'atome, LAMB obtient une expression pour $\sigma [[^{61}]]$:

 $\sigma = 0,319 \times 10^{-4} z^{4/3}$ (22)

• ce qui donne, dans le cas du cadmium (Z = 48) :

$$\sigma = 5,56 \times 10^{-3}$$

v(0) a été recalculé récemment par FEIOCK et coll. [62], en utilisant une théorie relativiste des électrons. Pour Cd⁺⁺, il donne :

$$\sigma = 5,74 \times 10^{-3}$$
 (24)

Comme on sait, en interpolant entre les résultats de DICKINSON [63], que la contribution relative à o des 2 électrons 5s externes doit être très petite (de l'ordre de 3.10⁻³), on peut admettre, avec une précision de l'ordre de 1% [⁶²], que la correction diamagnétique σ pour l'atome neutre de cadmium vaut :

$$\sigma = (5,76 \pm 0,06).10^{-3}$$
(25)

Si l'on suppose que le facteur correctif $(1 - \sigma)$ est le même pour les 2 isotopes ¹¹¹Cd et ¹⁰⁹Cd à la précision de notre mesure (environ 10⁻⁷ en valeur relative) (*), on peut admettre (cf. (20)) que la valeur (18) représente une détermination du rapport des moments magnétiques des noyaux "nus" de ¹¹¹Cd et ¹⁰⁹Cd.

Mesure du rapport des moments magnétiques nucléaires de ¹¹¹Cd et 2) ¹⁹⁹Hg

α) <u>But de la mesure</u>

Dans l'expérience précédente, les moments magnétiques des atomes de ¹⁰⁹Cd et ¹¹¹Cd dans leur état 5¹S₀ n'ont pas été mesurés en valeur absolue; ceci aurait exigé un étalonnage du champ magnétique Bo, ce qui n'est pas réalisable avec une précision très supérieure à 10⁻⁴. Il est possible par contre de

(23)

Cette hypothèse implique donc, compte tenu de (25), que σ varie de moins de 2.10⁻⁵ en valeur relative d'un isotope du cadmium à l'autre. Il serait d'ailleurs intéressant d'évaluer l'ordre de grandeur de cette variation à partir de l'expression (21) de σ .

les comparer au moment magnétique des protons dans l'eau, en remplaçant la cellule par une "sonde à protons". Par exemple, une mesure analogue pour ¹⁹⁹Hg a été effectuée par CAGNAC [[¹¹]], qui a déterminé le rapport $\mu(^{199}$ Hg, $6^1S_0)/\mu_p$ (H₂O). Au liéu de procéder ainsi, nous avons choisi de mesurer plutôt le rapport $\mu(^{111}$ Cd, $5^1S_0)/\mu(^{199}$ Hg, 6^1S_0) avec une grande précision [[³⁰]] et d'utiliser le résultat de CAGNAC pour relier les moments magnétiques nucléaires des isotopes du cadmium à celui du proton.

β) <u>Remplissage de la cellule</u>

Nous avons donc rempli une cellule en silice fondue avec un mélange de ¹⁹⁹Hg et de ¹¹¹Cd [de pureté isotopique égale respectivement à 99,9% et 94%], de façon à produire simultanément la résonance magnétique nucléaire des deux isotopes dans le même champ. Dans cette expérience, le problème délicat est celui du remplissage de cette cellule C₂. Sur 4cm d'épaisseur, une absorption raisonnable de la raie 2.537 Å du mercure serait obtenue avec de la vapeur saturante de mercure seul à une température de queusot de -15°C; pour la raie 3.261 Å du cadmium seul, la température nécessaire est de 200°C. En vue d'obtenir des pressions partielles convenables, nous avons rempli C₂ de 3,5 mg de ¹¹¹Cd et de vapeur sèche de ¹⁹⁹Hg à une pression égale à la tension de vapeur saturante de mercure à -15°C. L'expérience montre que l'alliage ainsi formé a une tension de vapeur de mercure très faible jusque vers 170°C, mais qui est convenable pour le mercure et le cadmium vers 200°C (toutes les expériences ont donc été réalisées par la suite en maintenant le queusot à 200°C).

La préparation de la cellule C_2 se fait en plusieurs temps (voir fig. 19) : on remplit le queusot de C_2 (cubique, 4 cm d'arête) avec les 3,5 mg de ¹¹¹Cd métallique; parallèlement on remplit une autre cellule C_1 (cubique, 2 cm d'arête) de ¹⁹⁹Hg; on plonge le queusot de C_1 dans un bain d'eau et de glace à 0°C. Le corps de C_1 (à 20°C) contient alors de la vapeur saturante de mercure à 0°C. On scelle en S_1 , ce qui isole dans C_1 de la vapeur "sèche" de mercure. On s'assure qu'il en est bien ainsi par étude de la résonance optique. La masse de ¹⁹⁹Hg ainsi isolée dans C_1 est de l'ordre de $1,5.10^{-2}$ µg. C_1 et C_2 sont chacune munies d'un tube (T_1 et T_2) fermé intérieurement par un ergot de verre très mince (E_1 et E_2). Au stade actuel de l'opération, on scelle T_1 à T_2 en enfermant dans le tube T

- 51 -

ainsi formé une masselotte de fer *m*. Par ailleurs, ce tube T est relié au banc de pompage. On vide T en le dégazant soigneusement, puis par action d'un champ magnétique extérieur, on déplace *m* de telle sorte qu'elle brise l'ergot E_2 . On scelle alors en S_2 et l'on brise E_1 de la même façon. La vapeur sèche de mercure remplit ainsi tout le volume formé par C_1 , C_2 et T, et atteint alors une pression égale à celle de la vapeur saturante à -15°C. On scelle enfin en S_3 et la cellule C_2 est prête à fonctionner.

γ) <u>Mesures et résultats</u>

Le principe de l'expérience est le même que pour celle décrite précédemment pour le couple d'isotopes du cadmium. Dans le cas actuel, on opère de la façon suivante (voir fig. 20) : le pompage optique simultané de ¹¹¹Cd et ¹⁰⁹Hg est assuré par deux lampes contenant, l'une du ¹¹¹Cd émettant la raie 3.261 Å, l'autre du ²⁰⁴Hg émettant la raie 2.537 Å. La détection simultanée des deux résonances est obtenue en utilisant la modulation de l'effet Faraday transversal de deux faisceaux croisés, issus l'un d'une lampe à ¹¹⁶Cd (raie 3.261 Å), l'autre d'une lampe à ²⁰²Hg (2.537 Å) [⁴⁴] : ces deux faisceaux détecteurs font entre eux un angle d'une dizaine de degrés (voir figure 20), mais sont tous deux focalisés sur la cellule C₂, polarisés par le même ensemble de polariseur et analyseur, et recueillis par un unique photomultiplicateur, précédé d'un filtre passe bande Wratten qui coupe les longueurs d'onde visibles mais laisse passer à la fois les deux raies ultra-violettes utiles. Les deux modulations ainsi recueillies sont analysées par le même ensemble électronique qu'au paragraphe précédent.

Nous avons alors testé le comportement de cette cellule. Pour former ses parois pour le ¹¹¹Cd, nous lui avons fait subir le traitement thermique décrit par LEHMANN [⁵¹]. Nous avons ainsi obtenu des valeurs reproductibles pour les temps de relaxation nucléaire longitudinale T₁ et transversale T₂ de ¹¹¹Cd; ainsi, pour une température de cellule $\theta_c \simeq 600^{\circ}$ C, nous avons trouvé T₁ \approx 3 s et T₂ \approx 0,3 s : cette valeur de T₁ est comparable aux résultats obtenus par LEHMANN avec des cellules ne contenant que du ¹¹¹Cd [²⁴][⁵¹]; T₂ est en revanche beaucoup plus court. Nous ne savons pas si la présence de mercure est ou non à l'origine de ce raccourcissement de T₂ pour ¹¹¹Cd.

- 52 -



FIGURE 19 : Dispositif utilisé lors du remplissage d'une cellule de résonance contenant de la vapeur sèche de 199 Hg et de la vapeur saturante de 111 Cd.



FIGURE 20 : Schéma de l'expérience ayant permis la mesure très précise du rapport des fréquences de résonance nucléaire de (111 Cd, 5^{1} S₀) et (199 Hg, 6^{1} S₀) dans le même champ B₀.

En ce qui concerne le ¹⁹⁹Hg, la vapeur sèche enfermée dans la cellule se comporte tout à fait comme l'indiquent les résultats de CAGNAC pour une cellule qui n'a pas subi un grand nombre de cycles de température $[1^{11}]$: T₁ dépend beaucoup de la température des parois et s'élève facilement à plus de 100 s; T₂ demeure constant, au voisinage de 4 s.

La précision de la mesure du rapport des moments magnétiques nucléaires de ¹¹¹Cd et ¹⁹⁹Hg est donc en définitive limitée par la largeur du signal de résonance du cadmium (environ 3 Hz) et par son rapport signal sur bruit. Nous avons effectué plus de 150 mesures de la position des résonances des deux isotopes. Nous nous sommes placés à plusieurs valeurs du champ magnétique B₀, mais la plus grande partie des mesures a été prise à 150 Gs. Nous avons de plus fait varier les divers paramètres de l'expérience, tels que température du queusot et des parois de la cellule, polarisation des différents faisceaux lumineux, etc. Le seul déplacement observé est celui de la résonance magnétique de ¹⁹⁹Hg lorsqu'on passe du pompage en σ^+ à celui en σ^- . Ce déplacement, de 7.10⁻⁷ envirron en valeur relative, est dû à l'effet des transitions virtuelles induites dans la vapeur de ¹⁹⁹Hg par le faisceau de pompage issu d'une lampe à ²⁰⁴Hg ^(*). On peut remarquer que l'observation de cet effet montre l'avantage de la technique que nous venons de décrire : elle permet d'asservir B₀ à une résonance magnétique de ¹¹¹Cd, pour observer des effets très petits sur ¹⁹⁹Hg.

Les résultats principaux sont portés sur la figure 21 : les 2 histogrammes représentent l'ensemble des mesures faites à 150 Gs, pour un faisceau de pompage du ¹⁹⁹Hg polarisé en σ^+ et en σ^- ; les points sont pris systématiquement en alternant le sens de cette polarisation, de façon à éliminer les erreurs liées aux variations éventuelles d'intensité du faisceau de pompage, entraînant des variations du déplacement de fréquence.

(*) La lampe à 20 ⁴Hg donne un profil spectral dont le centre coîncide sensiblement avec la composante hyperfine F = 1/2 du niveau ${}^{63}P_1$ de 199 Hg. On peut donc attribuer le très faible déplacement de fréquence observé aux transitions virtuelles que la source de 20 ⁴Hg induit vers la composante hyperfine F = 3/2 de 199 Hg, située à environ 20 largeurs Doppler de F = 1/2. On peut également penser que cet effet provient des isotopes 200 Hg et 202 Hg, présents à l'état de traces dans la lampe à 204 Hg et dont les raies d'émission sont bien moins renversées que celle de 204 Hg.

- 53 -

L'ensemble des résultats des 58 mesures effectuées en σ^+ donne :

$$\frac{\nu(^{111}Cd)}{\nu(^{199}Hg)} = \frac{\mu(^{111}Cd, 5^{1}S_{0})}{\mu(^{199}Hg, 6^{1}S_{0})} = 1,18798535 \pm 6.10^{-8}$$

en prenant pour erreur le double de l'écart standard de la distribution statistique des points.

De même l'ensemble des 45 mesures effectuées en σ donne :

$$\frac{\nu(^{111}Cd)}{\nu(^{199}Hg)} = \frac{\mu(^{111}Cd, 5^{1}S_{0})}{\mu(^{199}Hg, 6^{1}S_{0})} = 1,18798468 \pm 8.10^{-8}$$

avec la même convention pour les erreurs.

Nous admettons donc, pour le résultat final, la moyenne des deux valeurs précédentes, en conservant comme erreur celle de la moins précise des deux séries de mesures. D'où :

$$\frac{\mu({}^{13}Cd, 5{}^{1}S_{0})}{\mu({}^{19}Hg, 6{}^{1}S_{0})} = -1,18798501 \pm 8.10^{-8}$$
(26)

On peut remarquer que nous donnons ici le résultat avec une très grande précision ($\simeq 7.10^{-8}$ en valeur relative), qui nous semble justifiée d'une part par l'allure sensiblement gaussienne des histogrammes (voir fig. 21), d'autre part par l'ensemble des vérifications que nous avons effectuées pour éliminer les erreurs systématiques [Dans la Note aux Comptes Rendus [30] où nous avons publié le résultat de cette mesure, l'erreur que nous donnions était très surestimée; elle est représentée en pointillé en haut de la figure 21 .]. Cette détermination (26) est la première qui résulte d'une mesure directe du rapport des fréquences de résonance nucléaire de 199 Hg et 111 Cd; sa précision est très supérieure à celle des résultats antérieurs.

Notons cependant que le rapport mesuré est celui des moments magnétiques nucléaires des atomes dans leur état fondamental; il diffère nettement du



<u>FIGURE 21</u> : Histogrammes des résultats de la mesure du rapport des fréquences de résonance de (¹¹¹Cd, 5¹S₀) et (¹⁹⁹Hg, 6¹S₀) dans le même champ B₀. Les flèches en trait plein représentent 2 fois l'écart standard de la distribution des résultats.

rapport des moments magnétiques μ_{I} des noyaux "nus" de ¹⁹⁹Hg et ¹¹¹Cd, les corrections diamagnétiques σ n'étant pas les mêmes pour les deux atomes. Des valeurs de σ ont été calculées en [⁶²] à 1% près pour de nombreux éléments; dans le cas du cadmium, nous avons vu en (25) que :

$$\sigma$$
 (Cd) = (5,76 ± 0,06) 10⁻³

de même d'après [62] :

$$\sigma$$
 (Hg) = (1,587 ± 0,016) 10⁻²;

on en déduit que pour les noyaux "nus" :

$$\frac{\mu_{I}({}^{111}Cd)}{\mu_{I}({}^{199}Hg)} = -1,17601 \pm 0,00026$$
(27)

La précision est ici limitée par la connaissance de la correction diamagnétique du mercure, qui est très importante.

δ) Discussion

On peut combiner le précédent résultat (26) à celui de CAGNAC [11] :

$$\frac{\mu(^{199}\text{Hg}, 6^1\text{S}_0)}{\mu_{\rm p}(\text{H}_20)} = 0,1782706 \pm 3.10^{-7}$$
(28)

pour rapporter notre mesure de $\mu(^{111}Cd, 5^1S_0)$ au moment magnétique du proton dans l'eau $\mu_p(H_2O)$. On peut faire de même pour $\mu(^{109}Cd, 5^1S_0)$ en tenant compte de notre résultat (18), ainsi que pour $\mu(^{113}Cd, 5^1S_0)$ en utilisant une mesure antérieure de LEDUC et coll. [⁵⁹] :

$$\frac{\mu(^{113}Cd, 5^{1}S_{0})}{\mu(^{111}Cd, 5^{1}S_{0})} = 1,0460840 \pm 2.10^{-7}$$
(29)

On obtient ainsi pour ces 3 isotopes du cadmium :

$$\frac{\mu(^{111}Cd, 5^{1}S_{0})}{\mu_{p} (H_{2}O)} = -0,2117828 \pm 4.10^{-7}$$

$$\frac{\mu(^{113}Cd, 5^{1}S_{0})}{\mu_{p} (H_{2}O)} = -0,2215426 \pm 4.10^{-7}$$

$$\frac{\mu(^{109}Cd, 5^{1}S_{0})}{\mu_{p} (H_{2}O)} = -0,2947175 \pm 5.10^{-7}$$
(30)

La précision des résultats (30) est de l'ordre de 2.10⁻⁶; elle n'est pas limitée par celle de nos expériences, mais par celle de la mesure (28) de CAGNAC [¹¹]. On a ainsi relié les moments magnétiques nucléaires des atomes de cadmium (et en particulier de ¹⁰⁹Cd) dans leur état fondamental au moment magnétique du proton dans la molécule d'eau.

A partir de ces résultats, on peut chercher à évaluer le rapport des moments magnétiques des noyaux "nus" de cadmium et d'hydrogène; la correction diamagnétique σ (Cd) pour le cadmium est donnée en (25). Pour le proton, cette correction σ_p de blindage par les électrons diffère suivant l'atome (ou la molécule) auquel le proton appartient. Pour l'hydrogène atomique, elle a été calculée avec une grande précision [⁶⁴] :

 $\sigma_{\rm p}({\rm H}) = 17,733 \ 10^{-6}$ (31)

Pour connaître $\sigma_{p}(H_{2}O)$, on peut comparer deux mesures différentes reliant le moment magnétique électronique de l'hydrogène à celui du proton, ce dernier appartenant soit à la molécule d'eau [⁶⁵], soit à l'hydrogène atomique [⁶⁶]. On obtient ainsi [⁶⁶] :

$$\sigma_{n}(H_{2}0) = (25,64 \pm 0,07) \ 10^{-6}$$
(32)

On en déduit que le rapport des moments magnétiques des noyaux "nus" de cadmium et d'hydrogène est donné par :

$$\frac{\mu_{I}^{(Cd)}}{\mu_{p}} = \frac{\mu(Cd, 5^{1}S_{0})}{\mu_{p}^{(H_{2}O)}} \times \frac{1 - \sigma_{p}^{(H_{2}O)}}{1 - \sigma(Cd)}$$
(33)

$$\frac{\mu_{I}^{(Cd)}}{\mu_{p}} = \frac{\mu(Cd, 5^{1}S_{0})}{\mu_{p}^{(H_{2}O)}} [1 + (5,77 \pm 0,06).10^{-3}]$$
(34)

d'où nous tirons, en utilisant les résultats (30) et (34) :

$$\frac{\mu_{I} ({}^{111}Cd)}{\mu_{p}} = -0,213005 \pm 13.10^{-6}$$

$$\frac{\mu_{I} ({}^{113}Cd)}{\mu_{p}} = -0,222821 \pm 14.10^{-6}$$

$$\frac{\mu_{I} ({}^{109}Cd)}{\mu_{p}} = -0,296418 \pm 18.10^{-6}$$
(35)

L'imprécision de ces valeurs provient de la correction diamagnétique $\sigma(Cd)$.

Enfin, à partir des résultats précédents, et en utilisant la valeur mesurée pour le moment magnétique du proton dans l'eau [67] :

$$\mu_{\rm p}({\rm H_2O}) = [2,792709 \pm 17.10^{-6}] \mu_{\rm n}$$
 (36)

(où μ_n est le magnéton nucléaire) on peut en déduire une mesure absolue des moments magnétiques nucléaires des différents isotopes de l'atome de cadmium, ainsi que de leurs noyaux nus :

$$\mu ({}^{111}Cd, 5{}^{1}S_{0}) = -(0,591448 \pm 4.10^{-6}) \mu_{n} \\ \mu ({}^{113}Cd, 5{}^{1}S_{0}) = -(0,618704 \pm 4.10^{-6}) \mu_{n} \\ \mu ({}^{109}Cd, 5{}^{1}S_{0}) = -(0,823060 \pm 5.10^{-6}) \mu_{n} \\ \mu_{I} ({}^{111}Cd) = -(0,59487 \pm 4.10^{-5}) \mu_{n} \\ \mu_{I} ({}^{113}Cd) = -(0,62229 \pm 4.10^{-5}) \mu_{n} \\ \mu_{I} ({}^{109}Cd) = -(0,82783 \pm 5.10^{-5}) \mu_{n} \\ \end{pmatrix}$$
(38)

La précision relative des résultats (37) est de l'ordre de 6.10⁻⁶; elle est limitée surtout par celle de la mesure absolue (36) de $\mu_p(H_20)$. La précision des résultats (38) est nettement moins bonne (6.10⁻⁵); elle provient uniquement de la mauvaise connaissance théorique de la correction diamagnétique du cadmium, qui n'a encore jamais pu être mesurée.

Les valeurs trouvées en (30) sont en bon accord avec celles déterminées antérieurement par McDERMOTT et coll. [⁶⁰], mais leur précision est beaucoup augmentée.

7

ŗ

A. VI OBTENTION D'UNE POLARISATION NUCLEAIRE DE ⁶⁷Zn

Nous avons cherché à étendre au ⁶⁷Zn l'étude précédente réalisée dans le cas de ¹⁰⁹Cd. Ces deux isotopes présentent de grandes ressemblances (état fondamental diamagnétique $(ns^2)^1S_0$, même spin nucléaire I = 5/2, moment quadrupolaire du même ordre de grandeur). Etant donné l'inefficacité de la raie $4^{1}P_{1}-4^{1}S_{0}$ (λ = 2.138 Å) pour obtenir par pompage optique une polarisation nucléaire appréciable de 67 Zn, nous avons tenté d'y parvenir par la raie $4^{3}P_{1}-4^{1}S_{0}$ $(\lambda = 3.076 \text{ Å})$. Cependant, à cause de la très longue durée de vie du niveau $4^{3}P_{1}$ du zinc (3.10⁻⁵ s) [²⁵], la probabilité d'absorption de la raie 3.076 Å par les atomes de la vapeur est très faible; nous avons donc été amenés à faire une étude préalable détaillée de l'intensité des sources lumineuses de zinc pour la raie 3.076 Å, en fonction des différents paramètres qui les caractérisent; nous avons ainsi déterminé leurs meilleures conditions d'émission (cf. § 1). La longue durée de vie de l'état 4³P1 entraîne une autre difficulté expérimentale pour le pompage et la détection par la raie 3.076 Å : les atomes dans l'état 4³P₁ sont particulièrement sensibles aux collisions désorientatrices ou de "quenching" avec toutes les impuretés gazeuses présentes dans la cellule; c'est pourquoi nous avons été conduits à porter une attention particulière à la préparation des cellules de résonance et à leur "dégazage" préalable. Les principaux résultats que nous avons obtenus concernent la création d' "alignement" nucléaire dans l'état 5¹S₀ des atomes de ⁶⁷Zn (cf. § 2).

1) Etude des lampes émettant la raie 3.076 Å du zinc

Pour l'étude systématique des lampes à zinc émettant la raie 3.076 Å, nous avons utilisé un montage analogue à celui de la figure 1. En faisant varier la température θ_Q du queusot de la cellule, nous avons enregistré dans chaque cas la courbe donnant l'intensité de la lumière de fluorescence L_F de la cellule, pour une même température de cellule θ_c (voir fig. 3); la valeur maximale de L_F nous a ainsi servi de repérage de l'intensité émise par la lampe dans la bande spectrale absorbable par les atomes de la vapeur. Nous avons fait varier systématiquement les différents paramètres caractérisant ces sources lumineuses; nous

59 -

donnons ici un résumé des conditions qui produisent la plus forte intensité sur la raie 3.076 Å. Nous avons d'abord étudié l'émission en fonction de l'épaisseur de la lampe. Celle qui donne les meilleurs résultats est un cylindre de silice fondue de 8 cm de longueur d'arête et de 3 cm de diamètre. Elle contient plusieurs milligrammes de zinc et du néon sous une pression de 2,5 torr. Une décharge H.F. est excitée dans le gaz à la fréquence de 2,4 GHz (tous nos essais d'excitation à plus basse fréquence, par exemple vers 150 MHz, nous ont donné des intensités plus faibles). L'onde hyperfréquence est produite par un magnétron de puissance (Varian TV 1022 A), pouvant débiter jusqu'à 1,3 kW ; nous avons choisi pour son point de fonctionnement une tension de 2,3 kV et un courant de 400 mA, pour lequel nous avons construit une alimentation fonctionnant sur le mode de stabilisation en courant. L'onde hyperfréquence est transportée à l'aide de guides d'onde WR 430 jusqu'à la lampe; celle-ci est située au centre d'une cavité cylindrique (de diamètre 8 cm et de longueur 36 cm), ouverte aux deux extrémités et perpendiculaire au grand côté du guide (voir 20 migues 22). La puissance H.F. non absorbée par le plasma de la lampe est éliminée par une charge à eau en bout de guide. Le magnétron est protégé de la puissance réfléchie, en cas de mauvaise adaptation, par une ligne unidirectionnelle de puissance à ferrite (LTT). Pour chauffer le métal de façon à obtenir la tension de vapeur nécessaire, nous utilisons simplement les pertes diélectriques dans le support réfractaire qui maintient la lampe en position au centre de la cavité.

En nous plaçant dans les conditions précédemment décrites, nous avons gagné un facteur de 10 à 20 sur l'intensité des lampes à zinc émettant la raie 3.076 Å, par rapport aux sources couramment utilisées auparavant.

2) Détection de l'alignement et de l'orientation nucléaire

α) Structure isotopique de la raie λ = 3.076 Å

Elle est représentée sur la figure 2**2** [⁴⁹]. La position des trois composantes hyperfines F = 3/2, 5/2 et 7/2 du niveau $4^{3}P_{1}$ de ^{67}Zn a été déterminée par double résonance par BYRON et coll. [38]. Sur la figure 22, on a porté aussi la largeur Doppler Δv_{D} de la raie λ = 3.076 Å à 300°C, qui donne un ordre de grandeur de la largeur spectrale des sources à zinc. Nous avons vu au § A,III,3, α que pour détecter de l'orientation (ou de l'alignement) nucléaire

- 60 -

par absorption d'un faisceau lumineux par la vapeur, celui-ci ne doit pas donner une illumination "en raie large" sur l'ensemble de la structure hyperfine du niveau de résonance. On constate que dans le cas du 67 Zn, Δv_D est du même ordre de grandeur que l'écartement entre les 3 composantes hyperfines du niveau $4{}^{3}P_1$ du 67 Zn; la condition précédente est nettement plus difficile à remplir que dans le cas du 109 Cd pompé par la raie 3.261 Å. Nous avons simplement utilisé des lampes à zinc naturel (qui contient 49% de 64 Zn, 28% de 66 Zn, 5% de 67 Zn et 18% de 68 Zn) : on illumine ainsi plus fortement les composantes hyperfines F = 7/2 et 5/2 que F = 3/2 du niveau $4{}^{3}P_1$ de 67 Zn.

β) Mise en évidence de l'alignement nucléaire longitudinal

Le montage expérimental est celui représenté sur la figure 1, pour lequel les polariseurs et les lames biréfringentes ont été supprimés sur les deux faisceaux de pompage. La détection est effectuée en observant les variations de la polarisation de la lumière de fluorescence L_F émise dans une direction perpendiculaire au champ magnétique \vec{B}_0 . On sait que l'on détecte ainsi des signaux qui dépendent des populations et de l'alignement de l'état excité 4³P₁ (cf. par exemple [⁴⁶], où les formules écrites pour l'absorption d'un faisceau détecteur sont immédiatement transposables à la fluorescence, en remplaçant les observables de l'état fondamental par celles de l'état excité). FAROUX a montré [⁵⁴] comment les observables de l'état excité sont couplées par l'absorption des photons de pompage aux observables de l'état fondamental. Dans cette expérience, on mesure donc la variation de la polarisation de L_R lorsqu'on applique un champ magnétique oscillant à une fréquence correspondant à la résonance nucléaire de ⁶⁷Zn; ces signaux statiques dépendent de l'alignement longitudinal de l'état fondamental 4¹S₀ de ⁶⁷Zn. Comme ils sont très faibles, nous avons utilisé deux méthodes équivalentes pour augmenter leur rapport signal sur bruit, l'une par transitoires, l'autre par enrestrement d'une courbe de résonance.

a) <u>Méthode de transitoires</u>

On observe les transitoires apparues sur L_F lorsqu'on applique des impulsions de radiofréquence à la fréquence de résonance nucléaire de ⁶⁷Zn (cf. [¹¹]). Ce signal est envoyé dans un analyseur multicanaux (Intertechnique SA 40 B) dont le déclenchement est synchronisé sur le début des "pulses", avec une fréquence de répétition de l'ordre de 3 Hz. Après un grand nombre de passages

- 61 -

(~ 1.000), on observe sur l'oscillographe un signal environ 20 fois supérieur au bruit, analogue à celui de la figure 23-a ou 23-b, selon la durée du "pulse". La forme de ces transitoires, qui dépend de l'intensité du champ de radiofréquence, a été décrite par CAGNAC dans le cas de ¹⁹⁹Hg [[¹¹]]. On mesure la constante de temps T de l'exponentielle de pompage, lorsque la radiofréquence est interrompue. T est relié au temps de pompage T_p et au temps de relaxation T_1^{al} de la composante longitudinale de l'alignement par :

$$\frac{1}{T} = \frac{1}{T_1^{a1}} + \frac{1}{T_p}$$

En faisant varier l'intensité de pompage, nous avons mesuré : $T_1^{al} = (35 \pm 5)$ ms et $T_p = (350 \pm 50)$ ms pour l'intensité maximale des faisceaux de pompage.

b) Enregistrement d'une courbe de résonance

L'intensité du champ de radiofréquence étant hachée à une fréquence de 3 Hz, nous avons aussi analysé le signal L_F reçu par le photomultiplicateur à l'aide d'une détection synchrone, dont la référence est synchronisée sur la modulation de la radiofréquence. En balayant B₀ autour de la résonance, nous enregistrons des courbes analogues à celles de la figure 24 (pour laquelle la constante de temps de la détection synchrone est de 3 s). De la largeur de la courbe extrapolée à champ de radiofréquence nul et à intensité de pompage nulle, nous déduisons, avec une mauvaise précision, un temps de relaxation T_2^{al} pour les composantes transversales de l'alignement : $T_2^{al} = (30 \pm 10)$ ms.

c) Evaluation du taux d'alignement nucléaire obtenu

A partir des valeurs trouvées expérimentalement pour T_1^{al} et T_p , on peut chercher à calculer le taux d'alignement nucléaire longitudinal obtenu dans l'état fondamental de ⁶⁷Zn. Soit a_m les populations des 6 sous-niveaux Zeeman de cet état ($\sum_{m=-1}^{I} a_m = 1$). Supposons que le pompage optique est du type "Kastler" (il n'y a pas de dépolarisation par collisions dans l'état excité).

Nous avons vu au § A,VI,2, α qu'avec les lampes utilisées, on illumine plus fortement les composantes hyperfines F = 7/2 et 5/2 que F = 3/2 du niveau 4³P₁ de ⁶⁷Zn. Pour le calcul, nous allons faire successivement deux hypothèses, le cas réel se situant vraisemblablement entre les deux extrêmes :



FIGURE 22 : Structure isotopique de la raie λ = 3.076 Å du zinc. $\Delta v_{\rm D}$ représente la largeur Doppler de la raie



FIGURE 23-b

Signaux transitoires correspondant à l'alignement nucléaire de ⁶⁷Zn dans l'état fondamental FIGURE 24 : Courbe de résonance de l'alignement nucléaire de ^{67}Zn dans l'état fondamental $^{41}S_0$, détectée sur la lumière de fluorescence émise par la cellule. Constante de temps de l'enregistrement : 3 s. 50 Hz i) Supposons que l'illumination est en "raie large" sur l'ensemble de la structure hyperfine du niveau $4^{3}P_{1}$. On peut alors écrire pour les populations a_{m} les équations qui traduisent l'équilibre dynamique entre l'absorption des photons de pompage, l'émission spontanée à partir de l'état excité et la relaxation nucléaire. Si l'on fait l'hypothèse $(T_{1}^{al}/T_{p}) <<1$ (nous avons mesuré : $\frac{T_{1}^{al}}{T_{p}} \simeq 0,1$), on peut résoudre ce système simplement et l'on obtient :

$$\begin{array}{c} a_{5_{2}} = a_{-5_{2}} = \frac{1}{6} \left(1 + 0, 14 \frac{T_{1}^{a1}}{T_{p}}\right) \\ a_{3_{2}} = a_{-3_{2}} = \frac{1}{6} \left(1 - 0, 03 \frac{T_{1}^{a1}}{T_{p}}\right) \\ a_{1_{2}} = a_{-1_{2}} = \frac{1}{6} \left(1 - 0, 11 \frac{T_{1}^{a1}}{T_{p}}\right) \end{array} \right\}$$

$$(39)$$

d'où l'on déduit pour l'alignement longitudinal $< M_z^2 > :$

 $< M_z^2 > = \sum_{m=-1}^{+1} m^2 a_m - \frac{1}{3} I(I+1) = 0,26 \frac{T_1^{a1}}{T_p}$

Pour définir un taux d'alignement, on peut rapporter $\langle M_z^2 \rangle$ à l'alignement maximal $\langle M_z^2 \rangle_0$ qu'on peut atteindre (on l'obtient en faisant $a_{|m|} = \frac{1}{2} \delta_{|m|} \frac{1}{2}$):

$$< M_{z}^{2} >_{0} = \frac{10}{3}$$

d'où l'on déduit :

$$\frac{\langle M_{z}^{2} \rangle}{\langle M_{z}^{2} \rangle_{0}} = 0,078 \frac{T_{1}^{a1}}{T_{p}}$$
(40)

ii) Supposons maintenant que seules les composantes hyperfines F = 7/2 et 5/2 du niveau $4^{3}P_{1}$ sont illuminées. On obtient alors :

$$\frac{\langle M_{z}^{2} \rangle}{\langle M_{z}^{2} \rangle_{0}} = 0,18 \frac{T_{1}^{a1}}{T_{p}}$$
(41)

La situation réelle doit être intermédiaire entre les deux cas envisagés précédemment. En reportant la valeur expérimentale de T_1^{al}/T_p dans (40) et (41) ($(T_1^{al}/T_p) \approx 0,1$), on en déduit que le taux d'alignement longitudinal nucléaire obtenu dans l'état fondamental de ⁶⁷Zn est de l'ordre de 1%.

y) Mise en évidence de l'orientation nucléaire

Enfin, en ajoutant des polariseurs et des lames quart d'onde sur les faisceaux de pompage, nous avons enregistré des signaux liés à l'orientation nucléaire longitudinale de ⁶⁷Zn, avec cependant un moins bon rapport signal sur bruit que dans le cas de l'alignement. La méthode des transitoires nous a permis d'évaluer le temps de relaxation longitudinal de l'orientation T_1^{Or} et le temps de pompage T_p au maximum de l'intensité pompante : $T_1^{Or} = (80 \pm 10)$ ms et $T_p \approx 1$ s. Les ordres de grandeur de ces paramètres sont les mêmes que ceux mesurés par SPENCE et coll. [³¹].

3) Etude de la relaxation nucléaire de ⁶⁷Zn

Nous avons effectué la mesure par transitoires du temps de relaxation T_1^{al} de l'alignement longitudinal nucléaire de 67 Zn (cf. A,VI,2, β ,a). En faisant varier B_0 entre 10 et 400 Gs, nous n'avons pas constaté de modification de T_1^{al} . Si l'on fait, comme pour ¹⁰⁹Cd, l'hypothèse que l'interaction désorientatrice est "faible", ce résultat indique qu'elle satisfait au critère du "rétrécissement extrême", c'est-à-dire que $\omega \tau_c << 1$ où τ_c est le temps de corrélation de l'interaction désorientatrice et ω la fréquence de Larmor nucléaire de l'état fondamental de ⁶⁷Zn; pour B₀ \approx 400 Gs ceci donne : $\tau_c < 10^{-7}$ s. Cette hypothèse semble d'ailleurs confirmée par le fait que nous avons trouvé des valeurs comparables pour les temps de relaxation des composantes transversale et longitudinale de l'alignement. Nous avions déjà obtenu un tel résultat pour la relaxation de ¹⁰⁹Cd; par analogie avec le cas de ¹⁰⁹Cd (I = 5/2), on peut penser que la relaxation de 67 Zn (I = 5/2) est due principalement à une interaction entre le moment quadrupolaire du noyau de ⁶⁷Zn et des gradients de champ électrique apparus lors de la collision de l'atome sur la paroi. Nous avons vu au § A, IV, 2, y que dans ce cas (perturbation d'ordre tensoriel égal à 2, spin nucléaire de 5/2), on a (T^{or}/T^{al}) = 2,6. Le rapport des valeurs expérimentales trouvées pour T^{or} et T^{al}, compte tenu de leurs barres d'erreur, est bien compatible avec cette hypothèse. Nous avons cherché à voir s'il existe dans ce cas aussi une dépendance de ces temps de relaxation en fonction de la température θ_c de la cellule. Or, contrairement à notre attente, nous n'avons pas réussi à mettre en évidence de variation sensible des temps de relaxation dans la gamme de température accessible (400 < θ_c < 950°C). Ce résultat diffère de ce qui est observé dans le cas de ¹⁰⁹Cd (cf. § A,IV,2, α) et de ²⁰¹Hg [¹¹][¹³]. On peut penser que pour le zinc ne se produit pas le processus de "formation" des parois qui intervient, dans le cas du cadmium et du mercure, après plusieurs cycles de chauffage de la cellule en présence de vapeur [⁵¹]. D'ailleurs, comme nous l'avons souligné, ce processus n'est pas compris de façon satisfaisante.

Pour cette étude en température, nous avons de plus été gênés par de légers dégazages des parois, qui apparaissent lorsque θ_c dépasse 650°C dans les cellules scellées, et qui font disparaître les signaux de détection nucléaire par fluorescence. Pour tenter de remédier à cet inconvénient, nous avons cherché à "former" une cellule sur le banc de pompage; pour cela, nous l'avons chauffée à 1.000°C en présence de vapeur de zinc pendant plusieurs jours, puis nous avons évacué les impuretés ainsi dégazées des parois en brisant une queue de cochon qui reliait la cellule au dispositif de pompage. La cellule ainsi préparée n'a cependant présenté aucun allongement des temps de relaxation nucléaire.

Ce comportement de la relaxation de ⁶⁷Zn en fonction de la température différencie très nettement le zinc du cadmium et du mercure. Le fait que les temps de relaxation soient restés très courts à toute température nous a empêchés d'améliorer le rapport signal sur bruit de la résonance nucléaire de ⁶⁷Zn; nous n'avons donc pas pu faire de mesure du moment magnétique nucléaire de ⁶⁷Zn dont la précision soit nettement supérieure à celles des déterminations précédentes [³¹].

Comme nous l'avons annoncé, notre but initial était d'étendre à l'isotope radioactif ⁶⁵Zn la méthode de polarisation nucléaire mise au point pour l'isotope stable ⁶⁷Zn. ⁶⁵Zn et ⁶⁷Zn doivent offrir des conditions très analogues pour le pompage optique : ils ont tous deux même spin nucléaire (I = 5/2) et des moments quadrupolaires comparables [³⁸]. De plus, la période de désintégration du noyau de ⁶⁵Zn est suffisamment longue (245 jours) pour qu'on puisse

- 65 -

envisager de remplir une cellule scellée de ⁶⁵Zn pour effectuer le pompage optique. Nous avons signalé plus haut que nous n'avons pas pu mener à bien cette expérience jusqu'à présent. En effet, la cible de cuivre permettant d'obtenir l'isotope par la réaction ${}^{65}_{29}$ Cu (d, 2n) ${}^{65}_{30}$ Zn a été gravement contaminée lors de son irradiation (vraisemblablement par l'huile des pompes du cyclotron).

Il nous a paru néanmoins intéressant de donner, dans l'appendice a.I, le calcul qui montre qu'un taux d'alignement nucléaire de 1% de ⁶⁵Zn permettrait de détecter aisément l'anisotropie du rayonnement γ de l,115 MeV; celui-ci est émis par l'état excité de ⁶⁵Cu, de 0,4 ps de durée de vie, obtenu après une capture électronique par le noyau de ⁶⁵Zn (voir le schéma de désintégration de ce noyau [⁶⁸] sur la figure 5-b).

B) ORIENTATION NUCLEAIRE DES GAZ RARES

•

DANS UNE DECHARGE

::

B.I INTRODUCTION

Rappel de la méthode du pompage optique des gaz rares dans une décharge

L'état fondamental ¹S₀ des atomes de gaz rare est diamagnétique : il ne possède pas de moment cinétique électronique. Seuls les isotopes impairs, dont le spin nucléaire I n'est pas nul, présentent un paramagnétisme d'origine nucléaire dans l'état fondamental. Comme pour les expériences de pompage optique des isotopes impairs du mercure, du cadmium et du zinc (voir la discussion du § A,II,1) . on pourrait penser à orienter directement l'état fondamental des atomes de gaz rare à l'aide de leur raie de résonance. Cependant, cette raie est située dans l'ultra-violet lointain (sa longueur d'onde croît de 584 Å pour He à 1.295 Å pour Xe) : elle est donc difficilement utilisable pour des raisons expérimentales ^(*). Par contre, les gaz rares possèdent des niveaux métastables, qu'il est beaucoup plus simple d'orienter ; ces niveaux sont reliés aux niveaux atomiques plus excités par des raies spectrales qui appartiennent au domaine visible ou infra-rouge proche; on peut donc penser à les orienter par pompage optique en utilisant ces raies. Il est pour cela nécessaire de peupler ces niveaux métastables en nombre suffisant : on montre qu'on peut y parvenir en entretenant une faible décharge dans le gaz, sous une pression comprise entre quelques dizièmes de torr et quelques torrs. D'une façon générale, dans une telle expérience, le premier rôle de la décharge est de peupler un grand nombre d'espèces différentes (atomes excités, métastables ou radiatifs, ions et électrons libres, molécules ionisées ou non, etc.), elles-mêmes susceptibles d'être orientées optiquement. Aux pressions envisagées ici, la décharge présente en général un caractère isotrope, car les collisions des atomes avec les électrons ont lieu avec une proba-

^(*) Notons toutefois qu'un essai de pompage direct de l'état fondomental des xénons impairs par la raie de résonance ultra-violette a été tenté par R. BRILL au J.I.L.A. (Boulder).

bilité égale dans toutes les directions. (Signalons qu'on peut cependant trouver des régimes de décharge qui permettent d'introduire un peu d'alignement dans les niveaux atomiques excités.).

L'hélium a été le premier gaz rare utilisé pour une expérience de ce type. Il possède deux niveaux métastables appartenant à la configuration (1s, 2s) (voir figure 27) : l'un est un niveau diamagnétique $2^{1}S_{0}$; l'autre correspond à l'état $2^{3}S_{1}$ et présente un paramagnétisme lié au spin des 2 électrons. Les durées de vie radiatives de ces deux types d'atomes métastables (égales respectivement à 2.10^{-2} s pour $2^{1}S_{0}$ [7¹][7²] et 8.10^{3} s pour $2^{3}S_{1}$ [7³][7⁴]) sont longues devant leur temps de diffusion vers les parois de la cellule, où l'on admet généralement qu'ils se détruisent. Dans le cas de ³He (I = 1/2), on pourrait penser à orienter nucléairement par pompage optique le niveau $2^{1}S_{0}$, à l'aide par exemple de la raie $3^{1}P-2^{1}S_{0}$ ($\lambda = 5.017$ Å) (voir figure 27); cependant la structure hyperfine du niveau $3^{1}P$ [7⁵] est très faible devant la largeur naturelle de ce niveau [7⁶]; comme LEHMANN l'a montré [²⁷], et comme nous l'avons vu dans la partie précédente, il n'y a alors aucune chance de parvenir ainsi à une orientation nucléaire dans le niveau métastable $2^{1}S_{0}$ de ³He.

Par contre le niveau métastable $2^{3}S_{1}$ peut être orienté électroniquement par pompage à l'aide de la raie $2^{3}P-2^{3}S_{1}$ ($\lambda = 10.830$ Å). Ceci a été réalisé pour ⁴He par COLEGROVE et coll. [⁷⁷] et pour ³He par WALTERS et coll. [⁷⁸]; dans le cas de ³He (I = 1/2), on crée de cette façon de l'orientation dans les deux sous-niveaux hyperfins F = 3/2 et F' = 1/2 du niveau $2^{3}S_{1}$ (cet atome métastable possède en effet une importante structure hyperfine de 6.740 MHz [⁷⁹]).

En ce qui concerne les gaz rares autres que l'hélium, ils possèdent des niveaux métastables ${}^{3}P_{2}$ appartenant à la configuration np⁵ (n+1)s (n varie entre 2 pour le néon et 5 pour le xénon). On a cru pendant longtemps qu'il serait impossible d'orienter optiquement ces niveaux dans un gaz; on pensait en effet que l'existence d'un moment cinétique orbital non nul pour ces atomes métastables les rendrait très sensibles à la désorientation par collision avec les atomes dans l'état fondamental, comme c'est le cas pour le niveau $6{}^{3}P_{2}$ du mercure par exemple. Cependant SCHEARER a réussi à orienter les niveaux métastables ${}^{3}P_{2}$ des isotopes pairs de Ne, Ar et Xe (ainsi que ceux des isotopes impairs de Xe) [80][81], par pompage optique à l'aide de raies optiques situées dans le rouge pour Nc et

- 68 -









l'infrarouge proche pour Ar et Xe. Cette méthode a depuis été étendue au cas du Kr par GUTNER et coll. [82]. Le succès de ces expériences est lié au fait que les sections efficaces de désorientation de ces niveaux métastables par collisions sont faibles (elles ont d'ailleurs été mesurées par SCHEARER [80]); la raison en est que le moment orbital des niveaux $^{3}P_{2}$ des gaz rares (configuration np 5 ,(n+1)s) provient d'un "trou" dans une couche électronique interne de l'atome; l'électron externe n'a pas de moment orbital et la symétrie sphérique ainsi conférée à l'atome le rend relativement insensible aux collisions désorientatrices avec les autres atomes. Les décharges dans les gaz rares sont donc un moyen très simple d'étendre la méthode du pompage optique à des niveaux métastables.

De plus, un certain nombre d'expériences ont montré qu'un autre phénomène intéressant se produit dans les décharges : les fréquentes collisions qui ont lieu entre espèces atomiques différentes sont susceptibles d'assurer des couplages importants entre les orientations de ces différents atomes. Une des causes essentielles de ces transferts d'orientation est que le spin nucléaire I des atomes n'est pas affecté par les diverses collisions qu'ils subissent dans la décharge. Au cours de celles-ci en effet, les particules interagissent électrostatiquement; ceci ne modifie directement que les observables électroniques orbitales des atomes. Ainsi ce n'est que par l'intermédiaire des couplages hyperfins al.J que le spin nucléaire I serait susceptible d'être éventuellement modifié pendant les collisions; cependant celles-ci ont une durée At beaucoup trop courte ($\simeq 10^{-13}$ s) pour que ces processus aient le temps d'agir efficacement sur Î (on a : a∆t << 1). D'ailleurs un raisonnement analogue peut s'appliquer aussi à la conservation des moments cinétiques électroniques de spin; mais cette règle est moins générale, car les couplages de structure fine A L.S sont en général beaucoup plus importants que les couplages hyperfins (A >> a).

Ce rôle des collisions dans une décharge comme moyen de transférer de l'orientation entre différents niveaux atomiques est bien illustré par l'expérience de COLEGROVE et coll. sur ³He [[⁸³]]. Lorsqu'on oriente le niveau métastable $2^{3}S_{1}$ de ³He, par pompage optique à l'aide de la raie $\lambda = 10.830$ Å (voir figure 27), on produit dans cet état de l'orientation électronique ainsi que de l'orientation nucléaire. Or l'expérience montre que l'on crée simultanément de l'orientation nucléaire dans l'état fondamental $1^{1}S_{0}$ de ³He. Ceci est attribué aux collisions dites "d'échange de métastabilité" entre atomes dans les états $2^{3}S_{1}$ et $1^{1}S_{0}$: en effet, d'après ce que nous avons vu plus haut, celles-ci transfèrent sans modification l'orientation nucléaire d'un atome à l'autre. Il en résulte un fort couplage entre les orientations des atomes de ³He dans l'état fondamental $1^{1}S_{0}$ et métastable $2^{3}S_{1}$; ceci permet ainsi de détecter la résonance nucléaire de l'état fondamental sur l'absorption de la raie $\lambda = 10.830$ Å par les atomes métastables.

On peut citer un autre exemple montrant l'importance des collisions dans la décharge et des transferts d'orientation auxquels elles donnent lieu. Un ensemble d'atomes de ³He étant polarisés nucléairement dans l'état fondamental par la méthode précédemment décrite [⁸³], on montre qu'il apparaît une polarisation lumineuse circulaire pour un certain nombre de raies optiques émises par la décharge [⁸⁴][⁸⁵][⁸⁶]. Ce nouveau procédé, qui permet de créer de l'orientation électronique $\langle \vec{J} \rangle$ dans des états atomiques excités, présente une certaine ressemblance avec la méthode de création d'orientation nucléaire $\langle \vec{I} \rangle$ dans l'état fondamental des atomes diamagnétiques (cf. § A.II,1). Par analogie avec le raisonnement développé dans ce dernier cas par LEHMANN [²⁷], décomposons en quatre étapes le cycle subi par un atome de ³He excité par collision dans une décharge :

- .a) avant collision, l'atome de ³He est dans l'état fondamental et possède une orientation nucléaire moyenne < $\vec{1}$ >;
- .b) il subit une collision avec un électron de la décharge : il est porté dans un état excité. Comme nous l'avons vu plus haut, son spin nucléaire n'est pas affecté. < $\vec{1}$ > reste inchangé.
- .c) dans l'état excité, dont la durée de vie est τ , il est soumis à l'action du couplage hyperfin a \vec{I} . \vec{J} ; celui-ci transforme partiellement l'orientation nucléaire $\langle \vec{I} \rangle$ en orientation électronique $\langle \vec{J} \rangle$, à la condition que at $\gtrsim 1$ (la structure hyperfine du niveau excité doit être grande devant sa largeur naturelle). Les orientations $\langle \vec{I} \rangle$ et $\langle \vec{J} \rangle$ sont ainsi couplées.
- .d) enfin l'atome se désexcite par émission spontanée; la raie lumineuse émise est donc polarisée circulairement.

Il résulte de tout ceci un fort couplage entre l'orientation nucléaire $\langle \vec{I} \rangle$ des atomes de ³He dans l'état fondamental et l'orientation électronique $\langle \vec{J} \rangle$ des niveaux atomiques excités tels que at \gtrsim 1; LALOË a d'ailleurs montré qu'on pouvait utiliser ce fait pour détecter, avec une grande sensibilité,

- 70 -
la résonance magnétique nucléaire de ³He, en observant le changement de la polarisation circulaire de certaines raies émises par la décharge [⁸⁶].

De façon générale, l'application conjuguée du pompage optique et d'une décharge dans une vapeur de gaz rare semble constituer une méthode très prometteuse pour créer et détecter une polarisation dans des espèces atomiques variées. On peut penser ainsi réaliser des mesures de précision de facteurs de Landé, de structures hyperfines, de durées de vie, etc., ainsi que certaines études concernant les mécanismes de collision et de couplage des orientations.

2) Présentation de notre travail

A la suite du travail de LALOË sur les transferts d'orientation dans une décharge de ³He [⁸⁶], nous avons d'abord entrepris une étude à la fois théorique et expérimentale de l'échange de métastabilité dans ce gaz.

Le schéma d'une collision d'échange entre un atome métastable $2^{3}S_{1}$ et un atome dans l'état fondamental $1^{1}S_{0}$ de ³He est bien connu [⁸⁷][⁸⁸][⁸⁹]] : les noyaux des deux atomes échangent leurs atmosphères électroniques au cours de la collision. Il en résulte d'une part que l'atome métastable "sortant" de la collision conserve l'orientation de spin électronique qu'avait le métastable "entrant" dans la collision; d'autre part que les atomes métastable et fondamental échangent leurs orientations nucléaires. C'est à partir de ces deux hypothèses que SCHEARER a écrit les équations d'évolution des populations dans les 2 niveaux hyperfins F = 3/2 et F' = 1/2 du métastable $2^{3}S_{1}$ et dans l'état fondamental de ³He [⁸⁹]; de même PARTRIDGE et coll. ont posé les équations correspondantes pour les matrices densités [⁸⁷]. Pour notre part, nous nous sommes intéressés à l'évolution des observables d'orientation et d'alignement dans ces trois niveaux, pour laquelle nous donnons ci-après une théorie complète (cf. § B.II). Il semble en effet que l'aspect angulaire de cette collision d'échange de métastabilité n'ait pas été traité avec suffisamment de soin dans les publications antérieures.

En ce qui concerne le niveau fondamental l¹S₀ de ³He, DUPONT-ROC a entrepris une étude expérimentale quantitative très précise du déplacement de fréquence et de la largeur de la résonance nucléaire en champ faible, sous l'effet

- 71 -

de la circulation de cohérence entre les niveaux fondamental et métastable triplet $[]^{90}][[^{91}]]$; ses résultats confirment entièrement les prévisions théoriques. Pour notre part, nous avons effectué une vérification expérimentale des résultats du calcul relatifs au niveau métastable; une étude détaillée des formes de courbe de résonance pour les deux sous-niveaux hyperfins F et F' du niveau (³He, 2³S₁) a confirmé pleinement les conclusions théoriques et a fourni une nouvelle détermination précise de la section efficace d'échange de métastabilité dans ³He [[⁹¹]][⁹²]]. Nous décrivons ces résultats au chapitre B.II.

Nous avons alors étendu les calculs précédents au cas des mélanges ³He-⁴He [^{?1}][^{?2}][^{?3}]; en effet, une collision d'échange de métastabilité peut également avoir lieu entre un atome métastable (³He, 2³S₁) et un atome fondamental (⁴He, 1¹S₀) (ou vice-versa); cependant, une telle collision "croisée" entraîne la disparition de l'atome métastable "entrant" dans la collision (l'atome métastable qui en "sort" appartient à l'autre isotope); c'est pourquoi, contrairement au cas de ³He pur, il y a disparition totale de l'orientation du métastable à chacune de ces collisions d'échange entre isotopes différents. Nous avons vérifié expérimentalement la validité des diagrammes que l'on peut ainsi calculer pour la largeur des niveaux métastables de ³He et ⁴He, en fonction de la concentration de chaque isotope dans le mélange. L'accord des résultats théoriques et expérimentaux est très bon. L'étude correspondante est décrite dans le chapitre B.III.

Les diagrammes précédents, donnant les largeurs de courbe de résonance du métastable $2^{3}S_{1}$ de ⁴He dans les mélanges ³He-⁴He, nous ont servi à déterminer les meilleures conditions expérimentales pour une mesure de grande précision du facteur de Landé du métastable $2^{3}S_{1}$ de ⁴He que nous avons faite (chapitre B.IV). En effet, dans une expérience de ce type, il est impossible de déterminer la valeur absolue du champ magnétique B₀ avec une précision suffisante; c'est pourquoi nous avons choisi de mesurer le rapport des facteurs de Landé électronique de (⁴He, $2^{3}S_{1}$) et nucléaire de (³He, $1^{1}S_{0}$) dens un mélange ³He-⁴He. L'intérêt principal d'une telle mesure est que le facteur de Landé g_{J} (⁴He, $2^{3}S_{1}$), lié au spin des deux électrons, est calculable avec une très grande précision ($\simeq 10^{-6}$) par les méthodes de l'électrodynamique quantique. Ce calcul a été effectué par PERL et HUGHES [⁹⁵]; il tient compte de différentes corrections relativistes [⁹⁶][⁶¹], qui s'ajoutent aux corrections radiatives responsables, pour chaque

- 72 -

électron, de son moment magnétique anormal. La précision obtenue pour notre mesure est de l'ordre de 10⁻⁷ ; la valeur trouvée présente un net désaccord (de l'ordre de 10⁻⁶) avec le résultat théorique précédent, ainsi d'ailleurs qu'avec celui d'une mesure antérieure mais moins précise [⁹⁷][⁹⁸] utilisant la méthode des jets atomiques.

A l'aide d'une décharge dans l'hélium, on peut penser à étudier un système quantique encore plus simple que le métastable 2³S₁ : l'ion hélium. Dans un gaz de ³He, on peut en effet supposer que les différentes collisions qui produisent et affectent l'ion ³He⁺ (ionisation d'un atome ³He par collision avec un électron de la décharge, échange de charge entre un atome ³He et un ion ³He⁺, recombinaison de l'ion, etc.) sont susceptibles d'assurer un couplage entre les orientations de l'ion ³He⁺ d'une part et de l'atome ³He d'autre part (dans l'état fondamental ou dans un état excité). Ces hypothèses sont fondées, ici encore, sur l'idée que l'orientation du spin nucléaire n'est pas affectée au cours de ces collisions en phase vapeur. Nous avons donc cherché expérimentalement à produire une orientation des ions ³He⁺ dans une décharge où des atomes de ³He sont orientés nucléairement par pompage optique et à la détecter sur la polarisation circulaire des raies du spectre de l'atome d'hélium neutre, émises par la décharge. Nous avons ainsi mis en évidence, pour des fortes intensités de décharge, une résonance correspondant à un facteur de Landé électronique voisin de 1; nous l'avons attribuée à l'ion ³He⁺ dans le niveau hyperfin F = 1 de son état fondamental $1^{2}S_{1}$ [^{9'9}]. L'identification de cette résonance a été confirmée par l'étude de son découplage hyperfin en champ fort, qui a fourni une valeur de la structure hyperfine du niveau $1^{2}S_{1/2}$ de ³He⁺ en très bon accord avec une détermination antérieure, beaucoup plus précise, par SCHUESSLER et coll. [100]. Nous avons fait une étude de la largeur de cette résonance ionique; elle apparaît comme limitée aux fortes pressions d'hélium par les collisions d'échange de charge entre les ions ³He⁺ et les atomes neutres ³He dans l'état fondamental. Nous en avons déduit une mesure de la section efficace de ces collisions d'échange de charge, pour des ions ³He⁺ d'énergie thermique. Aux faibles pressions d'hélium, la résonance ionique semble élargie par un processus de diffusion ; dans tous les cas, cette largeur est restée trop grande pour permettre, à ce stade, une mesure très précise du facteur de Landé de l'ion (³He⁺, $l^2S_{1/2}$). Cependant, la méthode d'observation des ions ³He⁺ décrite ici est beaucoup plus simple que celle employée dans

- 73 -

dans les expériences antérieures [¹⁰⁰][¹⁰¹] . Les résultats de cette étude, dont beaucoup doivent être considérés comme préliminaires, sont présentés au chapitre B.V.

Enfin, nous avons cherché à étendre aux isotopes impairs d'autres gaz rares la méthode d'orientation nucléaire par l'intermédiaire d'un niveau métastable, développée dans le cas de ³He [⁸³]. Nous l'avons en particulier appliquée au ²¹Ne (I = 3/2), dans un mélange hélium-néon soumis à une faible décharge. Nous avons d'abord orienté par pompage optique les différents niveaux hyperfins du niveau métastable (2p⁵3s)³P₂ de ²¹Ne [¹⁰²]. Puis nous avons observé la résonance nucléaire de l'état fondamental ¹So de ²¹Ne. Nous avons d'abord détecté cette résonance par l'intermédiaire des variations de l'absorption par les atomes métastables (2p⁵3s)³P₀ de ²¹Ne d'un faisceau croisé polarisé circulairement, en utilisant le couplage entre les orientations des niveaux ¹So et ³Po dans la décharge [¹⁰²]. Ceci nous a permis d'entreprendre une étude des mécanismes de création et de destruction, par la décharge, de la polarisation des atomes de²¹Ne dans l'état fondamental. Enfin, comme dans le cas de ³He, nous avons montré que cette orientation nucléaire de ²¹Ne est conservée au cours des collisions avec les électrons qui excitent l'atome; il en résulte une polarisation circulaire des raies lumineuses émises par la décharge, que nous avons pu mettre en évidence expérimentalement [103][104]. Ceci fournit ici encore une méthode commode pour détecter l'orientation nucléaire de l'état fondamental de ²¹Ne. Des expériences analogues sont en projet dans le cas du xénon. La description de nos expériences sur l'orientation nucléaire de ²¹Ne fait l'objet du chapitre B.VI.

3) Description générale du montage expérimental utilisé

Dans toutes les expériences fondées sur le pompage optique de l'hélium dans une décharge, nous avons utilisé un montage expérimental très semblable. Celui-ci est schématisé sur la figure 28. La cellule de résonance C est une sphère de pyrex scellée contenant le gaz à étudier, dans laquelle on entretient une faible décharge à l'aide d'un champ électrique oscillant à la fréquence de 14 MHz. La lampe de pompage L est excitée par H.F. à 2,4 GHz. Elle émet dans la direction Oz un faisceau lumineux, polarisé circulairement à l'aide d'un polariseur linéaire P et d'une lame quart d'onde A. Un filtre coloré

- 74 -



et tombe sur la cellule de résonance C. La détection comporte : une lame quart d'onde FIGURE 28 : Schéma du dispositif expérimental utilisé dans la plupart des expériences de pompage tournante A', un polariseur linéaire P', un filtre F' et un photomultiplicateur P.M. traverse un filtre infra-rouge F, un polariseur linéaire P, une lame quart d'onde Λ optique de l'hélium dans une décharge : un faisceau de pompage issu d'une lampe L

(Wratten 87 C) élimine les raies visibles mais transmet la raie infra-rouge utile au pompage de l'hélium. La détection de la polarisation des raies visibles émises par la décharge s'effectue dans la même direction Oz. Le faisceau détecteur comporte une lame quart d'onde Λ' tournant à une fréquence de l'ordre de 70 Hz, suivie d'un polariseur linéaire P', d'un filtre interférentiel F' (ou d'un filtre coloré) et d'un photomultiplicateur P.M.. Une détection synchrone, dont la référence est synchronisée sur la rotation de Λ' , amplifie les modulations du signal électrique transmis par le photomultiplicateur. On applique un champ magnétique oscillant $\vec{B}_1 \cos \omega$ t perpendiculairement à Oz, et un champ magnétique \vec{B}_0 parallèle à Oz. On enregistre la courbe de résonance étudiée en faisant varier la valeur de B_0 autour de la résonance.

- 75 -

B.II ETUDE DE L'ECHANGE DE METASTABILITE DANS ³He

Dans ce chapitre, nous commençons par donner le schéma de l'aspect angulaire d'une collision d'échange de métastabilité entre deux atomes de ³He, l'un dans l'état fondamental l¹S₀, l'autre dans l'état métastable 2³S₁. Nous rappelons d'abord (§ 1) les équations qui caractérisent l'évolution des matrices densités des deux atomes sous l'effet de la collision. Puis (§ 2), nous écrivons le système d'équations différentielles couplées auxquelles obéissent les orientations $<^{3/2}$ F> et $<^{1/2}$ F> des deux sous-niveaux hyperfins F et F' de l'atome métastable et l'orientation nucléaire $\langle \vec{I} \rangle_{f}$ du niveau fondamental. Nous indiquons (§ 3) comment les résoudre dans un cas correspondant à une expérience de résonance magnétique dans l'un des sous-niveaux F ou F' du métastable ; nous calculons (§ 4) explicitement la forme des deux courbes de résonance, ainsi que le déplacement de leur fréquence centrale sous l'effet de la circulation de cohérence entre les différents niveaux atomiques, créée par les collisions d'échange de métastabilité. Enfin, nous présentons les résultats expérimentaux (§ 5) que nous avons obtenus en enregistrant les résonances dans les niveaux F = 3/2 et F' = 1/2 du métastable $2^{3}S_{1}$ de ³He. Nous effectuons ainsi une vérification détaillée des prévisions théoriques relatives aux formes de courbe de résonance (largeur, intensité, etc.). En particulier, nous en déduisons une nouvelle détermination expérimentale pour la section efficace de l'échange de métastabilité dans ³He.

1) Rappel du schéma de la collision d'échange de métastabilité

Considérons une collision entre un atome de ³He dans l'état fondamental et un atome de ³He dans l'état métastable 2³S₁; il peut en résulter simplement une diffusion élastique des deux atomes l'un par l'autre; mais il peut aussi se produire un transfert résonnant d'excitation : les noyaux des deux atomes entrant en collision échangent leurs atmosphères électroniques. Une telle collision est dite d'échange de métastabilité [⁸⁷][⁸⁸]. Remarquons que si les noyaux des atomes incidents sont identiques et si les états de spin de ces 2 noyaux sont les mêmes, rien ne permet de distinguer une collision d'échange d'une simple diffusion, comme l'ont remarqué KOLKER et coll. [⁸⁸]; en particulier elle ne produit

- 77 -

aucune évolution des observables nucléaires ou électroniques. Donc seules les collisions d'échange entre atomes ayant des états nucléaires différents sont susceptibles de modifier les matrices densités des atomes; comme conséquence de ceci, DUPONT-ROC a montré [¹⁰⁵] qu'on peut alors appliquer la même théorie que si les deux atomes d'hélium n'étaient pas identiques.

Le schéma d'une collision d'échange de métastabilité est résumé sur le tableau VII. Soient $\rho_{\rm f}$ et $\rho_{\rm m}$ les matrices densités des deux atomes de ³He entrant en collision ($\rho_{\rm f}$ pour l'atome dans l'état fondamental, $\rho_{\rm m}$ pour l'atome métastable). On peut déterminer leur évolution sous l'effet de la collision qui échange les atmosphères électroniques des deux noyaux, en faisant deux hypothèses :

- . d'une part, le spin électronique est conservé au cours de la collision. Ceci est lié au caractère électrostatique de l'interaction entre les deux atomes, qui ne peut modifier directement que le moment cinétique électronique d'origine orbitale (il est nul ici). L'atome métastable qui "sort" de la collision a donc la même matrice densité électronique que l'atome métastable qui "entre" dans la collision, soit $Tr_n \rho_m$ (Tr_n est l'opérateur de trace sur les variables nucléaires);
- . d'autre part, le spin nucléaire de chaque atome n'est pas affecté par la collision. En effet, pendant la durée τ_c de cette collision ($\tau_c \approx 10^{-13}$ s), le couplage hyperfin n'a pas le temps de modifier les variables de spin nucléaire d'une façon appréciable (rappelons que la constante de structure hyperfine a du niveau 2³S₁ de ³He est de 6.740 MHz [⁷⁹]; la condition a $\tau_c << 1$ est donc bien vérifiée). Juste après la collision, la matrice densité nucléaire ρ'_f de l'atome dans l'état fondamental diamagnétique est donc égale à la matrice densité nucléaire de l'atome métastable avant collision, soit $\mathrm{Tr}_e \rho_m$ (Tr_e est l'opérateur de trace sur les variables électroniques). De même, la matrice densité nucléaire de l'atome métastable après collision est égale à ρ_f .

Juste après la collision, les électrons et le noyau de l'atome métastable sont incorrélés, car ils proviennent de deux atomes différents. La matrice densité totale ρ'_m est donc simplement égale au produit tensoriel de ρ_f et $Tr_n \rho_m$ (voir tableau VII). ρ'_m possède des cohérences hyperfines entre les deux sous-niveaux F = 3/2 et F' = 1/2 du métastable 2³S₁. Celles-ci évoluent ensuite sous l'effet du

- 78 -

	Atome ³ He dans l'état fon- damental	Atome ³ He dans l'état métastable 2 ³ S ₁
Avant collision	°f	٩ _m
Juste après collision	$\rho'_f = Tr_e \rho_m$	$\rho'_{\rm m} = \rho_{\rm f} \otimes \operatorname{Tr}_{\rm n} \rho_{\rm m}$
Après évolution sous l'effet du couplage hyperfin	ρ" _f = ρ' _f	$\rho''_{m} = \sum_{F} P_{F} \rho'_{m} P_{F}$

TABLEAU VII

Evolution des matrices densités de 2 atomes de ³He sous l'effet d'une collision d'échange de métastabilité. Tr_e et Tr_n désignent les opérations de trace sur les variables électroniques et nucléaires respectivement. P_F est le projecteur sur le niveau hyperfin F. couplage hyperfin dans le niveau $2^{3}S_{1}$.

Soient $1/\tau$ la fréquence de répétition des collisions d'échange pour les atomes métastables et 1/T la fréquence correspondante pour les atomes dans l'état fondamental. Ces deux quantités sont reliées par la relation :

$$\frac{n}{\tau} = \frac{N}{T}$$
(42)

où n et N sont les densités d'atomes dans l'état métastable et fondamental respectivement. Pour les types de décharge H.F. que nous réalisons couramment dans ³He sous une pression de l'ordre du torr, on a les ordres de grandeur suivants :

$$n \simeq 10^{-6}$$
 N, $T \simeq 1$ s et $\tau \simeq 10^{-6}$ s.

Après collision, les cohérences hyperfines du niveau métastable évoluent à une fréquence très grande. La période correspondante est de l'ordre de $\frac{1}{a}$ ($\simeq 3.10^{-11}$ s); elle est beaucoup plus courte que le temps τ ($\simeq 10^{-6}$ s) qui sépare deux collisions d'échange successives pour l'atome métastable; c'est pourquoi, en régime permanent, les cohérences hyperfines entre sous-niveaux F se brouillent et ont une valeur globale nulle. Nous les négligerons donc, et nous ne considèrerons que les projections de la matrice densité ρ'_m sur les deux sous-niveaux F. La matrice densité ρ''_m qui en résulte pour l'atome métastable après collision est donc (voir tableau VII) :

$$\rho''_{m} = \sum_{F} P_{F} \rho'_{m} P_{F} = \sum_{F} P_{F} (\rho_{f} \otimes Tr_{n} \rho_{m}) P_{F}$$
(43)

où P_F est le projecteur sur le sous-niveau hyperfin F.

On obtient ainsi les équations donnant l'évolution sous l'effet des collisions d'échange de métastabilité des matrices densités $\rho_m(\frac{3}{2})$, $\rho_m(\frac{1}{2})$ et ρ_f , associées respectivement aux niveaux hyperfins F = 3/2, F' = 1/2 de l'état métastable et au niveau fondamental :

$$\frac{d}{dt} \rho_{m}(\frac{3}{2}) = -\frac{1}{\tau} \rho_{m}(\frac{3}{2}) + \frac{1}{\tau} P_{3/2} \left[\rho_{f} \otimes Tr_{n} \left(\rho_{m}(\frac{3}{2}) + \rho_{m}(\frac{1}{2}) \right) \right] P_{3/2}$$
(44)

$$\frac{d}{dt} \rho_{m}(\frac{1}{2}) = -\frac{1}{\tau} \rho_{m}(\frac{1}{2}) + \frac{1}{\tau} P_{1/2} \left[\rho_{f} \otimes Tr_{n} \left(\rho_{m}(\frac{3}{2}) + \rho_{m}(\frac{1}{2}) \right) \right] P_{1/2}$$
(45)

$$\frac{d}{dt} \rho_{f} = -\frac{1}{T} \rho_{f} + \frac{1}{T} Tr_{e} \left(\rho_{m}(\frac{3}{2}) + \rho_{m}(\frac{1}{2}) \right)$$
(46)

2) <u>Equations d'évolution des orientations atomiques sous l'effet des</u> collisions d'échange de métastabilité

Dans la suite, nous nous intéresserons uniquement à l'effet des collisions d'échange de métastabilité sur l'évolution des orientations stationnaires $\langle \sqrt[3]{2}\vec{F} \rangle$ et $\langle \sqrt[1]{2}\vec{F} \rangle$ des deux sous-niveaux hyperfins du niveau $2^{3}S_{1}$ et $\langle \vec{I} \rangle_{f}$ de l'état fondamental. Ces trois observables sont définies de la façon suivante :

$$\langle \vec{I} \rangle_{f} = \operatorname{Tr} (\rho_{f} \vec{I})$$

$$\langle \sqrt[3]{2}\vec{F} \rangle = \operatorname{Tr} (\rho_{m}(\frac{3}{2}) \vec{F})$$

$$\langle \sqrt[1]{2}\vec{F} \rangle = \operatorname{Tr} (\rho_{m}(\frac{1}{2}) \vec{F})$$

$$(47)$$

Remarquons qu'il peut également exister de l'alignement dans le niveau F = 3/2. Cependant, on peut montrer $[1^{105}]$ que sa contribution à l'évolution de l'orientation dans les niveaux F et F' est négligeable, à condition qu'on puisse faire l'appreximation des orientations faibles : on calcule en $[1^{105}]$ que les taux d'alignement stationnaire obtenus sont inférieurs à 1%, pour des taux de polarisation nucléaire inférieurs ou égaux à 10% (ce qui est bien le cas dans nos expériences).

A partir des équations (44)(45)(46) pour les matrices densités, on obtient [¹⁰⁵] les équations suivantes, qui décrivent l'évolution des orientations dans les trois niveaux sous l'effet des collisions d'échange de métastabilité :

$$\frac{d}{dt} < {}^{3_{2}}\vec{F} > = \frac{1}{\tau} \left[- < {}^{3_{2}}\vec{F} > + \frac{5}{9} < {}^{3_{2}}\vec{F} > + \frac{10}{9} < {}^{1_{2}}\vec{F} > + \frac{10}{9} < \vec{I} >_{f} \right]$$
(48)

$$\frac{d}{dt} < {}^{1/2}\dot{F} > = \frac{1}{\tau} \left[- < {}^{1/2}\dot{F} > + \frac{2}{9} < {}^{1/2}\dot{F} > + \frac{1}{9} < {}^{3/2}\dot{F} > - \frac{1}{9} < \dot{I} >_{f} \right]$$
(49)

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{dt}} < \vec{1} >_{\mathrm{f}} = \frac{1}{\mathrm{T}} \left[- < \vec{1} >_{\mathrm{f}} + \frac{1}{3} < \sqrt[3]{2}\vec{F} > - \frac{1}{3} < \sqrt[1]{2}\vec{F} > \right]$$
(50)

Dans l'équation (50), on montre aisément que la quantité ($\frac{1}{3} < \sqrt[3]{2} \vec{F} > -\frac{1}{3} < \sqrt[1]{2} \vec{F} >$) correspond à l'orientation nucléaire qui était celle de l'atome métastable "entrant" dans la collision; celle-ci est transférée au niveau fondamental. De même, le terme en - $<\vec{I}>_{\vec{f}}$ au second membre de (50) correspond à l'orientation nucléaire de l'atome dans l'état fondamental "entrant" dans la collision; celle-ci est perdue pour l'atome fondamental "sortant", car elle est transférée à l'atome métastable au cours de la collision.

On peut commenter de même les différents termes au deuxième membre de l'équation (48) : celui en - $\langle {}^{3/2}\vec{F} \rangle$ figurerait seul si l'orientation de l'atome métastable était nulle après chaque collision. Ce n'est cependant pas le cas; le terme $\frac{10}{9} < \vec{I} \rangle_{f}$ décrit le transfert bien connu au métastable d'orientation à partir de l'état fondamental; le terme $\frac{5}{9} < {}^{3/2}\vec{F} \rangle$ traduit le fait qu'une certaine fraction de l'orientation $\langle {}^{3/2}\vec{F} \rangle$ subsiste dans le niveau F = 3/2 du 2³S₁ après la collision d'échange; enfin le terme $\frac{10}{9} < {}^{1/2}\vec{F} \rangle$ rend compte d'un transfert d'orientation du niveau F' = 1/2 au niveau F = 3/2; l'origine de ces deux derniers termes est claire : ils proviennent du transfert direct de l'orientation électronique de l'atome métastable "entrant" dans la collision à celui qui en "sort". On commenterait de même les différents termes de l'équation (49).

<u>Causes d'évolution des orientations autres que l'échange de</u> métastabilité

Dans une expérience de pompage optique, telle que celle décrite par exemple au § B,II,5, les atomes de ³He métastables ou dans l'état fondamental sont soumis à différentes causes d'évolution, en plus des collisions d'échange de métastabilité :

α) <u>le pompage optique du niveau métastable par la raie 10.830 Å</u> (cf. fig. 27). Pour chacun des niveaux hyperfins F, nous admettrons qu'on peut décrire l'effet du pompage par un terme de relaxation optique et un terme source dans la direction Oz :

- 81 -

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t} < \frac{\sqrt[3]{2}}{F} > = -\frac{1}{\tau} < \frac{\sqrt[3]{2}}{P} > +\frac{1}{\tau} \stackrel{\overrightarrow{\Phi}}{p}_{z}$$

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t} < \frac{\sqrt[3]{2}}{F} > = -\frac{1}{\tau'} < \frac{\sqrt[3]{2}}{P} > +\frac{1}{\tau'} \stackrel{\overrightarrow{\Phi}}{p}'_{z}$$

(51)

 τ_p et τ'_p sont de l'ordre de 10⁻⁴ s dans nos expériences.

β) <u>la relaxation</u> de l'orientation liée à d'autres causes que l'échange ou le pompage.

Pour l'atome de ³He dans l'état fondamental, la constante de temps de relaxation T_r de l'orientation nucléaire en présence de décharge a été étudiée par SCHEARER [⁸⁹]; elle résulte de processus très nombreux, tels que la formation de molécules, l'excitation des atomes par la décharge, etc. T_r est de l'ordre de quelques dizaines de secondes dans nos expériences.

Pour le métastable 2³S₁, il est généralement admis que la relaxation de son orientation est liée principalement au "quenching" de l'atome métastable; l'étude faite par BYERLY [[¹⁰⁶]] montre que la destruction du métastable se produit sur les parois de la cellule et sous l'effet des collisions avec les électrons "chauds" aux fortes intensités de décharges. Il en résulte que la relaxation du métastable 2³S₁ de ³He est dominée par une seule constante de temps τ_r , de l'ordre de la milliseconde dans nos expériences.

γ) <u>les champs magnétiques</u>. Dans l'expérience décrite au § B,II,5, on applique un champ magnétique statique \vec{B}_0 parallèlement à Oz. Il en résulte une précession des orientations transversales autour de Oz. Soit ω_f la pulsation de Larmor dans le champ B₀ pour l'orientation nucléaire de ³He : ω_f = $\gamma_f B_0$ ($\gamma_F/2\pi$ = 3,2435 KHz / Gs). Soit ω_m la pulsation de Larmor du métastable 2^3S_1 de "He (sans spin nucléaire) : $\omega_m = g_J(^4\text{He}, 2^3S_1)\mu_B B_0$. (μ_B : magnéton de Bohr). Le facteur de Landé $g_J(^4\text{He}, 2^3S_1)$ du métastable 2^3S_1 de ⁴He est très voisin de celui du spin de l'électron libre. Donc

$$g_{J}(^{4}\text{He}, 2^{3}S_{1}) \frac{\mu_{B}}{2\pi} \simeq \frac{\mu_{B}}{\pi} \simeq 2.8 \text{ MHz} / \text{Gs.}$$

- 82 -

Pour le métastable 2³S₁ de ³He, les pulsations de Larmor des niveaux hyperfins F = 3/2 et F' = 1/2 sont donc respectivement $\frac{2}{3} \omega_m$ et $\frac{4}{3} \omega_m$.

De plus, nous étudions dans la suite une expérience de résonance magnétique dans l'un des sous-niveaux F du métastable 2³S₁. On applique un champ magnétique oscillant \vec{B}_1 cos ω t, parallèlement à Oy (voir figure 28); celui-ci couple les orientations longitudinales et transversales de chaque i niveau. Si l'on pose : $\omega_{lm} = g_J(^4\text{He}, 2^3\text{S}_1) \mu_B B_1$, et $\omega_{lf} = \gamma_f B_1$, avec $F_{\pm} = F_x \pm iF_y$, et $I_{\pm} = I_x \pm iI_y$, on obtient l'évolution des orientations longitudinales et transversales dans les différents niveaux sous l'effet des champs magnétiques :

$$\frac{d}{dt} < {}^{3/2}F_{z} > = -\frac{2}{3} \omega_{1m} \cos \omega t < {}^{3/2}F_{x} >
\frac{d}{dt} < {}^{1/2}F_{z} > = -\frac{4}{3} \omega_{1m} \cos \omega t < {}^{1/2}F_{x} >
\frac{d}{dt} < I_{z} >_{f} = -\omega_{1f} \cos \omega t < I_{x} >_{f}$$
(52)
$$\frac{d}{dt} < {}^{3/2}F_{\pm} > =\pm i \frac{2}{3} \omega_{m} < {}^{3/2}F_{\pm} > +\frac{2}{3} \omega_{1m} \cos \omega t < {}^{3/2}F_{z} >
\frac{d}{dt} < {}^{1/2}F_{\pm} > =\pm i \frac{4}{3} \omega_{m} < {}^{1/2}F_{\pm} > +\frac{4}{3} \omega_{1m} \cos \omega t < {}^{3/2}F_{z} >
\frac{d}{dt} < {}^{1/2}F_{\pm} > =\pm i \frac{4}{3} \omega_{m} < {}^{1/2}F_{\pm} > +\frac{4}{3} \omega_{1m} \cos \omega t < {}^{1/2}F_{z} >
\frac{d}{dt} < {}^{1/2}F_{\pm} > =\pm i \frac{4}{3} \omega_{m} < {}^{1/2}F_{\pm} > +\frac{4}{3} \omega_{1m} \cos \omega t < {}^{1/2}F_{z} >$$
(53)
$$\frac{d}{dt} < {}^{1}E_{\pm} >_{f} =\pm i \omega_{f} < {}^{1}E_{\pm} >_{f} + \omega_{1f} \cos \omega t < {}^{1}E_{z} >_{f}$$

4) Etude théorique de la résonance magnétique dans l'un des sous niveaux F du métastable 2³S₁ de ³He

En faisant intervenir l'échange de métastabilité, ainsi que toutes les autres causes d'évolution évoquées au paragraphe précédent, on obtient, pour les orientations longitudinales et transversales des 3 niveaux (sous-niveaux hyperfins F et F' du 2³S₁ et niveau fondamental de ³He), un système de 9 équations différentielles couplées. Pour le résoudre, on est d'abord conduit à faire un certain nombre d'hypothèses simplificatrices.

- 83 -

a) Approximations

[a] Pour le champ de radiofréquence oscillant $\vec{B}_1 \cos \omega t$, on peut faire l'approximation du champ tournant, qui consiste à négliger l'effet de sa composante antirésonnante (ceci est justifié, car on n'utilise, dans toutes les expériences, que des intensités B₁ faibles, telles que B₁ << B₀). En régime permanent, les deux niveaux hyperfins F du métastable et le niveau fondamental subissent alors une précession forcée de pulsation ω . On peut écrire leurs orientations transversales sous la forme :

> < ${}^{3/2}F_{+} > = {}^{3/2}f_{+} e^{i\omega t}$ < ${}^{1/2}F_{+} > = {}^{1/2}f_{+} e^{i\omega t}$ < ${}^{1/2}I_{+} >_{f} = i_{+f} e^{i\omega t}$

(54)

[b] Approximation séculaire

Supposons que le champ magnétique B_0 soit suffisamment fort pour que les résonances des deux sous-niveaux hyperfins F et F' du métastable 2^3S_1 soient séparées (rappelons que les pulsations de Larmor des niveaux F = 3/2 et F' = 1/2 sont différentes et valent respectivement $\frac{2}{3} \omega_m$ et $\frac{4}{3} \omega_m$). Les largeurs de ces courbes de résonance étant essentiellement dues à l'échange de métastabilité, la condition précédente correspond à l'inégalité :

$$\omega_{\rm m} >> \frac{1}{\tau}$$

Comme T >> T, on a, a fortiori, la condition $\omega_m >> \frac{1}{T}$; la résonance nucléaire de l'état fondamental de ³He est également bien séparée des résonances des 2 niveaux hyperfins du métastable. Les orientations transversales de ces trois niveaux sont donc assez fortement découplées. C'est pourquoi nous supposerons, en première approximation, que l'on peut négliger les couplages entre les orientations transversales de niveaux différents dans leurs équations d'évolution.

[c] Enfin, les temps de relaxation liés à l'échange de métastabilité sont beaucoup plus courts que tous les autres temps de relaxation, aussi bien pour le niveau métastable que pour le niveau fondamental. Nous ne garderons donc dans les calculs que les termes du premier ordre en $\frac{\tau}{\tau_p}$, $\frac{\tau}{\tau'_p}$, $\frac{\tau}{\tau_r}$ et $\frac{T}{T_r}$.

β) Méthode de résolution : forme des courbes de résonance

En faisant les approximations [a] et [b] précédentes, on obtient un système d'équations simplifiées qui donne, en régime permanent, les orientations transversales et longitudinales des trois niveaux étudiés, pour une expérience de résonance magnétique :

$$0 = \left[-\frac{4}{9\tau} - \frac{1}{\tau_{r}} - \frac{1}{\tau_{p}} - i\omega + i\frac{2}{3}\omega_{m} \right]^{\frac{3}{2}}f_{+} + \frac{\omega_{lm}}{3} < \frac{3}{2}F_{z} >$$
(55)

$$0 = \left[-\frac{7}{9\tau} - \frac{1}{\tau_{r}} - \frac{1}{\tau_{p}} - i\omega + i\frac{4}{3}\omega_{m} \right]^{\frac{1}{2}}f_{+} + \frac{2\omega_{1m}}{3} < \frac{1}{2}F_{z} >$$
(56)

$$0 = \left[-\frac{1}{T} - \frac{1}{T_r} - i\omega + i\omega_f \right] i_{+f} + \frac{\omega_{1f}}{2} < I_z >_f$$
(57)

$$0 = \left[-\frac{4}{9\tau} - \frac{1}{\tau_{p}} - \frac{1}{\tau_{r}} \right] < \frac{\sqrt{2}}{r} F_{z} > + \frac{10}{9\tau} < \frac{\sqrt{2}}{r} F_{z} > + \frac{10}{9\tau} < I_{z} > f_{z} + \frac{\Phi}{\tau_{p}} - \frac{\omega_{1m}}{3} \mathcal{R}e^{(\frac{3}{2}f_{+})}$$
(58)

$$0 = \frac{1}{9\tau} < {}^{3/2}F_{z} > + \left[-\frac{7}{9\tau} - \frac{1}{\tau_{p}} - \frac{1}{\tau_{r}} \right] < {}^{1/2}F_{z} > -\frac{1}{9\tau} < I_{z} > + \frac{\Phi'}{\tau_{p}} - \frac{2\omega_{Im}}{3} \mathcal{R}_{e} \left({}^{1/2}f_{+} \right)$$
(59)

$$0 = \frac{1}{3T} < \frac{{}^{3}\!_{2}}{F_{z}} > -\frac{1}{3T} < \frac{{}^{1}\!_{2}}{F_{z}} > + \left[-\frac{1}{T} - \frac{1}{T_{r}} \right] < I_{z} >_{f} - \frac{\omega_{1f}}{2} \mathcal{R}e (i_{+f})$$
(60)

[a] <u>Résonance dans le niveau F = 3/2</u>

Supposons que l'on fasse une résonance Zeeman dans le sous-niveau hyperfin F = 3/2du métastable $2^{3}S_{1}$ de ³He ($\omega \approx \frac{2}{3} \omega_{m}$). Nous allons calculer la valeur de $\langle I_{z} \rangle_{f}$ correspondante, puisque c'est par l'intermédiaire de l'orientation nucléaire longitudinale stationnaire que l'on détecte les résonances dans nos expériences (en observant la polarisation circulaire des raies émises par la décharge). Pour cela, nous calculons d'abord $\langle {}^{3/2}F_{z} \rangle$ et $\langle {}^{1/2}F_{z} \rangle$ en régime permanent. De l'équation (55), on déduit :

$$\mathcal{R}_{e} \left({}^{3}\!\!\!{}^{2}_{f_{+}} \right) = \frac{\omega_{1m}}{3} < {}^{3}\!\!\!{}^{2}_{F_{z}} > \times \frac{\left(\frac{4}{9\tau} + \frac{1}{\tau_{r}} + \frac{1}{\tau_{p}} \right)}{\left(\frac{4}{9\tau} + \frac{1}{\tau_{r}} + \frac{1}{\tau_{p}} \right)^{2} + \left(\omega - \frac{2}{3} \omega_{m} \right)^{2}}$$

(61)

En reportant cette valeur dans l'équation (58), on obtient :

$$0 = -(\frac{4}{9\tau} + \frac{1}{\tau_{r}} + \frac{1}{\tau_{p}})(1 + \alpha) < {}^{3/2}F_{z} > + \frac{10}{9\tau} < {}^{1/2}F_{z} > + \frac{10}{9\tau} < I_{z} > f + \frac{\Phi}{\tau_{p}}$$
(62)

avec :

$$\alpha = \frac{\left(\frac{\omega_{1m}}{3}\right)^{2}}{\left(\frac{4}{9\tau} + \frac{1}{\tau_{r}} + \frac{1}{\tau_{p}}\right)^{2} + \left(\omega - \frac{2}{3}\omega_{m}\right)^{2}}$$
(63)

De plus, si l'on compare les équations (55) et (56) pour $\omega \approx \frac{2}{3} \omega_m$, avec la condition $\omega_m \gg \frac{1}{\tau}$ (approximation [b] du paragraphe précédent), on constate que $\omega_m \mid \frac{1}{2}f_+ \mid$ est de l'ordre de $\frac{1}{\tau} \mid \frac{3}{2}f_+ \mid$; de l'inégalité $\omega_m \gg \frac{1}{\tau}$, on déduit : $\mid \frac{1}{2}f_+ \mid \ll \mid \frac{3}{2}f_+ \mid$. Nous négligerons donc le terme en $\mathcal{R}e(\frac{1}{2}f_+)$ dans l'expression (59). Ces approximations équivalent à considérer qu'il y a de l'orientation transversale uniquement dans le niveau F = 3/2. En utilisant les équations (59) et (62), on est conduit alors à résoudre le système suivant :

$$\begin{pmatrix} (\frac{4}{9} + \frac{\tau}{\tau_{r}} + \frac{\tau}{\tau_{p}}) & (1+\alpha) & -\frac{10}{9} \\ & & \\ & -\frac{1}{9} & \frac{7}{9} + \frac{\tau}{\tau_{r}} + \frac{\tau}{\tau_{p}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \langle 3^{\prime}_{2}F_{z} \rangle \\ & \\ \langle 1^{\prime}_{2}F_{z} \rangle \end{pmatrix} = \langle I_{z} \rangle_{f} \begin{pmatrix} \frac{10}{9} \\ & \\ & \\ -\frac{1}{9} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \frac{\tau}{\tau_{p}} \Phi \\ & \\ \frac{\tau}{\tau_{p}} \Phi^{\prime} \end{pmatrix}$$

$$(64)$$

En ne conservant que les termes du premier ordre en τ/τ_r , τ/τ_p et τ/τ'_p , (approximation [c] du paragraphe précédent), on obtient :

$$< \frac{{}^{3}\!\!\!/_{2}}{F_{z}} > = \frac{\left(\frac{10}{3} + 5\frac{\tau}{\tau_{r}} + 5\frac{\tau}{\tau_{r}}\right) < I_{z} >_{f} + \frac{7}{2}\frac{\tau}{\tau_{p}} \Phi + 5\frac{\tau}{\tau_{p}} \Phi'}{I + 5\frac{\tau}{\tau_{p}}} \Phi' + \frac{11}{2}\frac{\tau}{\tau_{r}} + \frac{7}{2}\frac{\tau}{\tau_{p}} \Phi' + \frac{11}{2}\frac{\tau}{\tau_{r}} + \frac{7}{2}\frac{\tau}{\tau_{p}} + 2\frac{\tau}{\tau_{p}}\right)}{I + \frac{11}{2}\frac{\tau}{\tau_{r}} + \frac{7}{2}\frac{\tau}{\tau_{p}} + 2\frac{\tau}{\tau_{p}} + 2\frac{\tau}{\tau_{p}} + 2\frac{\tau}{\tau_{p}}\right)}$$
(65)

$$< \frac{\gamma_{2}}{F_{z}} > = \frac{\left\{ \frac{\left(\frac{1}{3} - \frac{1}{2}\frac{\tau}{\tau_{r}} - \frac{1}{2}\frac{\tau}{\tau_{r}^{'}}\right) - \alpha\left(\frac{2}{9} + \frac{1}{2}\frac{\tau}{\tau_{r}} + \frac{1}{2}\frac{\tau}{\tau_{p}}\right) \right\} < I_{z} >_{f} + \frac{1}{2}\frac{\tau}{\tau_{p}} + 2\frac{\tau}{\tau_{p}^{'}} + 2\frac{\tau}{\tau_{r}^{'}}(1+\alpha)\Phi'}{1 + \frac{11}{2}\frac{\tau}{\tau_{r}} + \frac{7}{2}\frac{\tau}{\tau_{p}} + 2\frac{-\tau}{\tau_{r}^{'}} + \alpha\left(\frac{14}{9} + \frac{11}{2}\frac{\tau}{\tau_{r}} + \frac{7}{2}\frac{\tau}{\tau_{p}} + 2\frac{\tau}{\tau_{p}^{'}}\right)}$$

$$(66)$$

Si l'on reporte ces valeurs dans l'équation (60), on en déduit < I $_z$, en négligeant les termes en T/T_r d'ordre supérieur à I :

$$< I_{z} >_{f} = \frac{\alpha^{-1} \left(\frac{\tau}{\tau_{p}} \Phi + \frac{\tau}{\tau_{p}'} \Phi'\right) - \frac{2}{3} \frac{\tau}{\tau_{p}'} \Phi'}{\alpha^{-1} \left(\frac{T}{T_{r}} + \frac{11}{3} \frac{\tau}{\tau_{r}} + \frac{7}{2} \frac{\tau}{\tau_{p}} + \frac{1}{6} \frac{\tau}{\tau_{r}'}\right) + \left(\frac{40}{27} + \frac{14}{9} \frac{T}{T_{r}} + \frac{16}{3} \frac{\tau}{\tau_{r}} + \frac{10}{3} \frac{\tau}{\tau_{p}} + 2 \frac{\tau}{\tau_{p}'}\right)}$$
(67)

On pose :

$$\frac{1}{T_1} = \frac{1}{T_r} + \frac{11}{3} \cdot \frac{\tau}{T} \cdot \frac{1}{\tau_r} + \frac{7}{2} \cdot \frac{\tau}{T} \cdot \frac{1}{\tau_p} + \frac{1}{6} \cdot \frac{\tau}{T} \cdot \frac{1}{\tau'_p}$$
(68)

On peut montrer que T₁ représente le temps de "construction" de l'orientation nucléaire quand on pompe optiquement le niveau métastable [105], [107]. En remplaçant α par sa valeur (63), on obtient, après simplification :

$$< I_{z} >_{f} = \frac{T_{1}}{T} \left(\frac{\tau}{\tau_{p}} \phi + \frac{\tau}{\tau_{r}} \phi' \right) \left\{ 1 - \frac{\frac{40}{27} \frac{T_{1}}{T} \left(\frac{\omega_{1m}}{3} \right)^{2}}{\left(\omega - \frac{2}{3} \omega_{m} \right)^{2} + \left(\frac{4}{9\tau} + \frac{1}{\tau_{r}} + \frac{1}{\tau_{p}} \right)^{2} + \frac{40}{27} \frac{T_{1}}{T} \left(\frac{\omega_{1m}}{3} \right)^{2}}{\left(\omega - \frac{2}{3} \omega_{m} \right)^{2} + \left(\frac{4}{9\tau} + \frac{1}{\tau_{r}} + \frac{1}{\tau_{p}} \right)^{2} + \frac{40}{27} \frac{T_{1}}{T} \left(\frac{\omega_{1m}}{3} \right)^{2}}{\left(\omega - \frac{2}{3} \omega_{m} \right)^{2} + \left(\frac{4}{9\tau} + \frac{1}{\tau_{r}} + \frac{1}{\tau_{p}} \right)^{2} + \frac{40}{27} \frac{T_{1}}{T} \left(\frac{\omega_{1m}}{3} \right)^{2}}{\left(\omega - \frac{2}{3} \omega_{m} \right)^{2} + \left(\frac{4}{9\tau} + \frac{1}{\tau_{r}} + \frac{1}{\tau_{p}} \right)^{2} + \frac{40}{27} \frac{T_{1}}{T} \left(\frac{\omega_{1m}}{3} \right)^{2}}{\left(\omega - \frac{2}{3} \omega_{m} \right)^{2} + \left(\frac{4}{9\tau} + \frac{1}{\tau_{r}} + \frac{1}{\tau_{p}} \right)^{2} + \frac{40}{27} \frac{T_{1}}{T} \left(\frac{\omega_{1m}}{3} \right)^{2}}{\left(\omega - \frac{2}{3} \omega_{m} \right)^{2} + \frac{40}{27} \frac{T_{1}}{T} \left(\frac{\omega_{1m}}{3} \right)^{2}}{\left(\omega - \frac{2}{3} \omega_{m} \right)^{2} + \frac{40}{7} \frac{T_{1}}{T} \left(\frac{\omega_{1m}}{3} \right)^{2}}{\left(\omega - \frac{2}{3} \omega_{m} \right)^{2} + \frac{40}{7} \frac{T_{1}}{T} \left(\frac{\omega_{1m}}{3} \right)^{2}}{\left(\omega - \frac{2}{3} \omega_{m} \right)^{2} + \frac{40}{7} \frac{T_{1}}{T} \left(\frac{\omega_{1m}}{3} \right)^{2}}{\left(\omega - \frac{2}{3} \omega_{m} \right)^{2} + \frac{40}{7} \frac{T_{1}}{T} \left(\frac{\omega_{1m}}{3} \right)^{2}}{\left(\omega - \frac{2}{3} \omega_{m} \right)^{2} + \frac{1}{7} \frac{T_{1}}{T} \left(\frac{\omega_{1m}}{3} \right)^{2}}{\left(\omega - \frac{2}{3} \omega_{m} \right)^{2} + \frac{1}{7} \frac{T_{1}}{T} \left(\frac{\omega_{1m}}{3} \right)^{2} + \frac{1}{7} \frac{T_{1}}{T} \left(\frac{\omega_{1m}}{3} \right)^{2}}{\left(\omega - \frac{2}{3} \omega_{m} \right)^{2} + \frac{1}{7} \frac{T_{1}}{T} \left(\frac{\omega_{1m}}{3} \right)^{2} + \frac{T_{1}}{T} \left(\frac{\omega_{1m}}{3} \right)^{2} + \frac{1}{7} \frac{T_{1}}{T} \left(\frac{\omega_{1m}}{3} \right)^{2} + \frac{1}{7} \frac{T_{1}}{T} \left(\frac{\omega_{1m}}{3} \right)^{2} + \frac{T_{1}}{T} \left(\frac{\omega_{1m}}{3} \right)^{2$$

Cette expression donne la forme de la courbe que l'on détecte sur la polarisation des raies émises par la décharge, lorsque l'on balaie le champ magnétique (on fait varier ω_m) autour de la valeur correspondant à la résonance dans le sous-niveau hyperfin F = 3/2 du niveau 2³S₁ ($\omega = \frac{2}{3} \omega_m$). La forme de cette courbe est Lorentzienne. Si $\Delta \omega^{3/2}$ est sa largeur à mi-hauteur, en unités de pulsation :

$$\Delta \omega^{3/2} = 2 \sqrt{\left(\frac{4}{9\tau} + \frac{1}{\tau_{r}} + \frac{1}{\tau_{p}}\right)^{2} + \frac{40}{27} \frac{T_{1}}{T}} \left(\frac{\omega_{1m}}{3}\right)^{2}}$$
(70)

On peut caractériser l'intensité de la résonance par :

$${}^{3_{2}} \mathcal{J}(\omega_{1m}) = \frac{\frac{40}{27} \frac{T_{1}}{T} (\frac{\omega_{1m}}{3})^{2}}{(\frac{4}{9\tau} + \frac{1}{\tau_{r}} + \frac{1}{\tau_{p}})^{2} + \frac{40}{27} \frac{T_{1}}{T} (\frac{\omega_{1m}}{3})^{2}}$$
(71)

Cette quantité est égale à l à saturation ($\omega_{lm} \rightarrow \infty$).

[b] <u>Résonance dans le niveau F' = 1/2</u>

On calcule d'une façon tout à fait analogue la forme de courbe observée sur $< I_z >_f$ et correspondant à une résonance dans le sous-niveau hyperfin F' = 1/2 du métastable 2³S₁ ($\omega \simeq \frac{4}{3} \omega_m$). Il suffit pour cela de résoudre le système :

avec :

$$\beta = 4 \times \frac{(\frac{\omega_{1m}}{3})^{2}}{(\frac{7}{9\tau} + \frac{1}{\tau_{r}} + \frac{1}{\tau_{p}})^{2} + (\omega - \frac{4}{3}\omega_{m})^{2}}$$

En procédant comme précédemment, on obtient pour la résonance dans le niveau F'=1/2 :

$$< \mathbf{I}_{z} >_{f} = \frac{T_{1}}{T} \left(\frac{\tau}{\tau_{p}} \phi + \frac{\tau}{\tau'_{p}} \phi' \right) \left\{ 1 - \frac{\frac{28}{27} \frac{T_{1}}{T} \left(\frac{\omega_{1m}}{3} \right)^{2}}{\left(\omega - \frac{4}{3} \omega_{m} \right)^{2} + \left(\frac{7}{9\tau} + \frac{1}{\tau_{r}} + \frac{1}{\tau'_{p}} \right)^{2} + \frac{28}{27} \frac{T_{1}}{T} \left(\frac{\omega_{1m}}{3} \right)^{2} \right\}$$
(73)

Si $\frac{1}{2} \int (\omega_{lm})$ et $\Delta \omega^{1/2}$ sont respectivement la hauteur et la largeur à mi-hauteur de cette courbe de résonance Lorentzienne :

$$\Delta \omega^{\frac{1}{2}} = 2 \sqrt{\left(\frac{7}{9\tau} + \frac{1}{\tau_{r}} + \frac{1}{\tau_{r}'}\right)^{2} + \frac{28}{27} \frac{T_{1}}{T} \left(\frac{\omega_{1m}}{3}\right)^{2}}$$
(74)

 ${}^{1_{2}}\mathcal{J}(\omega_{1m}) = \frac{\frac{28}{27} \frac{T_{1}}{T} \left(\frac{\omega_{1m}}{3}\right)^{2}}{\left(\frac{7}{9\tau} + \frac{1}{\tau_{r}} + \frac{1}{\tau_{r}^{'}}\right)^{2} + \frac{28}{27} \frac{T_{1}}{T} \left(\frac{\omega_{1m}}{3}\right)^{2}}$ (75)

γ) Discussion des résultats

[<u>a</u>] Soit ${}^{0}\Delta \omega^{\frac{3}{2}}$ la largeur de la courbe de résonance dans le niveau F = 3/2 du métastable, extrapolée à intensité nulle du champ de radiofréquence et exprimée en unités de pulsation. On a :

$${}^{0}\Delta\omega^{3/2} = 2 \left(\frac{4}{9\tau} + \frac{1}{\tau_{r}} + \frac{1}{\tau_{p}} \right)$$
(76)

De même pour le niveau F' = 1/2 :

et

$${}^{0}\Delta\omega^{1/2} = 2 \left(\frac{7}{9\tau} + \frac{1}{\tau_{r}} + \frac{1}{\tau_{p}^{'}} \right)$$
(77)

Dans les conditions correspondant aux expériences décrites plus loin (cf. § B,II,5), τ est de l'ordre de 10⁻⁷ à 10⁻⁶ s, tandis que τ_r , τ_p et τ'_p sont de l'ordre de 10⁻⁴ à 10⁻³ s. Donc dans les expressions (76) et (77), le terme de relaxation prépondérant est celui qui provient de l'échange de métastabilité avec l'état fondamental : soit 4/9T pour le sous-niveau F = 3/2 et 7/9T pour le sous-niveau F' = 1/2 de l'atome métastable.

La signification de ces deux termes est claire lorsqu'on fait l'approximation séculaire du § B,II,4, α , b; nous avons vu que les orientations transversales des différents niveaux peuvent être alors considérées comme découplées par le champ magnétique; si l'on se reporte à l'équation (48), on voit par exemple que < ${}^{3/2}F_x$ > a dans ce cas une probabilité 4/9 τ d'être désorienté; de même, d'après (49), cette probabilité est égale à 7/9 τ pour < ${}^{1/2}F_x$ > : 4/9 τ et 7/9 τ sont donc les inverses des durées de vie des cohérences dans les sous-niveaux F = 3/2 et F' = 1/2 du métastable 2³S₁ sous l'effet des collisions d'échange de métastabilité en champ fort. Les largeurs des résonances, exprimées en unité de pulsation et extrapolées à intensité nulle du champ oscillant, sont donc différentes pour les deux sous-niveaux hyperfins de l'atome métastable. (Remarquons que si l'on n'avait pas tenu compte de la conservation partielle des cohérences dans chaque niveau F lors des collisions d'échange, on aurait trouvé simplement la même largeur 1/ τ pour

ces deux courbes.). Leur rapport vaut :

$$\frac{{}^{0}\Delta\omega^{3/2}}{{}^{0}\Delta\omega^{1/2}} = \frac{\frac{4}{9} + \frac{\tau}{\tau} + \frac{\tau}{\tau}}{\frac{r}{9} + \frac{\tau}{\tau}} \approx \frac{4}{7} \left(1 + \frac{27}{28}\frac{\tau}{\tau} + \frac{9}{4}\frac{\tau}{\tau} - \frac{9}{7}\frac{\tau}{\tau^{1}}\right) \approx \frac{4}{7} = 0,5714$$
(78)

[b] Considérons les élargissements des courbes de résonance en fonction de l'intensité ω_{1m} du champ de radiofréquence pour les deux sous-niveaux hyperfins F de (³He, 2³S₁). Dans les expressions (70) et (74) figure la quantité T₁/T en facteur devant ω_{1m}^2 ; or on a couramment $\frac{T_1}{T} \approx 100$; on en déduit que les courbes sont très rapidement élargies dès qu'on introduit un champ de radiofréquence de faible intensité. De plus, comparons ces élargissements pour les niveaux F = 3/2 et F' = 1/2. D'après (70) et (74), on obtient pour les largeurs en unité de pulsation :

$$\frac{(\Delta\omega^{3/2})^2 - (^0\Delta\omega^{3/2})^2}{(\Delta\omega^{1/2})^2 (^0\Delta\omega^{1/2})^2} = \frac{\frac{40}{27} \frac{T_1}{T} (\frac{\omega_{1m}}{3})^2}{\frac{28}{27} \frac{T_1}{T} (\frac{\omega_{1m}}{3})^2} = \frac{10}{7} = 1,428$$
(79)

[c] Enfin comparons les intensités des résonances dans les deux niveaux F. Elles sont données par les formules (71) et (75). Comme pour les élargissements, la présence du facteur T₁/T entraîne que la saturation des courbes est atteinte pour de faibles valeurs de l'intensité $\omega_{\rm Im}$ du champ de radiofréquence. Sur la figure 29, nous avons porté la variation théorique des intensités des courbes de résonance dans les niveaux F = 3/2 et F' = 1/2 en fonction du paramètre x = $\sqrt{\frac{T_1}{T}}$ ($\frac{\omega_{\rm Im}}{3}$). On constate que la résonance du niveau F = 3/2 apparaît pour des valeurs de $\omega_{\rm Im}$ plus faibles que celle du niveau F' = 1/2; ceci correspond au fait que les deux résonances ont des largeurs différentes (celle du niveau F = 3/2 étant la plus étroite, en unité de pulsation). Pour comparer aisément les résultats théoriques et expérimentaux relatifs aux intensités des courbes, nous avons étudié la quantité :

$$y = \frac{\frac{1}{2} \mathcal{J}(\omega_{1m})}{\frac{3}{2} \mathcal{J}(\omega_{1m}) - \frac{1}{2} \mathcal{J}(\omega_{1m})}$$

(80)



<u>FIGURE 29</u> : Courbes théoriques donnant l'intensité des résonances dans chacun des sous-niveaux hyperfins F et F' du niveau métastable (³He, $2^{3}S_{1}$) en fonction de l'intensité du champ de radiofréquence.

En négligeant les causes de relaxation autres que l'échange de métastabilité, on obtient :

$$y \simeq \frac{8}{27} + \frac{20}{9} \cdot \frac{T_1 \cdot \tau^2}{T} \left(\frac{\omega_{1m}}{3} \right)^2$$
 (81)

y varie linéairement avec le carré de l'intensité ω_{lm} du champ de radiofréquence. Aux très faibles valeurs de ω_{lm} ,

$$^{\circ}y = \frac{8}{27} = 0,2963$$
 (82)

δ) Calcul du déplacement de fréquence des résonances

Les calculs développés au paragraphe précédent donnent la forme de la courbe obtenue lorsqu'on effectue une résonance dans l'un des deux sous-niveaux hyperfins du métastable $2^{3}S_{1}$; nous avons pour cela négligé complètement les couplages entre les orientations transversales des 3 niveaux : sous-niveaux F et F' du $2^{3}S_{1}$ et niveau fondamental de ³He (approximation séculaire du § B,II,4, α ,b). On peut cependant se demander quel est l'ordre de grandeur de la perturbation introduite par la circulation de la cohérence Zeeman entre ces différents niveaux, consécutive à l'échange de métastabilité. On sait en effet qu'une telle circulation de cohérence entre niveaux atomiques de facteurs de Landé différents a pour conséquence de modifier légèrement la fréquence propre de résonance de chacun de ces niveaux. Cette idée a été développée par COHEN-TANNOUDJI [¹⁸], qui l'a mise en évidence dans le cas où la circulation de cohérence entre deux niveaux atomiques est produite par l'absorption réelle de photons optiques par les atomes.

Dans le cas étudié ici, ce sont les collisions d'échange de métastabilité qui assurent ce couplage entre orientations transversales. Rappelons que le déplacement qui en résulte pour la fréquence de résonance nucléaire de l'état fondamental de ³He a été étudié par SCHEARER [¹⁰⁸], DEHMELT [¹⁰⁹], DÖNSZELMANN [¹¹⁰], et récemment par DUPONT-ROC [⁹⁰], qui en a donné une vérification expérimentale quantitative détaillée. Nous nous intéresserons ici au déplacement de fréquence des résonances Zeeman du métastable 2³S₁.

Envisageons d'abord la circulation de la cohérence entre les deux sous-niveaux hyperfins du métastable, sous l'influence de l'échange de métastabilité. On peut prévoir a priori le signe du déplacement de fréquence correspondant. Considérons par exemple un atome dans le niveau dont la fréquence de résonance est la plus faible (sous-niveau F = 3/2); sous l'effet des collisions d'échange de métastabilité, il passe un certain temps dans l'état F' = 1/2, où la précession de son orientation transversale est légèrement accélérée; la fréquence centrale de la résonance du niveau F = 3/2 subit donc un déplacement positif. Par contre, le déplacement correspondant du niveau F' = 1/2 est négatif. Ce résultat est tout à fait l'analogue de celui qu'on obtient en électricité pour les fréquences de résonance de deux circuits oscillants couplés de fréquences propres différentes : le couplage déplace les deux fréquences de résonance en sens opposé.

On peut de plus envisager la circulation de la cohérence entre chaque sous-niveau hyperfin du métastable et le niveau fondamental sous l'effet de l'échange de métastabilité; le déplacement vers les basses fréquences des résonances dans les 2 niveaux F du $2^{3}S_{1}$ est l'aspect complémentaire du déplacement de fréquence du niveau fondamental étudié par DUPONT-ROC [90]. Nous verrons cependant que l'effet des couplages d'orientation entre les 2 niveaux hyperfins du métastable est plus important que celui des couplages avec le niveau fondamental.

Nous reprenons donc brièvement les calculs du paragraphe précédent avec une hypothèse différente : les couplages entre les orientations transversales ${}^{3/2}f_{+}$, ${}^{1/2}f_{+}$ et i_{+f} ne sont plus négligés; les équations (55), (56) et (57) sont ainsi légèrement compliquées et deviennent (en utilisant (48), (49) et (50)) :

$$0 = \left[-\frac{4}{9\tau} - \frac{1}{\tau_{r}} - \frac{1}{\tau_{p}} - i\omega + i\frac{2}{3}\omega_{m} \right]^{3/2}f_{+} + \frac{10}{9\tau}^{1/2}f_{+} + \frac{10}{9\tau}i_{+f} + \frac{\omega_{1m}}{3} < \frac{3}{r_{r}}F_{z} > (55')$$

$$0 = \left[-\frac{7}{9\tau} - \frac{1}{\tau_{r}} - \frac{1}{\tau_{p}'} - i\omega + i\frac{4}{3}\omega_{m} \right]^{\frac{1}{2}}f_{+} + \frac{1}{9\tau}^{\frac{3}{2}}f_{+} - \frac{1}{9\tau}i_{+f} + \frac{2}{3}\omega_{1m} < \frac{1}{2}F_{z} > (56')$$

$$0 = \left[-\frac{1}{T} - \frac{1}{T_{r}} - i\omega + i\omega_{f} \right] i_{+f} + \frac{1}{3T} \int_{-1}^{3/2} f_{+} - \frac{1}{3T} \int_{-1}^{1/2} f_{+} + \frac{\omega_{1f}}{2} < I_{z} >_{f}$$
(57')

[a] Résonance dans le niveau F = 3/2

On a $\omega \simeq \frac{2}{3} \omega_m$ et $\omega_m \tau >> 1$ (cf. § B,II,4, α). L'orientation transversale $\begin{vmatrix} 3/2 \\ f_{\perp} \end{vmatrix}$, au voisinage de la résonance devient très importante devant $| {}^{1}/_{2}f_{+} |$ et $| i_{+f} |$ (ceci apparaît sur les équations précédentes). Les équations (56') et (57') deviennent donc :

$$\sqrt{2} f_{+} \simeq i \frac{\sqrt{2} f_{+}}{6 \omega_{m} \tau} + i \frac{\omega_{lm}}{\omega_{m}} < \sqrt{2} F_{z} >$$

et

$$\mathbf{i}_{+f} \simeq -\mathbf{i} \frac{\gamma_{2}}{2\omega_{m}} - \frac{3}{4}\mathbf{i} \frac{\omega_{1f}}{\omega_{m}} < \mathbf{I}_{z} >_{f}$$

L'équation (55') devient alors, en y remplaçant $\frac{1}{2}f_+$ et i_{+f} par les valeurs précédentes :

$${}^{3/2}f_{+} \simeq \frac{\frac{\omega_{1m}}{3} < {}^{3/2}F_{z} > + i \frac{10}{9\tau} \frac{\omega_{1m}}{\omega_{m}} < {}^{1/2}F_{z} > - i \frac{5}{6\tau} \frac{\omega_{1f}}{\omega_{m}} < I_{z} >_{f}}{\frac{4}{9\tau} + \frac{1}{\tau_{r}} + \frac{1}{\tau_{p}} + i \left[\omega - \frac{2}{3} \omega_{m} - \frac{5}{27\omega_{m}\tau^{2}} + \frac{5}{9\omega_{m}\tau^{T}}\right]}$$
(83)

On peut remarquer que les inégalités $\omega_m \tau >> 1$ et $\omega_{lf} << \omega_{lm}$ entraînent que les termes en $< \frac{1}{2}F_z >$ et $< I_z >_f$ sont négligeables devant celui en $< \frac{3}{2}F_z >$ dans l'équation (83). Celle-ci se simplifie donc et on obtient l'équation (84), qui est l'analogue de l'équation (61) du paragraphe précédent :

$$\mathcal{R}_{e} \left({}^{3/2}f_{+} \right) \simeq \frac{\omega_{1m}}{3} < {}^{3/2}F_{z} > \frac{\frac{4}{9\tau} + \frac{1}{\tau_{r}} + \frac{1}{\tau_{p}}}{\left[\frac{4}{9\tau} + \frac{1}{\tau_{r}} + \frac{1}{\tau_{p}} \right]^{2} + \left[\omega - \frac{2}{3} \omega_{m} - \frac{5}{27\omega_{m}\tau^{2}} + \frac{5}{9\omega_{m}\tau^{T}} \right]^{2}}$$
(84)

La méthode de calcul de la valeur stationnaire $\langle I_z \rangle_f$ de l'orientation nucléaire est alors exactement la même que celle du § B,II,4, β . Il suffit de remplacer $(\omega - \frac{2}{3}\omega_m)^2$ par $(\omega - \frac{2}{3}\omega_m - \delta\omega^{3/2})$ dans l'expression (63) de α , puis dans la formule finale (69) qui donne la valeur de $\langle I_z \rangle_f$. D'après (84), on a :

$$\delta \omega^{3/2} \simeq + \frac{5}{27} \frac{1}{\omega_{\rm m} \tau^2} - \frac{5}{9} \cdot \frac{1}{\omega_{\rm m} \tau' \Gamma}$$
 (85)

Le déplacement de la fréquence de résonance du niveau hyperfin F = 3/2 du métastable sous l'effet de l'échange comprend deux termes : le premier $(+\frac{5}{27}\frac{1}{\omega_m \tau^2})$ est lié à la circulation de la cohérence avec l'autre niveau hyperfin F' = 1/2 du métastable; le second $(-\frac{5}{9}\frac{1}{\omega_m \tau T})$ traduit le même effet avec le niveau fondamental. Mais on peut remarquer que les temps d'échange vus du niveau métastable et du niveau fondamental sont très différents : $\frac{\tau}{T} = \frac{n}{N} \simeq 10^{-6}$; l'effet du couplage avec l'état fondamental est donc négligeable et l'on obtient :

$$\delta \omega^{3/2} \simeq + \frac{5}{27} \frac{1}{\omega_{\rm m} \tau^2}$$
 (86)

On trouve bien pour $\delta \omega^{\frac{3}{2}}$ le signe positif que nous avions prévu a priori; la résonance dans le sous-niveau hyperfin F = 3/2 du métastable 2³S₁ de ³He est donc déplacée vers les fréquences élevées d'une quantité $\delta \omega^{\frac{3}{2}}$ (en unité de pulsation) sous l'effet des collisions d'échange de métastabilité.

[b] <u>Résonance dans le niveau F' = 1/2</u>

On calcule d'une façon tout à fait analogue le déplacement de la fréquence de résonance du sous-niveau F' = 1/2. Pour cela, si $\omega \simeq \frac{4}{3} \omega_{\rm m}$, on tire de l'équation (55') :

$${}^{3/2}f_{+} \simeq -i \times \frac{5}{3} \frac{{}^{72}f_{+}}{\omega_{m}\tau}$$
 (87)

En négligeant a priori le couplage avec l'état fondamental et en utilisant l'équation (56'), il vient :

$$\mathcal{R}_{e} \left({}^{1/2}f_{+} \right) \simeq 2 \frac{\omega_{1m}}{3} < {}^{1/2}F_{z} > \times \frac{\left[\frac{7}{9\tau} + \frac{1}{\tau_{r}} + \frac{1}{\tau_{p}} \right]}{\left[\frac{7}{9\tau} + \frac{1}{\tau_{r}} + \frac{1}{\tau_{p}} \right]^{2} + \left[\omega - \frac{4}{3} \omega_{m} + \frac{5}{27} \frac{1}{\omega_{m} \tau^{2}} \right]^{2}}$$
(88)

Le calcul de l'orientation nucléaire stationnaire < I $_{z}$ s'effectue comme au paragraphe précédent, en remplaçant ($\omega - \frac{4}{3}\omega_{m}$)² par ($\omega - \frac{4}{3}\omega_{m} - \delta\omega^{\frac{1}{2}}$)² avec :

$$\delta \omega^{\frac{1}{2}} \simeq -\frac{5}{27} \frac{1}{\omega_{\rm m} \tau^2}$$
 (89)

On constate ainsi que la résonance du sous-niveau hyperfin F' = 1/2 de l'atome métastable est déplacée de la quantité $\delta \omega^{\frac{1}{2}}$ vers les basses fréquences. Les déplacements $\delta \omega^{\frac{1}{2}}$ et $\delta \omega^{\frac{3}{2}}$ des deux niveaux hyperfins sont égaux en module (en unités de pulsation) et de signe opposé.

[c] Discussion

On peut chercher à comparer les déplacements de fréquence $\delta \omega^{\frac{3}{2}}$ et $\delta \omega^{\frac{1}{2}}$ aux largeurs $\delta \omega^{\frac{3}{2}}$ et $\delta \omega^{\frac{1}{2}}$ des courbes de résonance des deux sous-niveaux hyperfins. D'après (76), (77), (86) et (89), en négligeant les causes de relaxation autres que l'échange de métastabilité :

$$\frac{\delta \omega^{3/2}}{\omega_{\Delta \omega}^{3/2}} \simeq \frac{5}{24\omega_{\rm m}\tau}$$

et

$$\frac{\delta \omega^{1/2}}{\sigma_{\Lambda \omega}^{1/2}} \simeq \frac{5}{42\omega_{\rm m}\tau}$$

(90)

(91)

Si l'on se place dans un champ magnétique statique B₀ suffisamment fort pour que les résonances des deux niveaux F et F' soient bien séparées (ceci correspond à l'approximation [b] du § B,II,4, α , grâce à laquelle nous avons mené le calcul jusqu'au bout), on a l'inégalité : $\omega_{m} \tau >> 1$; ainsi, pour B₀ \approx 10 Gauss et une pression d'hélium de 1 torr (ces ordres de grandeur correspondent aux expériences décrites plus loin), $\omega_{m} \approx 30$ MHz, $\tau \approx 2.10^{-7}$ s et $\omega_{\tau} \tau \approx 400$; ceci entraîne $\delta \omega^{3/2} / 0 \Delta \omega^{3/2} \approx 5.10^{-4}$ et $\delta \omega^{1/2} / \Delta \omega^{3/2} \approx 3.10^{-4}$. Par conséquent, les déplacements de fréquence des résonances des deux sous-niveaux hyperfins du métastable 2³S₁ sont très inférieurs aux largeurs de ces résonances. C'est pourquoi, dans la vérification expérimentale que nous avons faite de la théorie de l'échange de métastabilité appliquée à la résonance magnétique du niveau métastable 2³S₁ de ³He, nous nous sommes bornés à une étude des largeurs de courbe. Nous n'avons pas pu observer ces très petits déplacements de la fréquence centrale des résonances.

5) Vérification expérimentale

Nous avons cherché à vérifier en détail par l'expérience tous les résultats du paragraphe 4 concernant l'effet des collisions d'échange de métastabilité dans ³He sur les largeurs des courbes de résonance des deux sous-niveaux hyperfins F = 3/2 et F' = 1/2 du niveau métastable $2^{3}S_{1}$. Pour cela, nous avons étudié de nombreuses cellules contenant de l'hélium 3 (pureté 99,6 %), sous des pressions variant entre 0,1 et 3 torr. Le montage expérimental est décrit au § B,I,3. La détection des résonances dans les niveaux F et F' s'effectue en observant la polarisation circulaire de l'ensemble des raies $3^{1}D-2^{1}P$ (λ = 6.678 Å) et $3^{3}D-2^{3}P$ (λ = 5.876 Å); un filtre coloré (Kodak Wratten 22) est interposé devant le photomultiplicateur sur le faisceau détecteur. La valeur de la fréquence de résonance ω_m est choisie assez grande pour que les résonances des niveaux F = 3/2 et F' = 1/2 soient très bien séparées [ceci correspond à l'approximation b que nous avons faite au § B,II,4, α]. Cependant le champ magnétique statique B₀ ne doit pas avoir une valeur trop élevée, de façon que le découplage hyperfin dans le sous-niveau F = 3/2 n'introduise pas un important élargissement de la résonance correspondante. Pour la plupart des cellules que nous avons étudiées, nous avons choisi une fréquence de 23 MHz pour le champ oscillant; les résonances des niveaux F = 3/2 et F' = 1/2 apparaissent ainsi pour des valeurs de Bo de 12,3 Gs et 6,1 Gs respectivement. (Rappelons que le facteur de Landé du niveau F = 3/2 vaut 4/3, celui du niveau F' = 1/2, 8/3.). Les largeurs des courbes de résonance que nous mesurons directement, soit $\Delta B^{\frac{3}{2}}$ et $\Delta B^{\frac{1}{2}}$, sont exprimées en unités de champ magnétique : $\Delta \omega^{\frac{3}{2}} = \frac{4}{3} \mu_B \Delta B^{\frac{3}{2}}$ et $\Delta \omega^{\frac{1}{2}} = \frac{8}{3} \mu_B \Delta B^{\frac{1}{2}}$. Nous présentons d'abord l'ensemble des résultats obtenus avec une cellule contenant 1,45 torr de ³He. Puis nous étudions plus spécialement les largeurs des deux courbes de résonance, extrapolées à intensité nulle du champ de radiofréquence, en fonction de la pression de ³He; nous en déduisons une nouvelle valeur pour la section efficace de l'échange de métastabilité dans ³He.

α) <u>Résultats expérimentaux pour les résonances magnétiques du méta-</u> stable 2³S₁ de ³He à 1,45 torr

Sur la figure 30, nous avons porté en ordonnées le carré des largeurs ΔB (en Gauss) mesurées pour les résonances dans les deux sous-niveaux hyperfins F = 3/2 et F' = 1/2 du métastable 2³S₁; en abscisses figure le carré de

- 96 -





l'intensité du champ magnétique oscillant ω_{lm} (en unités arbitraires). La figure 31 rend compte des intensités trouvées pour les deux résonances en fonction de $(\omega_{lm})^2$; nous y avons porté en ordonnées la valeur expérimentale de

$$y = \frac{\sqrt[4]{J(\omega_{lm})}}{\sqrt[3]{J(\omega_{lm})} - \sqrt[4]{J(\omega_{lm})}} \quad (cf. (80) et (81)) . Les droites tracées sur$$

ces deux figures résultent d'un traitement des données expérimentales par la méthode des moindres carrés. Nous comparons ces résultats expérimentaux avec les différentes prévisions théoriques du § B,II,4,Y.

[a] Largeur des courbes de résonance à intensité nulle du champ de radiofréquence.

D'après la figure 30 :

$${}^{0}\Delta B^{3/2} = (0,543 \pm 0,008) \text{ Gs}$$
 et ${}^{0}\Delta B^{1/2} = (0,476 \pm 0,011) \text{ Gs}$

Leur rapport, en Gauss, vaut :

$$\frac{{}^{0}\Delta B}{{}^{0}\Delta B}^{\frac{3}{2}} = (1, 142 \pm 0, 043)$$

ou encore, en unités de pulsation :

$$\frac{{}^{0}\Delta\omega^{3/2}}{{}^{0}\Delta\omega^{1/2}} = (0,571 \pm 0,022)$$

Cette valeur est en très bon accord avec celle du rapport théorique : $\frac{4}{7} = 0,5714$ (cf. (78)).

[b] <u>Elargissement des résonances en fonction de l'intensité du champ de radiofré-</u> <u>guence</u>

On constate bien un accroissement linéaire de ΔB^2 avec ω_{lm}^2 (voir fig. 30) :

- 97 -

$$\frac{(\Delta B^{3/2})^2 - ({}^0\Delta B^{3/2})^2}{(\Delta B^{1/2})^2 - ({}^0\Delta B^{1/2})^2} = (5,695 \pm 0,43)$$

En unité de pulsation, ce rapport expérimental vaut (1,43 ± 0,11). Il est en excellent accord avec sa valeur théorique : $\frac{10}{7}$ = 1,428 (cf. (79)).

[c] Intensités des résonances

On voit sur la figure 31 que y varie bien linéairement avec $(\omega_{1m})^2$ (cf. (81)). L'ordonnée à l'origine ainsi obtenue vaut (0,295 ± 0,010); cette valeur coıncide bien avec celle qui est prévue par le calcul : $\frac{8}{27} = 0,2963$ (cf. (82)).

De manière générale, nous avons effectué ces vérifications sur de nombreuses cellules, à différentes pressions de ³He. Nous avons dans tous les cas obtenu un excellent accord de tous les résultats expérimentaux avec la théorie.

β) Etude des largeurs des courbes de résonance du métastable 2³S₁ de ³He en fonction de la pression

Sur la figure 32, nous avons porté, en fonction de la pression de ³He dans la cellule, les largeurs ${}^{0}\Delta B^{\frac{3}{2}}$ et ${}^{0}\Delta B^{\frac{1}{2}}$ que nous avons déterminées après extrapolation à $\omega_{1m} = 0$. Les points expérimentaux correspondant au niveau F = 3/2 ont été corrigés pour tenir compte du faible découplage hyperfin dans ce niveau (cette correction est de l'ordre de 1% en valeur relative). On constate que pour les deux niveaux F et F', ces largeurs sont proportionnelles à la pression; ce résultat est en bon accord avec le fait que les collisions d'échange de métastabilité avec les atomes de ³He dans l'état fondamental constituent le processus essentiel de relaxation pour l'orientation du niveau métastable 2³S₁, dans toute la gamme de pression étudiée (de 0,1 à 3 torr). Pour le sous-niveau F = 3/2, les largeurs mesurées sont en très bon accord avec celles données par COLEGROVE et coll. [¹¹¹]. Par contre, pour le sous-niveau F' = 1/2, nous ne disposons pas de résultats antérieurs à comparer aux nôtres. Le rapport des pentes des deux droites (déterminées à l'aide de la méthode des moindres carrés) est ainsi obtenu avec une bonne précision :



FIGURE 32 : Largeurs expérimentales des courbes de résonance magnétique pour les deux niveaux hyperfins de (³He, 2^3S_1) en fonction de la pression.

$$\frac{{}^{0}\Delta B}{{}^{0}\Delta B}^{3/2} = (1,158 \pm 0,023)$$

ou encore, en unité de pulsation :

$$\frac{{}^{0}\Delta B^{3/2}}{{}^{0}\Delta B^{1/2}} = (0,579 \pm 0,012)$$

Cette valeur est également en très bon accord avec la valeur théorique :

$$\frac{{}^{0}\Delta\omega^{3/2}}{{}^{0}\Delta\omega^{1/2}} = \frac{4/9\tau}{7/9\tau} = \frac{4}{7} = 0,5714$$

On peut remarquer que si l'on supposait que chaque collision d'échange de métastabilité détruise totalement l'orientation électronique dans chacun des niveaux hyperfins F, on aurait ${}^{0}\Delta \omega^{\frac{3}{2}} = {}^{0}\Delta \omega^{\frac{1}{2}} = \frac{1}{\tau}$, et donc ${}^{0}\Delta B^{\frac{3}{2}} / {}^{0}\Delta B^{\frac{1}{2}} = 2$; les points correspondant au niveau F' = 1/2 seraient situés sur une droite dont la pente serait la moitié de celle correspondant au niveau F = 3/2 (droite en pointillé de la figure 32), ce qui est en contradiction très nette avec les résultats expérimentaux. Nos mesures des largeurs des résonances dans les deux sous-niveaux hyperfins du métastable 2³S₁ de ³He confirment donc entièrement les prévisions théoriques relatives à la conservation partielle de la cohérence dans chacun des niveaux hyperfins lors d'une collision d'échange de métastabilité. Rappelons que ce point n'a pas été clairement mis en évidence par les auteurs antérieurs; en particulier ceci a conduit COLEGROVE et coll. [111] à déduire une valeur trop élevée pour le temps d'échange T de leurs mesures correctes des largeurs ${}^{0}\Delta B^{\frac{3}{2}}$.

En utilisant nos résultats expérimentaux, et plus précisément la pente de la droite de la figure 32 correspondant au niveau F' = 1/2 ^(*), on obtient la valeur du temps d'échange T vu du niveau métastable triplet de ³He :

$$\frac{1}{\tau} = [50,0 \pm 0,5] .10^5 \text{ s}^{-1} \text{ torr}^{-1}$$

(*) Pour le sous-niveau F' = 1/2, la distance entre les 2 sous-niveaux Zeeman m_F = +1/2 et m_F = -1/2 est très peu affectée par le faible découplage hyperfin; par contre, pour le sous-niveau F = 3/2, la résonance est la superposition de trois courbes légèrement décalées et dont l'écartement est calculable.

(92)

A titre de comparaison, on peut donner la valeur déduite des largeurs corrigées ^(*) des résonances dans le niveau F = 3/2 :

$$\frac{1}{\tau} = [50, 6 \pm 0, 5] \cdot 10^{5} \text{ s}^{-1} \text{ torr}^{-1}$$
(93)

Les deux déterminations (92) et (93) sont en bon accord. Cependant l'erreur de 1% notée en (92), qui résulte de l'imprécision sur la pente de la droite expérimentale de la figure 32, n'est pas la seule à intervenir; en effet les valeurs des pressions que nous avons portées en abscisses sont celles qui ont été déterminées au moment du remplissage et du scellement des cellules à ³He. Ce remplissage a eu lieu à une température de l'ordre de 28°C, tandis que la température du gaz soumis à une décharge au moment de l'expérience peut être légèrement différente; cependant nous pensons que cet échauffement du gaz ne doit pas être très important, car nous avons réalisé les mêmes mesures de largeur de courbe à plusieurs niveaux de décharge différents, sans constater d'écart notable. Si nous admettons 6° comme ordre de grandeur des variations de température possibles, on en déduit une imprécision supplémentaire de 2% sur la valeur de T. Au total, nous adopterons le résultat suivant :

$$\frac{1}{\tau} = [50, 0 \pm 1, 5] . 10^{5} \text{ s}^{-1} \text{ torr}^{-1}$$
(94)

A partir de la valeur (94), on peut calculer la section efficace σ de l'échange de métastabilité dans ³He à la température ordinaire (θ = 300°K). Nous définissons σ de la façon suivante :

$$\sigma = \frac{1}{\tau v_r N}$$
(95)

N est le nombre d'atomes de ³He par cm³. Compte tenu de la température de remplissage des cellules ($\simeq 28$ °C) et de la précision de la lecture des pressions, on évalue :

$$N = (3,21 \pm 0,07)$$
. $10^{16} \text{ cm}^{-3} \text{ torr}^{-1}$

(*) Voir note de la page précédente.

 v_r est la vitesse relative moyenne de deux atomes de ³He entrant en collision; en admettant que ces atomes sont thermalisés dans la décharge :

$$v_{r} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \times \sqrt{2} \times \sqrt{\frac{2k\theta}{m_{3}}}$$
(96)

où m₃ est la masse atomique de ³He, k la constante de Boltzmann. On obtient ainsi, pour θ = (300 ± 6)°K :

$$v_r = (2,06 \pm 0,02) \ 10^5 \ cm/s$$
 (97)

On en déduit la valeur de la section efficace d'échange de métastabilité dans ³He à 300°K :

$$\sigma = (7, 6 \pm 0, 4), \ 10^{-16} \ \mathrm{cm}^2$$
(98)

On peut chercher à comparer cette valeur aux résultats antérieurs. COLEGROVE et coll. donnent [⁸³][¹¹¹] :

$$\sigma = (4,3 \pm 0,5) \ 10^{16} \ \mathrm{cm}^2 \tag{99}$$

à partir des mesures de largeur sur le niveau F = 3/2 du $2^{3}S_{1}$. Ces auteurs utilisent comme convention pour la vitesse des atomes, intervenant dans l'expression de la section efficace :

$$v = \sqrt{\frac{3k\theta}{m_3}} = 1,58 \ 10^5 \ cm/s \ \ddot{a} \ \theta = 300^{\circ} K$$

Si on multiplie le résultat (99) par le rapport v/v_r (de façon à prendre la même convention pour la définition des vitesses) et si de plus on le corrige par le facteur 9/4 (qui provient de la conservation partielle de la cohérence dans le sous-niveau F = 3/2 après collision, dont ces auteurs n'ont pas tenu compte), on obtient :

$$\sigma = (7,45 \pm 0,9).10^{-16} \text{ cm}^2 \tag{100}$$

Cette valeur (100) se trouve ainsi en excellent accord avec notre mesure (98), qui est cependant 2 fois plus précise.
On peut remarquer aussi qu'une valeur de σ en accord avec la nôtre avait été déterminée précédemment par GREENHOW [112], qui avait utilisé une méthode tout à fait différente :

$$\sigma = (7,9 \pm 2).10^{-16} \text{ cm}^2 \tag{101}$$

GREENHOW avait mesuré les largeurs de courbe de résonance nucléaire des atomes de ³He dans l'état fondamental, d'où il tirait une valeur de la probabilité l/T d'échange pour les atomes dans l'état fondamental; il en déduisait ensuite $\frac{1}{\tau} = \frac{1}{T} \times \frac{N}{n}$ en mesurant le nombre n d'atomes métastables par absorption optique. On voit que la valeur (101) ainsi trouvée par GREENHOW pour la section efficace σ d'échange de métastabilité dans ³He n'était pas entâchée de la même erreur systématique que celle de COLEGROVE et coll. (cf. (99)). Ceci explique son bon accord avec notre mesure (98), bien que sa précision soit 5 fois inférieure à la nôtre.

Nous donnons donc une nouvelle détermination de la section efficace de l'échange de métastabilité dans l'hélium à 300°K, qui diffère notablement de la valeur (99) généralement admise auparavant. Signalons qu'à notre avis, ceci a quelques conséquences relatives à l'interprétation de certaines expériences antérieures. En particulier, FITZSIMMONS avait réussi à ajuster les paramètres phénoménologiques du potentiel d'interaction interatomique lors d'une collision entre deux atomes de ³He, l'un dans l'état métastable 2³S₁, l'autre dans l'état fondamental [¹⁰⁷] : ce calcul théorique donnait un assez bon accord avec les résultats expérimentaux relatifs aux sections efficaces d'échange de métastabilité [¹¹¹] et de diffusion du métastable 2³S₁ dans l'hélium 3 [¹¹³][¹¹⁴] en fonction de la température; ce bon accord se trouve ainsi partiellement remis en question, du moins en ce qui concerne l'échange de métastabilité.

En conclusion, nous avons effectué une étude expérimentale détaillée des largeurs des résonances des deux sous-niveaux hyperfins du métastable 2³S₁ de ³He; les résultats trouvés sont en très bon accord avec toutes les prévisions théoriques que l'on peut déduire d'un traitement complet de l'aspect angulaire des collisions d'échange de métastabilité dans ³He.

- 102 -

B.III ETUDE DE L'ECHANGE DE METASTABILITE DANS LES

MELANGES 'He - 'He

Nous étudions maintenant le cas où la cellule de résonance contient non plus du gaz ³He pur, mais un mélange des deux isotopes ³He et ⁴He, dans lequel on entretient une décharge faible. Les collisions d'échange de métastabilité peuvent alors aussi bien se produire entre deux atomes de ³He, deux atomes de ⁴He, ou deux atomes d'isotopes différents $[9^1][1^{115}]$. En effet, au cours de ces différents types de collisions, seules les atmosphères électroniques sont modifiées (la durée de la collision est très courte, de l'ordre de 10⁻¹³ s); les paramètres internes associés aux noyaux, c'est-à-dire les spins nucléaires pour ³He, n'y jouent aucun rôle direct [⁸⁷][⁸⁹].

Dans ce chapitre, nous donnons d'abord au § 1 le schéma des collisions d'échange qui peuvent avoir lieu entre les différents types d'atomes dans un mélange ³He-⁴He. Nous en déduisons (cf. § 2) les équations couplées d'évolution des orientations dans le niveau métastable 2³S₁ de ⁴He et dans les deux sous-niveaux hyperfins F et F' du niveau 2³S₁ de ³He. Puis, par une méthode analogue à celle développée au chapitre précédent dans le cas de ³He pur, nous calculons au § 4 les formes de courbe de résonance dans chacun de ces 3 niveaux métastables, pour un mélange ³He-⁴He où la proportion des deux isotopes est quelconque. Nous calculons également le déplacement de fréquence de chacune de ces résonances sous l'effet de la circulation de cohérence entre les différents niveaux métastables. Enfin, au § 5, nous présentons une vérification expérimentale détaillée des prévisions théoriques relatives aux variations des largeurs des résonances dans les trois niveaux en fonction de la concentration des deux isotopes dans le mélange.

Schéma des collisions d'échange de métastabilité dans un mélange ³He-⁴He

Considérons un mélange de ³He et de ⁴He, dans lequel les pressions particlles de ³He et de ⁴He sont respectivement p_4 et p_4 , la pression totale

- 103 -

 $\text{étant } P(P = p_3 + p_4).$

Les collisions d'échange de métastabilité entre deux atomes de ³He, l'un dans l'état métastable 2³S₁, l'autre dans l'état fondamental, ont été étudiées en détail au chapitre précédent. Nous reprendrons les notations de ce chapitre, en modifiant légèrement la définition de T. Nous appellerons l/T la probabilité pour un atome (³He, 2³S₁), de subir une collision d'échange avec un atome (³He, 1¹S₀) dans une cellule où la densité des atomes ³He serait supposée égale à la pression totale P. Dans le mélange ³He-⁴He étudié ici, cette probabilité est donc égale $a \frac{1}{\tau} \frac{p_3}{p}$.

Le cas de l'échange de métastabilité entre deux atomes "He est très différent. En effet, l'atome "He n'a pas de spin nucléaire, contrairement à "He (I = 1/2). La conservation du moment cinétique de spin électronique pendant la collision (cf. § B,II,1) entraîne que, si un atome "He dans l'état 2³S1 subit une collision d'échange avec un atome "He dans l'état fondamental, l'état angulaire du niveau 2³S1 de ⁴He est le même après et avant collision. L'échange de métastabilité entre deux atomes "He n'est donc pas un processus de relaxation de l'orientation du niveau métastable 2³S1 de ⁴He. Nous ne le ferons pas intervenir.

Par contre, l'échange entre isotopes différents joue un rôle important. La collision "croisée" peut être schématisée par l'équation de réaction :

> $({}^{4}\text{He}, 1{}^{1}\text{S}_{0}) + ({}^{3}\text{He}, 2{}^{3}\text{S}_{1}) \stackrel{\rightarrow}{\leftarrow} ({}^{4}\text{He}, 2{}^{3}\text{S}_{1}) + ({}^{3}\text{He}, 1{}^{1}\text{S}_{0})$ (102)

Nous supposons que le léger défaut d'énergie, correspondant à l'écart entre l'énergie des niveaux (⁴He, 2³S₁) et (³He, 2³S₁), est pris ou cédé aux degrés de liberté externes des atomes (translation, etc.); cet écart est d'ailleurs faible devant kθ à la température θ ordinaire [¹¹⁶]; comme de plus les spins nucléaires des atomes ne jouent aucun rôle au cours de cette collision, nous ferons l'hypothèse que la section efficace $\sigma(^{3}\text{He}^{-4}\text{He})$ pour la collision d'échange "croisée" (102) est égale à la section efficace $\sigma({}^{3}\text{He}, {}^{3}\text{He})$ de la collision d'échange de métastabilité entre deux atomes ³He :

$$\sigma(^{3}\text{He}, ^{4}\text{He}) = \sigma(^{3}\text{He}, ^{3}\text{He})$$
 (103)

)

Appelons $1/\tau'$ la probabilité par unité de temps pour qu'un atome métastable d'un isotope donné subisse une collision d'échange avec un atome de l'autre isotope dans l'état fondamental, ce dernier étant supposé être à la pression P. Dans le mélange, cette probabilité d'échange "croisée" est donc égale à $\frac{1}{\tau'} \times \frac{p_4}{p}$ pour les atomes (³He, 2³S₁), et à $\frac{1}{\tau'} \times \frac{p_3}{p}$ pour les atomes (⁴He, 2³S₁). On peut chercher à comparer 1/ τ et 1/ τ' . Il suffit pour cela d'écrire la définition de la section efficace de la réaction "croisée" :

$$\sigma(^{3}\text{He}, ^{4}\text{He}) = \frac{1}{\tau' v' r^{N}}$$
 (104)

Cette formule est l'analogue de l'expression (95) donnée pour $\sigma({}^{3}\text{He}, {}^{3}\text{He})$ dans ${}^{3}\text{He}$ pur. N est le nombre d'atomes par cm 3 correspondant à une pression P. v'_r est la vitesse relative moyenne d'un atome de ${}^{3}\text{He}$ et d'un atome de ${}^{4}\text{He}$. En admettant, ici encore, que ces atomes ont des vitesses thermiques dans la décharge :

$$\mathbf{r} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\left(\frac{2k\theta}{m_3}\right) + \left(\frac{2k\theta}{m_4}\right)} = \sqrt{\frac{m_3 + m_4}{2m_4}} \mathbf{v}_r$$
(105)

où m₃ et m₄ sont les masses atomiques de ³He et ⁴He. La formule (105) est l'analogue de (96) pour ³He pur. On obtient ainsi à 300°K :

$$v'_{\rm r} = \sqrt{\frac{7}{8}} v_{\rm r} = 1,93.10^5 \, {\rm cm/s}$$
 (106)

Cette valeur de v'_r diffère légèrement de la valeur (97) de v_r pour ³He pur à la même température. En utilisant l'égalité (103), la comparaison de (95) et (104) fournit :

$$\frac{1}{\tau'} = \frac{1}{\tau} \times \frac{v'r}{v_r} = \frac{1}{\tau} (1 - 0, 07)$$

On pose :

$$\frac{1}{\tau'} = \frac{1}{\tau} (1 - \varepsilon)$$

où $\varepsilon = 0,07$ est une quantité petite.

Nous définissons de même les probabilités d'échange de métastabilité pour les atomes dans l'état fondamental. Nous supposons que les densités

(107)

d'atomes métastables créés par la décharge pour les deux isotopes sont dans le rapport des pressions partielles de ³He et ⁴He dans la cellule. Ainsi la probabilité par unité de temps pour qu'un atome (³He, 1¹S₀) subisse une collision d'échange avec (³He, 2³S₁) dans le mélange est $\frac{1}{T} \times \frac{p_3}{P}$; pour un atome (³He, 1¹S₀) avec (⁴He, 2³S₁), cette probabilité est notée $\frac{1}{T'} \times \frac{p_4}{P}$; inversement pour un atome (⁴He, 1¹S₀) avec (³He, 2³S₁), elle vaut $\frac{1}{T'} \times \frac{p_3}{P}$. On peut également relier les probabilités 1/T et 1/T':

$$\frac{1}{T'} = \frac{1}{T} \times \frac{v'r}{v_r} = \frac{1}{T} (1 - \varepsilon)$$
(108)

Soient $\rho_{\rm f}$, ${}^3\rho_{\rm m}$ et ${}^4\rho_{\rm m}$ les matrices densités respectives des atomes (${}^3{\rm He}$, $1{}^1{\rm S}_0$), (${}^3{\rm He}$, $2{}^3{\rm S}_1$) et (${}^4{\rm He}$, $2{}^3{\rm S}_1$). Pour établir le schéma des collisions d'échange dans le mélange ${}^3{\rm He}-{}^4{\rm He}$, nous faisons exactement les mêmes hypothèses physiques qu'au paragraphe B,II,1. L'évolution de $\rho_{\rm f}$ et ${}^3\rho_{\rm m}$ sous l'effet d'une collision d'échange de métastabilité entre 2 atomes de ${}^3{\rm He}$ est encore donnée par le tableau VII du § B,II,1, où l'on remplace $\rho_{\rm m}$ par ${}^3\rho_{\rm m}$. L'influence des collisions d'échange "croisées" est résumée sur la figure 33. Le premier schéma (33-a) donne l'évolution des matrices densités des atomes au cours du processus même de la collision :

$$({}^{3}\text{He}, 1{}^{1}\text{S}_{0}) + ({}^{4}\text{He}, 2{}^{3}\text{S}_{1}) \rightarrow ({}^{3}\text{He}, 2{}^{3}\text{S}_{1}) + ({}^{4}\text{He}, 1{}^{1}\text{S}_{0})$$

L'égalité ${}^{3}\rho'_{m} = \rho_{f} \otimes {}^{4}\rho_{m}$ traduit les deux hypothèses suivantes : le spin nucléaire n'est pas affecté par la collision et le spin électronique de l'atome métastable est totalement transféré. On interprète de même le deuxième schéma, qui décrit la collision "croisée" inverse.

Si l'on tient compte des probabilités définies plus haut pour ces différentes collisions, on obtient les équations d'évolution des matrices densités sous l'effet de l'échange de métastabilité dans les mélanges ³He-⁴He. Nous les présentons sous la forme du tableau VIII, de façon à faire apparaître l'influence des différents types de collisions.



Schémas donnant l'évolution des matrices densités des atomes au cours des collisions d'échange de métastabilité entre isotopes différents de l'hélium. Treet Trereprésentent les opérations de trace respectivement sur les variables nucléaires et électroniques

	$({}^{3}\text{He}, 2{}^{3}\text{S}_{1}) + ({}^{3}\text{He}, 1{}^{1}\text{S}_{0})$ \longrightarrow $({}^{3}\text{He}, 1{}^{1}\text{S}_{0}) + ({}^{3}\text{He}, 2{}^{3}\text{S}_{1})$	$({}^{3}\text{He}, 2{}^{3}\text{S}_{1}) + ({}^{4}\text{He}, 1{}^{1}\text{S}_{0}) $ \rightarrow $({}^{3}\text{He}, 1{}^{1}\text{S}_{0}) + ({}^{4}\text{He}, 2{}^{3}\text{S}_{1})$	$(^{4}\text{He}, 2^{3}\text{S}_{1}) + (^{3}\text{He}, 1^{1}\text{S}_{0})$ $(^{4}\text{He}, 1^{1}\text{S}_{0}) + (^{3}\text{He}, 2^{3}\text{S}_{1})$
$\frac{d}{dt}^{4}\rho_{m} =$		+ $\frac{1}{\tau^{1}} \frac{p_{4}}{p} \operatorname{Tr}_{n}({}^{3}\rho_{m}) \frac{p_{3}}{p_{4}}$	$-\frac{1}{\tau'}\frac{p_3}{P} p_m^*$
$\frac{d}{dt}^{3}\rho_{m} =$	$-\frac{1}{\tau}\frac{p_{3}}{p}{}^{3}\rho_{m}+\frac{1}{\tau}\frac{p_{3}}{p}\left[\rho_{f}^{\otimes}Tr_{n}^{(3)}\rho_{m}\right]$	$-\frac{1}{\tau} \frac{p_4}{P} {}^3\rho_{\rm m}$	+ $\frac{1}{\tau'} \frac{p_3}{p} \left[\rho_f \otimes^4 \rho_m \right] \frac{p_4}{p_3}$
$\frac{d}{dt} \rho_f =$	$-\frac{1}{T}\frac{p_3}{P}\rho_f + \frac{1}{T}\frac{p_3}{P}Tr_e({}^3\rho_m)$	+ $\frac{1}{T^{1}} \frac{p_{3}}{p} Tr_{e} ({}^{3}\rho_{m}) \frac{p_{4}}{p_{3}}$	$-\frac{1}{T'}\frac{p_4}{p}\rho_f$

TABLEAU VIII

 Tr_e et Tr_n désignent les opérations de traces respectivement sur les variables électroniques et nucléaires.

La première équation, qui traduit l'évolution de la matrice densité électronique " ρ_m des atomes métastables de "He, s'interprète simplement : le second terme ($-\frac{1}{\tau^{*}}\frac{p_{3}}{p}$ " ρ_m) traduit la perte de la polarisation électronique de ("He, 2³S₁) résultant de la destruction de cet atome par la collision avec (³He, 1¹S₀) (voir figure 33-a), dont la probabilité pour chaque atome ("He, 2³S₁) est $\frac{1}{\tau^{*}} \times \frac{p_{3}}{p}$. Le premier terme ($+\frac{1}{\tau^{*}}\frac{p_{4}}{p}$ Tr_n(³ ρ_m) $\frac{p_{3}}{p_{4}}$) correspond à la polarisation électronique qu'acquiert l'atome ("He, 2³S₁) lorsqu'il est créé par la collision d'échange entre ("He, 1¹S₀) et (³He, 2³S₁) (voir figure 33-b); $\frac{1}{\tau^{*}}\frac{p_{4}}{p}$ est la probabilité par unité de temps que chaque atome (³He, 2³S₁) subisse une collision de ce type; pour obtenir la probabilité par unité de temps qu'un atome ("He, 2³S₁) soit créé par cette collision, il faut multiplier la quantité $\frac{1}{\tau^{*}}\frac{p_{4}}{p}$ par le facteur de normalisation $\frac{p_{3}}{p_{4}}$. On interprète d'une façon analogue tous les termes des deux autres équations du tableau VIII.

En utilisant (107) et (108), on obtient finalement le système d'équations suivantes :

$$\frac{d}{dt} \, {}^{4}\rho_{m} = \frac{1}{\tau} \, \frac{p_{3}}{P} \, (1-\epsilon) \left\{ \, \mathrm{Tr}_{n} ({}^{3}\rho_{m}) - {}^{4}\rho_{m} \right\} \\ \frac{d}{dt} \, {}^{3}\rho_{m} = -\frac{1}{\tau} \, (1 - \frac{p_{4}}{P} \, \epsilon) \, {}^{3}\rho_{m} + \frac{1}{\tau} \, \rho_{f} \, \otimes \left[\frac{p_{3}}{P} \, \mathrm{Tr}_{n} ({}^{3}\rho_{m}) + \frac{p_{4}}{P} \, (1-\epsilon) \, {}^{4}\rho_{m} \right] \\ \frac{d}{dt} \, \rho_{f} = -\frac{1}{\tau} \, (1 - \frac{p_{4}}{P} \, \epsilon) \, \rho_{f} + \frac{1}{\tau} \, (1 - \frac{p_{4}}{P} \, \epsilon) \, \mathrm{Tr}_{e} ({}^{3}\rho_{m})$$
(109)

Le système (109) est la généralisation du système (46) au cas des mélanges ³He-⁴He.

Comme dans le cas de ³He pur (cf. § B,II,1) et pour les mêmes raisons, nous négligeons, en régime permanent, les cohérences hyperfines créées juste après la collision d'échange entre les deux sous-niveaux hyperfins F et F' de (³He, 2³S₁). Nous ne considèrerons donc, ici encore, que les projections ³ $\rho_m(3/2)$ et ³ $\rho_m(1/2)$ de la matrice densité ³ ρ_m sur les sous-niveaux F = 3/2 et F' = 1/2.

Equations d'évolution des orientations atomiques sous l'effet des collisions d'échange de métastabilité dans un mélange ³He-⁴He.

Nous allons chercher l'évolution des orientations stationnaires dans les différents niveaux. Les observables $\langle {}^{3}\!\!{}^{2$

$$\langle \vec{s} \rangle = Tr \langle \vec{s}^{\mu} \rho_{m} \rangle$$
 (110)

Comme au § B,II,2, nous négligeons la contribution des observables d'alignement des niveaux métastables à l'évolution des différentes orientations (approximation des orientations faibles). En procédant comme dans le cas de ³He pur, on obtient à partir de (109) les équations qui décrivent l'évolution des orientations des 4 niveaux étudiés sous l'effet des collisions d'échange de métastabilité seules dans les mélanges ³He-⁴He :

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t} < \vec{\mathrm{S}} > = \frac{1}{\tau} \frac{\mathrm{p}_{3}}{\mathrm{P}} (1-\varepsilon) \left\{ \frac{2}{3} < \frac{^{3}\!/_{2}}{\mathrm{F}} > + \frac{4}{3} < \frac{^{1}\!/_{2}}{\mathrm{F}} > - < \vec{\mathrm{S}} > \right\}$$
(111)

$$\frac{d}{dt} < \sqrt[3]{2F} = -\frac{1}{\tau} (1 - \frac{p_{4}}{P} \varepsilon) < \sqrt[3]{2F} + \frac{5}{6\tau} \left\{ \frac{p_{3}}{P} (\frac{2}{3} < \sqrt[3]{2F} + \frac{4}{3} < \sqrt[3]{2F} + \frac{p_{4}}{P} (1 - \varepsilon) < \sqrt[3]{5} \right\} + \frac{10}{9\tau} (1 - \frac{p_{4}}{P} \varepsilon) < 1 > f$$
(112)
$$\frac{d}{dt} < \sqrt[4]{2F} = -\frac{1}{\tau} (1 - \frac{p_{4}}{P} \varepsilon) < \sqrt[4]{2F} + \frac{1}{6\tau} \left\{ \frac{p_{3}}{P} (\frac{2}{3} < \sqrt[3]{2F} + \frac{4}{3} < \sqrt[4]{2F} + \frac{p_{4}}{P} (1 - \varepsilon) < \sqrt[5]{5} \right\} - \frac{1}{9\tau} (1 - \frac{p_{4}}{P} \varepsilon) < 1 > f$$

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{dt}} < \vec{1} >_{\mathrm{f}} = \frac{1}{\mathrm{T}} \left(1 - \frac{\mathrm{p}_{4}}{\mathrm{P}} \varepsilon \right) \left\{ - < \vec{1} >_{\mathrm{f}} + \frac{1}{3} < \sqrt[3]{2} + \frac{1}{3} < \frac{1}{2} + \frac{1}{3} < \frac{1}{3} + \frac{1}{3}$$

On vérifie évidemment que si l'on fait p[.]4 = 0, les équations (112), (113) et (114) se ramènent aux équations (48), (49) et (50) déterminées au chapitre précédent dans le cas de ³He pur.

Dans le cas d'un mélange ³He-⁴He, l'équation (114) traduit l'évolution de l'orientation nucléaire de ³He dans l'état fondamental. Elle a une forme tout à fait analogue à l'équation (50) trouvée dans le cas de ³He pur. Elle s'interprète de la même façon. La présence de la quantité $(1 - \frac{P_4}{P} \epsilon)$ en facteur au second membre de (114) correspond au fait que les collisions "croisées" n'ont pas exactement la même probabilité que les collisions entre 2 atomes de ³He (à cause de la différence entre les vitesses thermiques des 2 isotopes).

Pour commenter les équations (111), (112) et (113), plaçons-nous dans le cas de l'approximation séculaire, comme au § B,II,4, γ ,a, pour ³He pur (nous ferons d'ailleurs une telle hypothèse au § B,III,4, α ,b, pour calculer les formes de courbe de résonance). Rappelons que cette approximation revient à négliger les couplages entre les orientations transversales de niveaux atomiques différents dont les facteurs de Landé ne sont pas égaux. Considérons l'évolution de l'orientation transversale de (⁴He, 2³S₁) dans les mélanges ³He-⁴He, qui est donnée par l'équation (111); on constate alors que la fréquence de destruction des cohérences dans ce niveau est $\frac{1}{\tau} \frac{p_3}{p}$ (1- ε); elle est proportionnelle à la pression partielle de ³He dans le mélange; dans le cas où ⁴He est en traces dans ³He ($p_3 \simeq P$), les cohérences de (⁴He, 2³S₁) ont juste la durée de vie $\frac{\tau}{1-\varepsilon} = \tau'$, égale à l'inverse de la probabilité des collisions "croisées" pour ce niveau. Ces résultats s'interprètent facilement : on a vu que les collisions d'échange entre 2 atomes ⁴He ne constituent pas un processus de relaxation pour (⁴He, 2³S₁).

- 109 -

Donc seules les collisions de (⁴He, $2^{3}S_{1}$) avec les atomes de ³He dans l'état fondamental limitent la durée de vie des cohérences de (⁴He, $2^{3}S_{1}$). De plus, ces collisions "croisées", qui détruisent l'atome métastable de ⁴He pour le remplacer par le métastable de l'autre isotope, sont totalement désorientantes pour (⁴He, $2^{3}S_{1}$).

De même l'évolution des orientations dans les 2 sous-niveaux hyperfins de (³He, 2³S₁) dans le mélange est donnée par les équations (112) et (113) · D'après (112), on voit que la fraction de l'orientation transversale qui subsiste dans le niveau F = 3/2 de (³He, 2³S₁) après chaque collision est égale à $\frac{5}{9\tau}(\frac{P_3}{P})$; elle dépend de la proportion des deux isotopes dans le mélange. L'inverse de la durée de vie des cohérences dans le niveau F = 3/2 de (³He, 2³S₁) vaut donc :

$$\frac{1}{\tau} \left(1 - \frac{p_4}{P} \epsilon\right) - \frac{5}{9\tau} \frac{p_3}{P} = \frac{4}{9\tau} + \frac{1}{\tau} \frac{p_4}{P} \left(\frac{5}{9} - \epsilon\right)$$
(115)

De même l'inverse de la durée de vie des cohérences dans les niveaux F' = 1/2 de (³He, 2³S₁) dans le mélange est égale, d'après (113), à :

 $\frac{7}{9\tau} + \frac{1}{\tau} \times \frac{p_4}{p} \left(\frac{2}{9} - \epsilon \right)$ (116)

Dans les deux niveaux hyperfins de (³He, 2³S₁), la fréquence de destruction de l'orientation transversale sous l'effet des collisions d'échange de métastabilité est donc une fonction linéaire de la concentration de ⁴He dans le mélange.

En faisant $p_{4} = 0$ dans les expressions (115) et (116), on retrouve bien les valeurs 4/9T et 7/9T déjà déterminées pour ces quantités dans le cas de ³He pur, au § B,II,4,7,a. Inversement, si ³He est en traces dans ⁴He ($\frac{p_{4}}{p} \ge 1$), on constate sur (115) et (116) que les durées de vie des cohérences dans les deux sous-niveaux hyperfins de (³He, 2³S₁) sont égales et valent $\frac{\tau}{1-\epsilon} = \tau'$; ici encore, ce résultat correspond au fait que les collisions "croisées" sont totalement désorientantes pour les atomes métastables de ³He.

3) Causes d'évolution des orientations autres que l'échange

α) <u>le pompage optique</u>

A l'aide d'un faisceau lumineux polarisé circulairement et transmettant la raie 10.830 Å, on oriente simultanément (³He, 2³S₁) et (⁴He, 2³S₁) parallèlement à la direction Oz. Pour chacun des niveaux F de (³He, 2³S₁), ceci se traduit par les équations (51). Pour l'atome (⁴He, 2³S₁), on décrit de même l'effet du pompage par un terme source et un terme de relaxation optique :

$$\frac{d}{dt} < \vec{S} > = -\frac{1}{\tau''_{p}} < \vec{S} > + \frac{1}{\tau''_{p}} \quad \vec{\phi}''_{z}$$
(117)

β) <u>la relaxation</u> des orientations sous l'effet d'autres causes que l'échange ou le pompage est décrite conventionnellement comme au § B,II,3,β. En particulier, T_r représente ici encore le temps de relaxation nucléaire de (³He, l¹S₀).

γ) <u>les champs magnétiques</u>. Aux équations (52) et (53) on ajoute celles qui correspondent à l'évolution de l'orientation $< \vec{S} >$ de (⁴He, 2³S₁) sous l'effet du champ magnétique statique \vec{B}_0 et du champ oscillant \vec{B}_1 cos ω t :

$$\frac{d}{dt} < S_z > = -\omega_{im} \cos \omega t < S_x >$$
(118)

$$\frac{d}{dt} < S_{+} > = i\omega_{m} < S_{+} > + \omega_{lm} \cos \omega t < S_{z} >$$
(119)

avec $S_{+} = S_{x} + iS_{y}$.

4) <u>Etude théorique des résonances magnétiques dans les états métasta-</u> bles de ³He et de ⁴He dans les mélanges

α) Approximations

(a) Comme au § B,II,4, α ,a, nous faisons l'approximation du champ tournant pour le champ de radiofréquence. Nous supposons encore qu'en régime permanent toutes les orientations transversales subissent une précession forcée à la pulsation ω . Aux équations (54), on adjoint :

- 111 -

$$\langle S_{+} \rangle = S_{+} e^{i\omega t}$$
 (120)

(b) Approximation séculaire. Ici encore, on suppose que le champ magnétique statique B₀ est suffisamment fort pour que les résonances des sous-niveaux hyperfins F = 3/2 et F' = 1/2 de (³He, 2³S₁) ainsi que la résonance de (⁴He, 2³S₁) soient séparées (rappelons que les pulsations de Larmor de ces 3 niveaux sont respectivement $\frac{2}{3} \omega_m$, $\frac{4}{3} \omega_m$ et ω_m). Ceci correspond à la condition $\omega_m \tau >> 1$.

(c) De plus nous faisons l'hypothèse que pour les niveaux métastables de ³He et de ⁴He, on peut négliger les causes de relaxation autres que l'échange de métastabilité.
Ceci implique, si l'on se reporte à l'équation (111), la condition :

$$\frac{\tau}{\tau_{r}}$$
, $\frac{\tau}{\tau_{p}^{"}} << \frac{p_{3}}{p} = 1 - \frac{p_{4}}{p}$

Dans nos expériences, pour des pressions d'hélium de l'ordre de 0,5 torr, nous avons vu que τ_r et $\tau''_p \simeq 10^{-3}$ s, alors que $\tau \simeq 10^{-6}$ s; la condition précédente revient donc à supposer que $\frac{P_3}{P} >> 10^{-3}$ (ce qui en fait est toujours le cas dans nos expériences). La méthode de calcul simplifiée que nous employons exclut donc le cas des traces évanescentes de ³He dans le mélange.

β) Forme des courbes de résonance dans les 3 niveaux métastables

Pour résoudre le système d'équations différentielles couplées (111) à (114), nous employons une méthode très analogue à celle que nous avons détaillée au chapitre précédent. Elle est résumée dans l'appendice a.II. Ici encore, nous cherchons les variations de l'orientation nucléaire stationnaire $< I_z >_f de$ $(^{3}He, 1^{1}S_{0})$, qui est reliée aux signaux de détection dans nos expériences (on observe la polarisation des raies de ³He émises par la décharge dans le mélange ³He-⁴He). Comme au § B,II,4, α ,b, nous supposons le champ magnétique B₀ suffisamment fort pour que la condition $\omega_{m} \tau >> 1$ soit vérifiée; nous admettons donc, en première approximation, que les orientations transversales des différents niveaux atomiques sont totalement découplées.

(a) Résonance dans le niveau F = 3/2 de (³He, 2³S₁).

On suppose $\omega \simeq \frac{2}{3} \omega_m$. On obtient (cf. l'appendice a.II, formule

- 112 -

(a.II.15)) :

$$<\mathbf{I}_{\mathbf{z}}>_{\mathbf{f}} = K \left\{ 1 - \frac{\frac{40}{27} \frac{T_{\mathbf{r}}}{T} (\frac{\omega_{1m}}{3})^{2} \left[1 + \frac{5}{4} \frac{p_{4}}{P} - \frac{9}{4} \frac{p_{4}}{P} \varepsilon \right]}{\left[\omega - \frac{2}{3} \omega_{\mathbf{m}} \right]^{2} + \frac{1}{\tau^{2}} \left[\frac{4}{9} + \frac{p_{4}}{P} (\frac{5}{9} - \varepsilon) \right]^{2} + \frac{40}{27} \frac{T_{\mathbf{r}}}{T} (\frac{\omega_{1m}}{3})^{2} \left[1 + \frac{5}{4} \frac{p_{4}}{P} - \frac{9}{4} \frac{p_{4}}{P} \varepsilon \right]} \right\}$$
(121)

où K est une constante qui dépend de la pression et des caractéristiques du pompage :

$$K = \frac{T}{T} \left[\frac{\tau}{\tau_p} \phi + \frac{\tau}{\tau'_p} \phi' + \frac{\tau}{\tau''_p} \frac{p_4}{p_3} \phi'' \right]$$
(122)

Si l'on fait $p_4 = 0$ dans (121) et (122), on retrouve exactement la forme de courbe (69) déterminée au chapitre précédent pour le cas de ³He pur (à condition d'y négliger les termes en $1/\tau_r$ et $1/\tau_p$ devant 4/9T et d'y remplacer $1/T_1$ par $1/T_r$).

On constate que, dans la constante de proportionnalité K, il apparaît dans le cas des mélanges ³He-⁴He un terme supplémentaire en $\frac{P_4}{p}$ Φ ", qui rend compte du pompage des atomes (⁴He, 2³S₁). Ce terme devient prépondérant lorsque p₄ >> p₃, c'est-à-dire lorsque les atomes ³He sont en traces dans ⁴He. Rappelons cependant que le calcul présenté ici a été développé dans le cas où le nombre des atomes de ³He reste suffisant pour que l'échange de métastabilité soit encore la cause principale de relaxation pour (⁴He, 2³S₁); cette condition correspond à l'approximation (c) du § B,III,4, α : $\frac{P_3}{p} = 1 - \frac{P_4}{P} >> \frac{\tau}{\tau_p}$, $\frac{T}{\tau_r}$ (ou encore $\frac{\tau}{\tau_p} \frac{P_4}{P_3} \phi$ " << ϕ " dans l'expression de K). On ne peut donc pas faire tendre p₃ vers 0 dans l'expression (122). Si l'on prenait une concentration de ³He dans ⁴He si faible que la condition précédente ne soit plus valable, le calcul serait à reprendre avec de nouvelles hypothèses; les résultats obtenus seraient alors différents de ceux présentés ici.

Pour des mélanges 3 He- 4 He, la forme de la courbe de résonance du niveau F = 3/2 de (3 He, 2 3 S₁) est encore Lorentzienne (cf. (121)). Sa largeur, extrapolée à intensité nulle du champ de radiofréquence, vaut en unités de pulsation :

$${}^{0}\Delta\omega^{3/2} = \frac{2}{\tau} \left(\frac{4}{9} + \frac{p_{4}}{p} \left(\frac{5}{9} - \epsilon \right) \right)$$
(123)

- 113 -

On retrouve bien pour ${}^{0}\Delta\omega^{3/2}$ l'inverse de la durée de vie des cohérences dans le niveau F = 3/2 de (³He, 2³S₁) discutée au paragraphe précédent (formule (115)). Si p₄ = 0, ${}^{0}\Delta\omega^{3/2} = 2 \times \frac{4}{9\tau_1}$; on retrouve le résultat obtenu dans le cas de ³He pur. Si p₄ = P, ${}^{0}\Delta\omega^{3/2} = 2 \times \frac{1}{\tau_1}$: la largeur de la résonance dans le niveau F = 3/2 de (³He, 2³S₁) est limitée par les collisions d'échange totalement désorientatrices avec (⁴He, 1¹S₀); dans ce cas, les atomes de ³He sont en traces dans ⁴He; cependant leur nombre est suffisant pour que la condition c) du § B,III,4, α reste valable.

(b) Résonance dans le niveau F' = 1/2 de (³He, $2^{3}S_{1}$)

De même, pour
$$\omega \simeq \frac{4}{3} \omega_{\rm m}$$
, on calcule (voir appendice a.II, formule (a.II.20)) :
 $< I_{\rm z} >_{\rm f} = K \left\{ 1 - \frac{\frac{28}{27} \frac{{\rm T}_{\rm r}}{{\rm T}} \left(\frac{\omega_{\rm lm}}{3}\right)^2 \left[1 + \frac{{\rm p}_{\rm 4}}{{\rm p}} \left(\frac{2}{7} - \frac{9}{7} \varepsilon\right)\right]}{\left[\omega - \frac{4}{3} \omega_{\rm m}\right]^2 + \frac{1}{{\rm T}^2} \left[\frac{7}{9} + \frac{{\rm p}_{\rm 4}}{{\rm p}} \left(\frac{2}{9} - \varepsilon\right)\right]^2 + \frac{28}{27} \frac{{\rm T}_{\rm r}}{{\rm T}} \left(\frac{\omega_{\rm lm}}{3}\right)^2 \left[1 + \frac{{\rm p}_{\rm 4}}{{\rm p}} \left(\frac{2}{7} - \frac{9}{7} \varepsilon\right)\right]}\right\}$ (124)

Ceci équivaut à (73) lorsque $p_4 = 0$. De (124) on déduit :

$${}^{0}\Delta\omega^{\frac{1}{2}} = \frac{2}{\tau} \left(\frac{7}{9} + \frac{p_{4}}{p} \left(\frac{2}{9} - \epsilon\right)\right)$$
(125)

On retrouve ici encore, pour la largeur de la courbe de résonance extrapolée à $\omega_{lm} = 0$, l'inverse de la durée de vie des cohérences dans le niveau F' = 1/2 de (³He, 2³S₁) (cf. (116)); ceci vaut 2 × $\frac{7}{9\tau}$ si p₄ = 0 et 2 × $\frac{1}{\tau}$ si p₄ ≃ P.

(c) Résonance dans le niveau (⁴He, 2³S₁)

Enfin, pour $\omega \simeq \omega_{\rm m}$, on calcule la forme de courbe de résonance du métastable de ⁴He dans le mélange ³He-⁴He, détectée par l'intermédiaire de la polarisation nucléaire stationnaire de ³He (appendice a.II, formule (a.II.25)) :

$$<\mathbf{I}_{z}>_{f} = K \left\{ 1 - \frac{6 \frac{T_{r}}{T} \left(\frac{\omega_{1m}}{3}\right)^{2} \frac{p_{4}}{P} \left[1 + \varepsilon \left(\frac{21}{16} \frac{p_{3}}{P} - \frac{43}{16}\right)\right]}{\left[\omega - \omega_{m}\right]^{2} + \left[\frac{1}{T} \frac{p_{3}}{P} \left(1 - \varepsilon\right)\right]^{2} + 6 \frac{T_{r}}{T} \left(\frac{\omega_{1m}}{3}\right)^{2} \frac{p_{4}}{P} \left[1 + \varepsilon \left(\frac{21}{16} \frac{p_{3}}{P} - \frac{43}{16}\right)\right]}\right\}$$
(126)

On en déduit que la largeur de cette courbe Lorentzienne, extrapolée à $\omega_{lm} = 0$, vaut :

$$^{0}\Delta\omega$$
 (⁴He) = $\frac{2}{\tau} \times \frac{p_{3}}{P}$ (1 - ε) = $\frac{2}{\tau'} \times \frac{p_{3}}{P}$ (127)

Comme on pouvait le prévoir, elle est égale à l'inverse de la durée de vie des cohérences dans ce niveau, limitée uniquement par les collisions d'échange de métastabilité de (⁴He, $2^{3}S_{1}$) avec les atomes ³He dans l'état fondamental. On remarque qu'aux très faibles concentrations de ³He, la largeur de la résonance de (⁴He, $2^{3}S_{1}$) est beaucoup moins grande que celle des résonances des deux niveaux F et F' de (³He, $2^{3}S_{1}$).

γ) Discussion des résultats

(a) Comparons pour les trois niveaux les élargissements des courbes de résonance en fonction de l'intensité ω_{lm} du champ de radiofréquence.

D'après (121), (124) et (126) :

$$(\Delta\omega^{3/2})^{2} - ({}^{0}\Delta\omega^{3/2})^{2} = \frac{40}{27} \times \frac{T_{r}}{T} \times \left[1 + \frac{p_{4}}{P}(\frac{5}{4} - \frac{9}{4}\epsilon)\right] \left(\frac{\omega_{1m}}{3}\right)^{2} (\Delta\omega^{1/2})^{2} - ({}^{0}\Delta\omega^{1/2})^{2} = \frac{28}{27} \times \frac{T_{r}}{T} \times \left[1 + \frac{p_{4}}{P}(\frac{2}{7} - \frac{9}{7}\epsilon)\right] \left(\frac{\omega_{1m}}{3}\right)^{2} \left[\Delta\omega^{(4}_{He})\right]^{2} - \left[{}^{0}\Delta\omega^{(4}_{He})\right]^{2} = 6 \frac{T_{r}}{T} \frac{p_{4}}{P} \left[1 + \epsilon \left(\frac{21}{16}\frac{p_{3}}{P} - \frac{43}{16}\right)\right] \left(\frac{\omega_{1m}}{3}\right)^{2} \right\}$$
(128)

Les formules (128) donnent les pentes des élargissements avec ω_{lm}^2 des trois courbes de résonance, en fonction de la pression partielle de ⁴He dans le mélange. Ce sont des fonctions linéaires de la concentration de ⁴He dans le mélange.

(b) Comparons les intensités des 3 résonances.

Supposons d'abord que l'on applique un champ oscillant à la fréquence de résonance de l'un quelconque des trois niveaux métastables et que son intensité soit suffisante pour saturer cette résonance ($\omega_{lm} \gg \frac{l}{\tau}$); on constate sur les équations (121), (124) et (126) qu'on obtient alors : $< I_z >_f \approx 0$, quelle que soit la proportion des deux isotopes dans le mélange. Les résonances dans les trois niveaux métastables ont donc la même intensité à saturation. Ce fait signifie que lorsqu'on désoriente soit le niveau (⁴He, 2³S₁), soit l'un des deux niveaux hyperfins de (³He, 2³S₁), les collisions d'échange de métastabilité sont suffisamment efficaces pour transmettre totalement cette désorientation au "réservoir" d'atomes de ³He dans l'état fondamental. Remarquons que ce résultat suppose, ici encore, que la pression partielle de ³He ne soit pas trop basse : le calcul précédent a été mené dans l'approximation du § B,III,4, α ,c, qui implique la condition : $\frac{p_3}{p} >> \frac{\tau}{\tau_p}$, $\frac{\tau}{\tau_p}$.

Si,par contre, on développe le calcul dans l'hypothèse opposée (traces évanescentes de ³He dans ⁴He, $\frac{p_3}{p} << \frac{\tau}{\tau_r}$, $\frac{\tau}{\tau_r} \approx 10^{-3}$), on peut montrer qu'on aboutit des conclusions complètement différentes : l'intensité de la résonance, mesurée sur $< I_z >_f$, n'est plus la même selon qu'on désoriente (⁴He, 2³S₁), le niveau F = 3/2 ou le niveau F' = 1/2 de (³He, 2³S₁); la résonance effectuée sur l'un quelconque de ces trois niveaux métastables n'entraîne qu'une désorientation partielle des spins nucléaires de ³He; on obtient même un résultat intéressant: si la pression partielle de ³He dans le mélange devient inférieure à une certaine valeur critique, d'ailleurs très faible, l'orientation nucléaire stationnaire des atomes (³He, 1¹S₀) est augmentée par la destruction de l'orientation dans le niveau F' = 1/2 de (³He, 2³S₁) ! Cependant nous ne donnons pas ici

(c) Enfin comparons les largeurs des trois résonances, extrapolées à intensité nulle du champ de radiofréquence. Elles sont données par les formules (123), (125) et (127). Sur la figure 34 nous avons porté leurs valeurs, en unités de pulsation, en fonction de la concentration des atomes ³He dans le mélange (en pour-cent), la pression totale étant supposée constante. Nous avons tenu compte de la légère différence entre les probabilités 1/T et 1/T' résultant des vitesses relatives différentes pour les collisions ³He-³He et pour les collisions "croisées".

les calculs développés dans cette hypothèse, car elle ne correspond pas aux vérifications expérimentales que nous avons pu effectuer et qui sont décrites plus loin.

δ) Déplacement des fréquences de résonance

Comme dans le cas de ³He pur (cf. § B,II,4, δ), on peut calculer l'effet de la circulation de cohérence entre les deux niveaux hyperfins de (³He, 2³S₁) et le niveau (⁴He, 2³S₁). Le déplacement de la fréquence centrale de



Concentration de 3 He

FIGURE 34 : Largeurs théoriques (en unités de pulsation) des courbes de résonance dans le niveau (⁴He, $2^{3}S_{1}$) et dans les 2 sous-niveaux hyperfins de (³He, $2^{3}S_{1}$) en fonction de la composition du mélange ³He-⁴He. La pression totale est supposée constante.

de la résonance qui en résulte pour chacun de ces trois niveaux est calculé dans l'appendice a.II (formules (a.II.27, 28 et 29)).

$$\delta \omega^{3/2} = \frac{5}{27} \frac{p_3}{P} \frac{1}{\omega_m \tau^2} \left[1 + 8 \frac{p_4}{P} - 18 \frac{p_4}{P} \varepsilon \right]$$
(129)

$$\delta \omega^{\frac{1}{2}} = -\frac{5}{27} \frac{p_3}{P} \frac{1}{\omega_m \tau^2} \left[1 + \frac{13}{5} \frac{p_4}{P} - \frac{36}{5} \frac{p_4}{P} \varepsilon \right]$$
(130)

$$\delta\omega(^{4}\text{He}) = -(1-2\varepsilon) \frac{p_{3} p_{4}}{p^{2}} \frac{1}{\omega_{m} \tau^{2}}$$
(131)

La résonance du niveau F = 3/2 de (³He, 2³S₁) est déplacée de $\delta \omega^{\frac{3}{2}}$ vers les fréquences élevées, tandis que les résonances du niveau F' = 1/2 de (³He, 2³S₁) et de (⁴He, 2³S₁) sont déplacées respectivement de $\delta \omega^{\frac{1}{2}}$ et $\delta \omega$ (⁴He) vers les fréquences basses. En faisant p₄ = 0 dans (129) et (130), on retrouve bien les déplacements calculés au § B, II, 4, δ dans le cas de ³He pur. On remarque sur les équations (129), (130) et (131) que les déplacements de fréquence liés aux collisions d'échange de métastabilité "croisées" sont proportionnels à $\frac{p_3 p_4}{p_2}$; on peut comprendre la signification physique de ce facteur : considérons par exemple le déplacement de fréquence de résonance de (⁴He, 2³S₁) (équation (131)); il traduit le départ de la cohérence de (⁴He, $2^{3}S_{1}$) vers (³He, $1^{1}S_{0}$) lors d'une collision (⁴He, $2^{3}S_{1}$) + $({}^{3}\text{He}, 1{}^{1}\text{S}_{0}) \rightarrow ({}^{4}\text{He}, 1{}^{1}\text{S}_{0}) + ({}^{3}\text{He}, 2{}^{3}\text{S}_{1})$, suivie d'un retour partiel de cette cohérence sur (⁴He, 2³S₁) lors d'une deuxième collision, représentée par la réaction inverse; la première sorte de collisions a une fréquence proportionnelle à la concentration p_3/P des atomes (³He, 1¹S₀) dans le mélange, la deuxième à la concentration p_{μ}/P des atomes (⁴He, 1¹S₀); le déplacement de la fréquence de résonance de (⁴He, 2³S₁) sous l'effet des collisions d'échange de métastabilité dans les mélanges ³He-⁴He est donc nul lorsque l'un des isotopes est à l'état de traces dans l'autre et maximal lorsque les concentrations de ³He et de ⁴He sont égales. On interprète de même les termes en $\frac{p_3p_4}{p^2}$ des équations (129) et (130).

Cependant, comme dans le cas de ³He pur, les conditions correspondant à nos expériences sur les mélanges ³He-⁴He (cf § B,III,5) sont telles que ces déplacements de fréquence $\delta \omega$ ont des ordres de grandeur très faibles devant les largeurs ⁰ $\Delta \omega$ des courbes de résonance des trois niveaux métastables; ils sont par suite inobservables, du moins dans les champs magnétiques relativement élevés auxquels nous nous sommes placés.

5) Vérification expérimentale

Nous avons cherché à vérifier en détail par l'expérience les résultats du § B,III,4,8 en particulier l'effet des collisions d'échange de métastabilité dans les mélanges ³He-⁴He sur les largeurs des courbes de résonance des deux niveaux hyperfins de (³He, 2³S₁)et du niveau (⁴He, 2³S₁). Pour cela, nous avons étudié de nombreuses cellules contenant des mélanges gazeux de ³He et de ⁴He en proportion variable, la pression totale étant de l'ordre de 0,1 torr. Le montage expérimental est le même que celui décrit au § B,I,3. On applique un champ de radiofréquence oscillant à la fréquence de 23 MHz et on balaie le champ magnétique statique Bo autour de la valeur correspondant à chacune des trois résonances : 12,3 Gs, 8,2 Gs et 6,1 Gs respectivement pour les niveaux F' = 1/2 de $({}^{3}\text{He}, 2{}^{3}\text{S}_{1})$, $({}^{4}\text{He}, 2{}^{3}\text{S}_{1})$ et F = 3/2 de $({}^{3}\text{He}, 2{}^{3}\text{S}_{1})$. La détection des trois résonances s'effectue, comme dans le cas de ³He pur, en observant la polarisation circulaire de l'ensemble des raies 6.678 Å et 5.876 Å de l'hélium émises par la décharge dans la cellule. L'origine de ces signaux n'étant pas évidente (en particulier en ce qui concerne le niveau (⁴He, 2³S₁)), nous commençons par discuter la méthode de détection que nous avons employée. Puis nous détaillons les observations faites sur une cellule contenant 50% de chacun des deux isotopes. Enfin, nous présentons l'ensemble des résultats obtenus pour les largeurs des résonances des trois niveaux métastables, en fonction de la pression partielle de ³He dans le mélange.

a) Méthode de détection des 3 résonances

(a) Couplages des orientations atomiques dans les mélanges ³He-⁴He. Nous avons vu au chapitre B.II que dans le cas de ³He pur, les collisions d'échange de métastabilité assurent un couplage entre les orientations des niveaux (³He, 2³S₁) et (³He, 1¹S₀). L'orientation nucléaire $< I_{z} >_{f}$ de l'état fondamental (³He, 1¹S₀) est transférée par les collisions dans la décharge à différents niveaux excités de ³He, où elle se transforme partiellement en orientation électronique $< J_{z} >$ (cf. § B,I,1); il en résulte une polarisation circulaire des raies de ³He émises par la décharge. Celle-ci permet donc de détecter les résonances de (³He, 1¹S₀) et des deux niveaux hyperfins de (³He, 2³S₁).

- 118 -

De même, dans le cas des mélanges ³He-⁴He, nous avons vu au § 1 que les collisions d'échange "croisées" assurent un couplage entre les orientations électroniques de (⁴He, 2³S₁) et (³He, 2³S₁), comme l'indique par exemple le schéma de la figure 33. De plus les collisions d'échange "croisées" aussi bien que les collisions entre 2 atomes de ³He couplent les orientations nucléaires de (³He, 2³S₁) et (³He, 1¹S₀) (cf. fig. 33). L'effet global des collisions d'échange de métastabilité dans un mélange ³He-⁴He est donc d'assurer un couplage entre les orientations des niveaux (³He, 1¹S₀), (³He, 2³S₁) et (⁴He, 2³S₁). Or, nous avons vu plus haut que l'orientation du spin nucléaire de ³He est partiellement transférée à divers états électroniques excités de ³He. C'est pourquoi si l'on mesure la polarisation circulaire des raies 5.876 Å ou 6.678 Å émises par les atomes de ³He, 1¹S₀), (⁴He, 2³S₁) et sous-niveaux F = 3/2 et F' = 1/2 de (³He, 2³S₁).

(b) Cas particulier de ⁴He pur

Signalons également l'existence d'un autre processus qui, sans faire intervenir les atomes ³He, permet d'utiliser la méthode que nous venons de décrire pour détecter la résonance de (⁴He, 2³S₁). Nous avons en effet constaté que, même si la cellule contient uniquement ⁴He pur, plusieurs raies triplets émises par la décharge sont polarisées circulairement ^(*) lorsqu'on oriente optiquement le niveau 2³S₁ de ⁴He; le plus fort taux de polarisation lumineuse, de l'ordre de quelques 10⁻⁴, est obtenu pour la raie $\lambda = 5.876$ Å (raie 3³D-2³P).

On peut expliquer ce résultat en supposant que, au cours du processus d'excitation d'un atome par la décharge à partir du niveau métastable $2^{3}S_{1}$, une partie de l'orientation du spin électronique \vec{S} de l'atome est conservée et se transforme, sous l'effet du couplage de structure fine $A\vec{L}.\vec{S}$, en orientation du moment orbital \vec{L} (**). Notons que les taux de polarisation lumineuse ainsi obtenus sont nettement plus faible (par un facteur de l'ordre de 10) que pour les processus décrits au § a pour le cas des mélanges ³He-⁴He.

(**) Signalons que tout récemment, un phénomène analogue a été observé par 0. NEDELEC et A. DOLERON dans le cas du cadmium [119].

(*) L'effet signalé ici doit être distingué d'un autre qui a été observé par SEVAST'YANOV et ZHITNIKOV ['''], puis étudié par SCHEARER et coll. ['¹⁸] : l'orientation du métastable 2³S₁ de "He se traduit également par une variation de la densité électronique dans la décharge, et donc de l'intensité des raies émises par le gaz. (c) Origine des signaux dans notre expérience.

Pour la plupart des vérifications expérimentales que nous avons effectuées avec des mélanges ³He-⁴He, les résonances détectées correspondent donc à la polarisation des raies de ³He : elles traduisent les variations de l'orientation nucléaire stationnaire de ³He. Ceci justifie a posteriori qu'au § 4 nous ayons déterminé les formes de courbes de résonance de (⁴He, 2³S₁) et (³He, 2³S₁) en calculant les variations de $< I_z >_f$ au voisinage de ces résonances.

Cependant, aux très faibles pressions partielles de ³He dans ⁴He, le processus de détection (β) semble devenir prépondérant : nous observons alors les signaux de résonance principalement sur la polarisation des raies émises par des atomes ⁴He excités à partir de (⁴He, 2³S₁). Le calcul des signaux de résonance dans cc cas serait à reprendre; il faudrait déterminer les variations de < S_z > (et non plus de < I_z >_f) au voisinage des résonances. On obtiendrait ainsi l'expression des signaux de détection, qui présenteraient une intensité et un élargissement en fonction de ω_{lm} différents de ceux calculés pour < I_z >_f; cependant il est bien évident qu'on trouverait les mêmes valeurs pour les largeurs des courbes de résonance extrapolées à $\omega_{lm} = 0$; celles-ci en effet ne dépendent que de la durée de vie des cohérences dans ces niveaux, qui est déterminée par les collisions d'échange de métastabilité.

β) <u>Résultats expérimentaux pour un mélange contenant 50% de ³He</u> et 50% de ⁴He

Sur la figure 35 nous avons représenté les signaux obtenus avec une cellule contenant 0,050 torr de ³He et 0,050 torr de ⁴He. Les trois résonances correspondent aux 2 niveaux hyperfins F = 3/2 et F' = 1/2 de (³He, 2³S₁), ainsi qu'à (⁴He, 2³S₁). Elles sont saturées et apparaissent avec des largeurs du même ordre de grandeur. Sur la figure 36 nous avons porté le carré des largeurs (en Gauss) de ces trois résonances, en fonction du carré ω_{lm}^2 de l'intensité du champ de radiofréquence. On peut chercher à comparer les pentes de ces trois droites aux prévisions théoriques. D'après (128), pour $\frac{p_4}{p} = \frac{1}{2}$:

 $\frac{(\Delta \omega^{3/2})^2 - ({}^0\Delta \omega^{3/2})^2}{(\Delta \omega^{1/2})^2 - ({}^0\Delta \omega^{1/2})^2} = 2,0$ Si ces largeurs sont exprimées en Gauss, ce rapport vaut 8,0. De même : $\frac{(\Delta \omega^{3/2})^2 - ({}^0\Delta \omega^{3/2})^2}{(\Delta \omega^{(^4}\text{He}))^2 - ({}^0\Delta \omega^{(^4}\text{He}))^2} = 0,80$, ce qui équivaut à 1,8 pour





les largeurs en Gauss. Les valeurs expérimentales de ces rapports des élargissements des courbes sont déterminées à partir de la figure 36 (où les largeurs sont exprimées en Gauss); le rapport des pentes des droites correspondant aux niveaux F = 3/2et F' = 1/2 de (³He, 2³S₁) vaut : (8,9 ± 1,3). De même on détermine que le rapport des pentes correspondant au niveau F = 3/2 de (³He, 2³S₁) et au niveau (⁴He, 2³S₁) est égal à (1,55 ± 0,3). Ces valeurs expérimentales, compte tenu de leurs barres d'erreur, sont en bon accord avec les prévisions théoriques.

De la figure 36 on déduit que les largeurs des résonances, extrapolées à $\omega_{lm} = 0$, valent respectivement pour les niveaux F = 3/2 et F' = 1/2 de (³He, 2³S₁) et pour (⁴He, 2³S₁) : 59 mGs, 35 mGs et 26 mGs. On peut comparer ces valeurs aux expressions théoriques (123), (125) et (127). Le rapprochement est encore plus simple en se reportant au diagramme de la figure 37; nous l'expliquons au paragraphe suivant.

γ) Largeurs des résonances dans les différents niveaux métastables 2³S₁ pour les mélanges ³He-⁴He

Sur la figure 37, nous avons porté en ordonnées les largeurs en milligauss des courbes de résonance extrapolées à $\omega_{lm} = 0$, pour les niveaux F = 3/2 et F' = 1/2 de (³He, 2³S₁) et (⁴He, 2³S₁). En abscisse, figure la concentration des atomes de ³He dans le mélange des deux isotopes. La pression totale est constante et égale à 0,1 torr. Les droites sont théoriques. Elles sont déduites des formules (123), (125) et (127), corrigées par les facteurs de Landé des trois niveaux (4/3 et 8/3 pour F = 3/2 et F' = 1/2 de (³He, 2³S₁); 2 pour (⁴He, 2³S₁)). On a tenu compte de la différence des vitesses thermiques des 2 isotopes. Ce diagramme des largeurs en milligauss équivaut complètement au diagramme de la figure 34, où les largeurs étaient exprimées en unités de pulsation. Les droites théoriques de la figure 37 ont été ajustées sur un point expérimental : la largeur de la résonance du sous-niveau F' = 1/2 de (³He, 2³S₁) dans le cas de ³He pur, dont la valeur a été mesurée avec une bonne précision au chapitre précédent (voir par exemple la figure 32).

Sur la figure 37, les points sont expérimentaux. Nous y avons indiqué les barres d'erreur relatives à la détermination de la largeur des résonances après l'extrapolation des mesures à ω_{lm} = 0. Remarquons qu'il faudrait également

- 121 -

faire intervenir l'erreur sur la concentration de ³He et la pression totale, liée à la méthode de remplissage des cellules à mélange des 2 isotopes (nous l'évaluons à 5%).

Compte tenu de ces erreurs, on constate donc que les résultats expérimentaux sont en très bon accord avec les prévisions théoriques. Ainsi pour une concentration de ³He de 50% et une pression totale de 0,1 torr (cas envisagé au paragraphe précédent), on lit sur les droites de la figure 37 les valeurs théoriques des largeurs des résonances, soit respectivement 58,6, 36,5 et 26,8 mGs pour les niveaux F = 3/2 de (³He, 2³S₁), F' = 1/2 de (³He, 2³S₁) et (⁴He, 2³S₁); ces valeurs sont très voisines de celles trouvées expérimentalement (59, 35 et 26 mGs).

Ce bon accord indique d'abord que les hypothèses faites au début du calcul sont correctes : en particulier nous avons supposé que la section efficace des collisions d'échange de métastabilité "croisées" σ (³He, ⁴He) était égale à celle des collisions d'échange dans ³He pur, soit σ (³He, ³He); la vérification expérimentale que nous avons faite montre bien que, à 10% près, l'égalité σ (³He, ⁴He) = σ (³He, ³He) est valable à la température ordinaire.

D'une façon générale, on peut dire en conclusion que les résultats expérimentaux obtenus avec les mélanges ³He-⁴He confirment de façon très satisfaisante toutes les prévisions théoriques sur les largeurs des courbes de résonance, déduites de l'aspect angulaire des collisions d'échange de métastabilité. FIGURE 37 : Largeurs des courbes de résonance du niveau métastable 2³S₁ pour des mélanges ³He-⁴He en proportions variables. La pression totale est constante (0,1 torr). Les points sont expérimentaux, les droites théoriques.



B.IV MESURE DU RAPPORT ENTRE LES MOMENTS MAGNETIQUES DU NIVEAU 2³S₁ DE ⁴He ET DU NIVEAU FONDAMENTAL DE ³He

Nous décrivons dans ce chapitre une expérience que nous avons réalisée à l'aide d'un mélange des deux isotopes ³He et ⁴He, soumis à une décharge. Nous avons vu au chapitre précédent que l'on peut orienter simultanément par pompage optique le niveau métastable 2³S1 de ⁴He et le niveau fondamental 1¹S₀ de ³He. Ceci nous a permis de mesurer avec une grande précision le rapport de leurs fréquences de résonance respectives dans un même champ magnétique [94]. La détermination expérimentale du moment magnétique de (⁴He, $2^{3}S_{1}$) présente en effet l'intérêt de pouvoir être comparée à des résultats théoriques d'une très grande précision. En particulier, comme nous l'avons vu dans l'introduction, cette comparaison permet de tester la validité des différentes corrections relativistes à apporter au moment magnétique d'un atome à deux électrons, que l'on peut évaluer à partir de l'équation de Breit [¹²⁰]. Aussi nous commençons par rappeler au § 1 les résultats théoriques concernant le moment magnétique μ_{1} (⁴He, 2³S₁) du niveau 2³S₁ de ⁴He. Puis nous décrivons les résultats de notre mesure (§ 2), en insistant spécialement sur les différentes vérifications que nous avons effectuées de façon à éliminer les erreurs systématiques susceptibles de la fausser (§ 3). Enfin, nous comparons au § 4 la valeur que nous obtenons pour le rapport μ_{τ} (⁴He, 2³S₁) / μ_{τ} (³He, 1¹S₀) aux résultats expérimentaux antérieurs, ainsi qu'aux prévisions théoriques.

<u>Rappels sur la valeur théorique du moment magnétique du niveau</u> métastable 2³S₁ de ⁴He

Le niveau métastable $2^{3}S_{1}$ de ⁴He correspond à une configuration électronique ls,2s : son moment magnétique provient du spin de chacun des deux électrons de l'atome. Son facteur de Landé g_J est donc très voisin du facteur de Landé de spin g_S de l'électron libre; il en diffère cependant par quelques corrections, de l'ordre de 10⁻⁵ en valeur relative, dont nous discutons ici l'origine physique; elles ont été calculées par PERL et HUGHES [⁹⁵] à partir de l'équation

- 123 -

de Breit; nous les avons indiquées dans la dernière colonne du tableau IX. Celui-ci rassemble les résultats théoriques pour les facteurs de Landé de plusieurs systèmes atomiques très simples, présentant un moment magnétique d'origine analogue; en plus de l'électron libre, nous y avons fait figurer l'état fondamental 1²S_{1/2} de l'hydrogène ainsi que des ions hydrogénoïdes, en particulier l'ion He⁺ [¹²¹][¹²²].

Dans la première ligne du tableau IX, nous avons indiqué la valeur théorique des corrections radiatives. On sait qu'elles sont à l'origine du moment magnétique anormal de l'électron libre et qu'elles résultent du fait que celui-ci émet et réabsorbe continuellement des photons virtuels. Elles ont été calculées au moyen de l'électrodynamique quantique avec une très grande précision, jusqu'à l'ordre α^3 compris (α est la constante de structure fine : $\alpha \approx \frac{1}{137}$). Dans le tableau IX nous donnons leur valeur pour l'électron libre, en nous limitant à une précision de 10⁻⁷ en valeur relative [1²³]; leur ordre de grandeur est de 10⁻³. Lorsque l'électron est lié dans un atome, les corrections radiatives sont différentes de celles calculées pour l'électron libre : des diagrammes d'électrodynamique supplémentaires interviennent, dont la contribution correspond à des termes en α d'ordre supérieur à 2. C'est pourquoi, étant donné la précision choisie pour le tableau IX, nous avons donné aux corrections radiatives la même valeur pour les atomes considérés que pour l'électron libre. Remarquons que PERL et HUGHES ont fait également cette hypothèse pour leur calcul de $\mu_{\rm J}$ (⁴He, 2³S₁) [⁹⁵].

De plus, lorsque l'électron est lié, il y a un autre type d'effet qui modifie le moment magnétique du spin électronique et qui est d'origine relativiste. On peut dire, d'une façon très schématique, que cette correction est liée à la variation de la masse m de l'électron en rapport avec sa vitesse de rotation autour du noyau de l'atome. Son existence a été mise en évidence par BREIT et elle a été calculée d'une façon générale par MARGENAU [⁹⁶][¹²¹]. Elle est proportionnelle à l'énergie cinétique moyenne < T > de l'électron sur son orbite. Dans le cas des atomes hydrogénoïdes, cette correction croît comme le carré du numéro atomique Z; elle est donc 4 fois plus importante pour l'ion He⁺ que pour l'hydrogène dans l'état fondamental. Dans le cas de (⁴He, 2³S₁), elle a été évaluée par PERL et HUGHES [⁹⁵], qui la trouvent égale à -38,7.10⁻⁶.

- 124 -

VALEURS THEORIQUES DE (<mark>2 - 2</mark>) 2

Corrections	électron libre	(H, 1 ² S _{1/2})	(He ⁺ , 1 ² S _{1/2})	(⁴ He, 2 ³ S1)
radiatives	$\frac{\alpha}{2\pi} - 0,328 \frac{\alpha^2}{\pi^2} = 1.159,6.10^{-6}$	1.159,6.10 ⁻⁶	1.159,6.10 ⁻⁶	1.159,6.10 ⁻⁶
relativistes	0	$-\frac{\alpha^2}{3} = -17, 7.10^{-6}$	$-\frac{z^2\alpha^2}{3} = -70, 8.10^{-6}$	$-\frac{1}{3} \frac{< T >}{mc^2} = -38, 7.10^{-6}$
diamagnétiques	0	o	O	$-\frac{1}{6} < \frac{e^2}{r_{12}} > = -2, 3.10^{-6}$
totales	1.159,6.10 ⁻⁶	1.141,9.10 ⁻⁶	1.088,8.10 ⁻⁶	1.118,6.10 ⁻⁶



TABLEAU IX

Dans ce tableau figurent les valeurs du facteur de Landé de spin g_S pour l'électron libre et les facteurs de Landé électroniques g_J pour les atomes considérés Enfin, si l'atome possède plus d'un électron, comme c'est le cas pour (⁴He, 2³S₁), il y a lieu de tenir compte également de corrections résultant de l'interaction entre les différents électrons. Elles proviennent d'un effet de blindage diamagnétique. En effet, lorsqu'on applique un champ magnétique extérieur \vec{B}_0 à l'atome, le champ vu par le spin de chaque électron est plus faible que \vec{B}_0 , car il faut lui soustraire le champ créé par le moment diamagnétique qui est induit par \vec{B}_0 pour chacun des autres électrons. Cette correction a été calculée par PERL et HUGHES pour (⁴He, 2³S₁) [[⁹⁵]]; elle est proportionnelle à $< \frac{e^2}{r_{12}} >$, l'énergie moyenne d'interaction électrostatique entre les deux électrons (r_{12} étant leur distance), et vaut -2,3.10⁻⁶.

Dans la dernière ligne du tableau IX, nous avons indiqué la somme de toutes les corrections précédentes au facteur de Landé g_J des différents systèmes atomiques considérés. En bas du tableau, nous avons reporté ces valeurs sur un graphique, où nous avons rangé ces facteurs de Landé par valeur croissante : on fait ainsi apparaître leurs différences relatives, qui sont de l'ordre de quelques 10⁻⁵. On y lit par exemple : $g_J(H, 1^2S_{1/2}) - g_J(^4He, 2^3S_1) = 23,3.10^{-6}$ Signalons que PERL et HUGHES attribuent à cette valeur théorique une erreur de 10^{-6} , qui est une estimation de l'ordre de grandeur des termes radiatifs négligés dans le calcul du moment magnétique de (⁴He, 2³S₁) [⁹⁵]. Ces auteurs donnent :

$$\mathbf{x} = \frac{g_{J}^{(^{4}\text{He}, 2^{3}\text{S}_{1})}}{g_{J}^{(\text{H}, 1^{2}\text{S}_{1/2})}} = 1 - (23, 3 \pm 1, 0) \ 10^{-6}$$
(132)

On voit donc que pour qu'une mesure du facteur de Landé de l'un quelconque des systèmes atomiques considérés ici soit un test intéressant de la validité des corrections précédemment évoquées, il faut que la précision d'une telle détermination expérimentale soit supérieure ou égale à 10^{-6} . En ce qui concerne plus particulièrement (⁴He, 2³S₁), DRAKE, HUGUES et coll. avaient déjà effectué une mesure du rapport x avec une précision de l'ordre de 10^{-6} , en utilisant des jets atomiques [⁹⁷]; signalons que cette expérience est actuellement reprise par la même équipe de recherches aux Etats-Unis. Etant donné l'intérêt que présente sa comparaison avec la théorie, nous avons entrepris la mesure de μ_{j} (⁴He, 2³S₁) par une méthode différente et indépendante, dans le but d'augmenter sa précision.

- 125 -

2) Description de la mesure; dispersion des résultats

a) Dispositif expérimental

Le montage expérimental est tout à fait analogue à celui décrit au § B, I, 3 et représenté sur la figure 28. La cellule de résonance contient un mélange de ³He et de ⁴He sous une pression totale de l'ordre de quelques dizièmes de torrs. Le champ magnétique statique \vec{B}_0 , parallèle à la direction de pompage, a une valeur voisine de 150 Gs. La détection optique s'effectue dans la direction de \vec{B}_0 , sur l'ensemble des raies λ = 5.876 Å et λ = 6.678 Å (filtre Kodak Wratten 22); comme nous l'avons vu au § B,III,5, α , on sait qu'on peut détecter simultanément les résonances magnétiques de (⁴He, 2³S₁) et (³He, 1¹S₀) en observant la polarisation circulaire des raies émises par la décharge dans le mélange ³He-⁴He. Pour produire ces résonances, un premier champ magnétique \vec{B}_1 cos (2 π vt), oscillant à une fréquence v de l'ordre de 450 MHz, est appliqué dans une direction perpendiculaire à \vec{B}_0 , à l'aide d'une ligne accordée constituée par 4 fils de Lecher (un tel système permet d'obtenir en son centre une bonne homogénéité pour \vec{B}_0 , aussi bien en intensité qu'en direction; il est représenté sur la figure 38) : on produit ainsi la résonance du niveau $2^{3}S_{1}$ de ⁴He. Un autre dispositif de radiofréquence fournit un champ magnétique \vec{B}'_1 cos (2 $\pi\nu$ 't) oscillant à une fréquence ν ' de l'ordre de 0,5 MHz, qui correspond à la résonance nucléaire de ³He. Les deux fréquences v et v! sont issues de deux synthétiseurs Schlumberger pilotés par le même quartz, dont la stabilité est de l'ordre de 10⁻⁹.

La figure 39 montre l'aspect caractéristique des signaux que nous avons obtenus en opérant de la façon suivante : le champ oscillant \vec{B}_1 cos $(2\pi\nu t)$ étant maintenu en permanence avec une fréquence ν constante, on fait lentement varier le champ magnétique statique B_0 autour de la valeur correspondant à la résonance du niveau métastable de ⁴He; le second champ oscillant B'_1 cos $(2\pi\nu't)$ est appliqué simultanément, de manière à obtenir la résonance du niveau fondamental de ³He; en fait, on trace une telle résonance, puis on change en cours de l'enregistrement la fréquence ν' : on obtient alors un second pic de résonance; la figure 39 montre un exemple d'enregistrement d'un tel signal. Pour déterminer avec précision le centre de la courbe de résonance de (⁴He, 2³S₁), on trace un certain nombre de "diamètres" de la courbe, dont les milieux sont alignés sur une droite sensiblement verticale (de plus, on s'assure ainsi que la courbe obtenue

- 126 -



FIGURE 38 : Dispositif créant le champ magnétique oscillant Å1 cos (2πνt) (échelle 1/2). Longueur des 4 fils de Lecher : 50 cm, soit 3λ/4 pour v = 435 MHz. La cellule est placée à une distance égale à $\lambda/2$ du court-circuit (maximum de B_1 , minimum du champ électrique associé).



FIGURE 39 : Signal de résonance obtenu avec une cellule de 3,2 cm de diamètre contenant 0,4 torr de ⁴He et 0,010 torr de ³He. Le champ B_0 est balayé autour de 150 Gs. La résonance la plus large est celle du niveau 2³S₁ de ⁴He (v = 436 MHz). Les deux résonances fines, corres-pondant au niveau fondamental 1¹S₀ de ³He, sont enregistrées pour deux valeurs différentes de v', voisines de 0,5 MHz.

est parfaitement symétrique). Les deux pics de résonance nucléaire de (³He, 1¹S₀), visibles sur la figure 39, sont beaucoup plus étroits que la courbe de résonance de (⁴He, 2³S₁); on repère la position de leur maximum en leur soustrayant un fond continu correspondant à la résonance de (⁴He, 2³S₁); puis, par interpolation, on détermine la fréquence de résonance nucléaire v_{I} de (³He, 1¹S₀) correspondant au maximum de la courbe de résonance de (⁴He, 2³S₁); on détermine ainsi le rapport des fréquences de résonance v_{J} et v_{I} des deux niveaux étudiés dans le même champ magnétique B₀, c'est-à-dire, compte tenu des moments cinétiques des deux niveaux, la moitié du rapport μ_{J} (⁴He, 2³S₁) / μ_{I} (³He, 1¹S₀) de leurs moments magnétiques.

Nous avons vérifié la linéarité du balayage du traceur de courbes en enregistrant des pics d'étalonnage correspondant à des fréquences v' croissantes et régulièrement espacées de la résonance nucléaire de ³He; de plus, nous avons fait systématiquement varier le couple de valeurs de v' choisies pour chaque enregistrement (en particulier les deux valeurs de v' ne sont pas nécessairement symétriques par rapport à v_T).

Pour l'enregistrement de la figure 39, la pression partielle de ⁴He est de 0,4 torr, celle de ³He de 0,010 torr. La raison du choix de ces pressions est la suivante : comme nous l'avons vu plus haut, l'échange de métastabilité, pour détruire l'orientation du niveau $2^{3}S_{1}$ de ⁴He, fait intervenir nécessairement des collisions entre les atomes (⁴He, $2^{3}S_{1}$) et (³He, $1^{1}S_{0}$) (et non entre 2 atomes de ⁴He). C'est pourquoi nous avons utilisé de faibles pressions partielles de ³He, en réalisant un compromis entre deux exigences : élargir le moins possible la courbe de résonance de ⁴He et obtenir des pics de résonance encore visibles pour ³He.

β) Mesure du rapport des moments magnétiques; dispersion des résultats expérimentaux

Nous donnons sur la figure 40 l'histogramme des valeurs du rapport $v_J({}^{4}\text{He}, 2{}^{3}\text{S}_{1}) / v_I({}^{3}\text{He}, 1{}^{1}\text{S}_{0})$ que nous avons trouvées en répétant 100 fois la mesure avec la même cellule. Celle-ci est une sphère de 3,2 cm de diamètre contenant 0,40 torr de ⁴He et 10 millitorr de ³He (c'est l'une de celles qui nous ont donné les résultats les plus précis). La dispersion statistique des 100 points expérimentaux est sensiblement gaussienne, comme on peut le voir sur la figure 40. Un ordre de grandeur de l'erreur de mesure pour chaque point expérimental est donné par l'écart quadratique moyen Δ de cette distribution (qui correspond environ à 1% de la largeur de la raie de résonance). Pour le résultat de l'ensemble des n mesures faites avec cette cellule, nous avons adopté comme barre d'erreur le double de l'écart standard Δ ' correspondant ($\Delta' \approx \frac{\Delta}{\sqrt{n}}$) : en l'absence d'erreur systématique, ceci donne au résultat annoncé un taux de confiance de l'ordre de 95%.

Nous avons effectué un grand nombre d'autres mesures en changeant de cellule et en faisant varier successivement les divers paramètres de l'expérience; pour chaque série de mesures, nous avons fait la moyenne d'une vingtaine de résultats au moins et pris la convention précédente pour la barre d'erreur choisie. Le résultat final que nous donnons est :

$$\frac{\nu_{\rm J}}{\nu_{\rm I}} = \frac{1}{2} \frac{\mu_{\rm J}({}^{4}{\rm He}, 2{}^{3}{\rm S}_{1})}{\mu_{\rm T}({}^{3}{\rm He}, 1{}^{1}{\rm S}_{0})} = 864,02392 \pm 6.10^{-5}$$
(133)

Sa précision relative est supérieure à 10⁻⁷. Signalons dès maintenant que toutes les vérifications que nous avons effectuées et qui sont décrites au paragraphe suivant nous ont donné des résultats compris dans les barres d'erreur de la valeur (133).

3) Discussion des erreurs systématiques

Nous avons effectué un grand nombre d'expériences complémentaires de façon à éliminer le plus grand nombre possible de sources d'erreurs systématiques. Nous avons en particulier cherché à mettre en évidence un déplacement éventuel des fréquences de résonance sous l'influence des facteurs suivants :

- le faisceau lumineux de pompage, qui induit des transitions réelles et virtuelles entre les niveaux atomiques;
- le niveau de la décharge, qui peuple divers niveaux de l'hélium, entre lesquels il peut y avoir "circulation de cohérence";
- les inhomogénéités du champ magnétique statique, qui peuvent être "moyennées" de façon différente par les atomes (⁴He, 2³S₁) et (³He, 1¹S₀);


. le champ magnétique statique dont la valeur élevée est susceptible de découpler partiellement les moments cinétiques orbitaux et de spin des niveaux étudiés.

L'ensemble des résultats de cette étude est rassemblé dans le tableau X et la figure 41.

α) <u>Influence du faisceau lumineux de pompage</u>

On sait [¹⁸] que, sous l'influence d'un faisceau lumineux, les fréquences de résonance des atomes peuvent subir des déplacements de deux types : l'un provient des transitions réelles induites dans la vapeur atomique par le faisceau lumineux lorsqu'il est résonnant; l'autre des transitions virtuelles si le faisceau est non résonnant. Dans l'expérience décrite ici, on peut prévoir que le déplacement de la fréquence de résonance de l'atome de ⁴He métastable sous l'effet des transitions réelles, induites vers le niveau 2³P par la raie $\lambda =$ 10.830 Å, est très faible : en effet la valeur élevée du champ magnétique statique (B₀ = 150 GS) s'oppose à la "circulation de la cohérence" entre les niveaux 2³S₁ et 2³P.

Le déplacement de fréquence produit par le champ magnétique fictif lié aux transitions virtuelles [¹²⁴], [¹²⁵] est a priori l'effet le plus important; en effet chacune des 3 composantes de la raie $2^{3}P_{0,1,2} \leftrightarrow 2^{3}S_{1}$ émises par la lampe (distantes de quelques largeurs Doppler) est non résonnante pour les transitions atomiques associées aux deux autres composantes. C'est donc ce type de déplacement que nous avons d'abord cherché à mettre en évidence. On sait qu'il change de signe lorsque la polarisation lumineuse passe de σ^+ à σ^- . Nous avons donc fait deux séries de mesures indépendantes en intervertissant les axes de la lame quart d'onde sur le faisceau de pompage. Les deux résultats obtenus sont indiqués dans le tableau X : on voit qu'ils sont tous deux compris dans les barres d'erreur de la valeur donnée en (133); leur différence correspond à un déplacement de 9 hertz de la fréquence de résonance du niveau métastable 2³S₁ de ⁴He : nous pensons que ce chiffre, bien qu'inférieur à la barre d'erreur de (133), est significatif de l'effet observé car nous l'avons retrouvé dans des mesures analogues en champ plus bas; l'effet est du même ordre de grandeur, mais plus faible, que celui mesuré par SCHEARER [126], [127]. Nous avons également effectué des mesures en changeant le sens du champ \vec{B}_0 , ce qui constitue une vérification équivalente.

β) Influence du niveau de la décharge

Un effet analogue à celui du faisceau lumineux sur les niveaux d'énergie des atomes peut être provoqué par la décharge entretenue dans la vapeur : de nombreux niveaux excités de l'hélium sont ainsi peuplés, dans lesquels existent des orientations couplées et entre lesquels il peut y avoir "circulation de cohérence", ce qui entraîne un déplacement des diverses résonances.

En particulier, nous avons vu au § B,II,4,6 que dans le cas de ³He pur, l'échange de métastabilité entre (³He, 1¹S₀) et (³He, 2³S₁) produit un déplacement de la fréquence de résonance nucléaire de (³He, 1¹S₀) [[⁹⁰]][¹⁰⁹]][¹¹⁰]]. Sauf aux très faibles valeurs de B₀, cet effet est une fonction décroissante de B₀ et croissante de la pression. Dans notre expérience, la cellule contient un mélange de ³He et ⁴He où la proportion de ³He est très faible : le couplage par échange de métastabilité entre les atomes (³He, 1¹S₀) et (⁴He, 2³S₁), que nous avons décrit au paragraphe B,III,5,α, a doit produire un déplacement de la fréquence de résonance nucléaire de ³He tout à fait analogue à celui que nous avons expliqué pour ³He pur; on peut évaluer l'ordre de grandeur de cet effet en appliquant les résultats des calculs donnés dans la référence [[¹⁰⁸]] au cas où B₀ vaut 150 Gs et la pression 0,5 torr (ordre de grandeur de ces paramètres dans notre expérience). On trouve ainsi que le déplacement de la fréquence nucléaire de ³He est compris entre 10⁻⁸ et 10⁻⁹ en valeur relative.

Nous nous sommes cependant assurés expérimentalement que cet effet est bien négligeable, compte tenu de la précision de notre mesure. Il est clair que ce déplacement de fréquence est une fonction linéaire du nombre d'atomes métastables dans la cellule; il varie donc avec l'intensité de la décharge. Aussi avons-nous effectué des mesures à des niveaux de décharge très différents (l'intensité lumineuse émise par la cellule variant dans un facteur 4 environ). Les résultats (voir tableau X), pour $B_0 = 150$ Gs et $B_0 = 50$ Gs, ne présentent pas d'écart significatif avec la valeur (133).

γ) Influence de la pression

De même, on peut concevoir un déplacement de la fréquence de résonance du niveau 2³S₁ de ⁴He sous l'influence des collisions d'échange de métastabilité avec ³He (cf. § B,III,4,6); mais ce déplacement doit être moins important

Conditions de mesures	Nombre de mesures	Valeur obtenue pour V _J (⁴ He, 2 ³ S ₁) V _I (³ He, 1 ¹ S ₀)	Type de cellule utilisée		
			Diamètre en mm	Pression de ⁴ He en torr	Pression de ³ He en milli- torr
Faisceau pompant de polarisation σ ⁺	50	$864,02392 \pm 11.10^{-5}$	32	0,40	10
Faisceau pompant de polarisation σ	50	$864,02394 \pm 11.10^{-5}$	32	0,40	10
Faisceau pompant atténué par un facteur 3	15	$864,02392 \pm 18.10^{-5}$	23	0,76	16
Intensité de décharge maximale	18	864,023 <u>91</u> ± 16.10 ⁻⁵	23	0,76	16
Intensité de décharge minimale	21	$864,02392 \pm 21.10^{-5}$	23	0,76	16
Cellule déplacée de 7 mm vers le haut	21	$864,02393 \pm 17.10^{-5}$	23	0,76	16
Cellule déplacée de 7 mm vers le bas	23	$864,02393 \pm 13.10^{-5}$	23	0,76	16
Cellule déplacée de 7 mm_parallèle- ment à Bo	22	864,023 <u>92</u> ± 12.10 ⁻⁵	23	0,76	16
Décharge excitée par 2 électrodes parallèlement à B ₀	23	864,023 <u>95</u> ± 14.10 ⁻⁵	23	0,76	16
Ensemble des mesu- res à 50 Gauss	[.] 90	864,023 <u>92</u> ± 18.10 ⁻⁵	32	0,40	10

TABLEAU X



que celui discuté au paragraphe précédent, car la pression partielle de ³He est très faible. Nous avons fait varier celle-ci pour vérifier que cet effet est bien négligeable. Il était également important de s'assurer que tous les autres types de collisions subies par les atomes en phase vapeur n'introduisent aucun déplacement des fréquences de résonance étudiées. Aussi avons-nous fait varier la pression totale dans la cellule (c'est-à-dire en fait celle de ⁴He) entre 0,4 et 1,2 torr. Les résultats de cette étude sont présentés sur la figure 41. On ne constate pas de variation notable de la valeur mesurée en fonction de la pression de ⁴He, ni en fonction de la pression partielle de ³He (qui vaut 10, 13 et 15 millitorr respectivement pour les mesures (a), (b) et (c) de la figure 41). Ce résultat n'est d'ailleurs pas surprenant, car dans tous les cas les pressions utilisées sont très faibles.

δ) Influence des inhomogénéités du champ magnétique statique

Les deux types d'atomes dont nous mesurons le rapport des moments magnétiques sont contenus dans la même cellule. On pourrait donc penser qu'ils "moyennent" de la même manière les inhomogénéités du champ magnétique statique \vec{B}_0 , qui, dans cette hypothèse, ne joueraient aucun rôle important. En fait nous avons constaté le contraire. La raison en est que les atomes métastables de ⁴He sont détruits par collision sur les parois de la cellule, tandis que les atomes de ³He dans l'état fondamental rebondissent un très grand nombre de fois sur ces parois avant de perdre leur orientation nucléaire : les deux sortes d'atomes sont ainsi soumis à des conditions aux limites complètement différentes. Leur répartition spatiale dans le volume de la cellule n'est pas la même; en particulier les divers modes de diffusion des atomes métastables de ⁴He peuvent intervenir.

C'est pourquoi nous avons étudié très soigneusement le rôle des inhomogénéités de \vec{B}_0 . Nous l'avons mis nettement en évidence au cours de nos premières expériences, où nous utilisions des cellules sphériques de 6,3 cm de diamètre : un déplacement de quelques millimètres de la cellule au centre du montage entraînait des variations importantes du rapport des fréquences de résonance mesurées pour ('He, 2³S₁) et (³He, 1¹S₀); nous constations un effet encore plus important en modifiant la position des électrodes qui entretiennent la décharge dans la cellule (on peut ainsi créer des gradients de densité de métastables d'hélium qui varient dans des directions différentes) : les variations

- 131 -

relatives du rapport mesuré pouvaient ainsi atteindre un ordre de grandeur de 10⁻⁵ !

L'examen de la carte du champ magnétique dans notre expérience explique ces résultats : les bobines de Helmholtz alimentées en haute tension qui créent le champ magnétique statique \vec{B}_0 fournissent une très bonne homogénéité du champ (de l'ordre de 10⁻⁵) sur un volume d'environ 4 × 4 × 4 cm au centre des bobines, la valeur de B₀ présentant dans cette région un "méplat" très prononcé ^(*) On voit qu'à l'intérieur de cellules sphériques de 6,3 cm de diamètre, une certaine fraction des atomes se trouve nécessairement placée dans une région où le champ est beaucoup moins homogène.

Nous avons donc, pour toutes les mesures rapportées ici, utilisé des cellules plus petites, de diamètre 3,2 ou 2,3 cm. On réduit ainsi considérablement l'effet des inhomogénéités de \vec{B}_0 . Il y a en fait deux raisons à ceci : d'une part la cellule est contenue entièrement dans le volume où \vec{B}_0 présente un "méplat"; d'autre part l'uniformité de la décharge (et donc de la densité des métastables d'hélium créés) est très nettement meilleure. Nous avons alors vérifié la disparition complète des variations du rapport des fréquences signalées plus haut. Les résultats des vérifications correspondantes sont portés sur le tableau X. On constate qu'un déplacement de la cellule de 7 mm parallèlement à l'une quelconque des trois directions de l'espace n'entraîne aucun changement significatif du résultat des mesures; il en est de même pour les modifications de position des électrodes utilisées pour exciter la décharge. Enfin les deux tailles de cellules employées donnent les mêmes résultats.

ε) Influence de l'intensité du champ magnétique statique

Nous avons effectué la plupart de nos mesures dans un champ magnétique B_0 de 150 gauss ^(**). Nous avons toutefois contrôlé qu'à cette valeur du champ les énergies des niveaux atomiques varient bien linéairement en fonction de B_0 , à la précision de notre mesure près. Nous avons donc éliminé l'hypothèse

- 132 -

^(*) Ces renseignements sont tirés des cartes du champ magnétique établies, pour les bobines utilisées ici, par F. GROSSETÈTE au moyen d'un dispositif de résonance de protons.

^(**) Signalons que les mesures de DRAKE et coll. [°'] ont été réalisées dans un un champ de 450 Gs.

d'un éventuel découplage partiel des variables orbitales et de spin des niveaux étudiés sous l'effet du champ magnétique. Pour cela nous avons effectué une autre série de mesures, dans un champ B_0 de 50 Gs. A cette occasion, nous avons repris les vérifications décrites en α) et β). Nous avons ainsi retrouvé, comme nous l'avons signalé plus haut, un déplacement lumineux de 9 Hz quand on passe du pompage en σ^+ au pompage en σ^- . La moyenne globale des 80 mesures effectuées à 50 Gs est donnée à la dernière ligne du tableau X. La précision de nos mesures est proportionnelle à B_0 ; c'est pourquoi la barre d'erreur donnée ici est plus grande qu'en (133) : on voit toutefois que les deux résultats sont en excellent accord, ce qui confirme la valeur trouvée en (133). Cette vérification permet également de conclure que le déplacement de Bloch-Siegert [¹²⁹] des raies de résonance est négligeable : ce déplacement est en effet inversement proportionnel à B_0^2 en valeur relative (son expression théorique montre d'ailleurs que, pour notre expérience, l'erreur relative qu'il introduit est de l'ordre de 10⁻⁹).

4) Comparaison avec les résultats antérieurs

Il n'existe pas, à notre connaissance, d'expérience antérieure où la quantité $\mu_J(^4\text{He}, 2^3\text{S}_1) / \mu_I(^3\text{He}, 1^1\text{S}_0)$ ait été directement mesurée. Aussi, pour comparer la valeur que nous avons trouvée pour ce rapport à des mesures antérieures, il est nécessaire de combiner les résultats de plusieurs expériences. Nous avons d'abord utilisé la valeur mesurée par DRAKE, HUGHES et coll. [97] pour le rapport des facteurs de Landé de (⁴He, 2³S₁) et de l'état fondamental de l'hydrogène atomique :

$$x = \frac{g_{J}({}^{4}\text{He}, 2^{3}\text{S}_{1})}{g_{J}(\text{H}, 1^{2}\text{S}_{1/2})} = \frac{1}{2} \frac{\mu_{J}({}^{4}\text{He}, 2^{3}\text{S}_{1})}{\mu_{J}(\text{H}, 1^{2}\text{S}_{1/2})}$$
(134)

Pour le moment magnétique $\mu_{I}({}^{3}\text{He}, {}^{1}\text{S}_{0})$, il existe une expérience de WILLIAMS et HUGHES $[\![^{130}]\!]$, qui déterminent le rapport y entre le moment nucléaire de ${}^{3}\text{He}$ et celui du proton dans l'hydrogène moléculaire :

$$y = \frac{\mu_{I}(^{3}He, 1^{1}S_{0})}{\mu_{P}(H_{2})}$$
(135)

Pour comparer notre résultat (133) à (134) et (135), il faut donc également connaître le rapport :

$$z = \frac{\mu_{J}(H, 1^{2}S_{V_{2}})}{\mu_{P}(H_{2})}$$
(136)

z peut lui aussi être obtenu, comme nous le verrons plus loin, à partir de mesures antérieures. La quantité que nous avons mesurée peut ainsi être calculée à partir des résultats correspondants, puisqu'elle est donnée par :

$$\frac{1}{2} \frac{\mu_{J}(^{4}\text{He}, 2^{3}\text{S}_{1})}{\mu_{T}(^{3}\text{He}, 1^{1}\text{S}_{0})} = \frac{xz}{y}$$
(137)

α) <u>Valeur de x</u>

Des expériences de jets atomiques, décrites dans les références [⁹⁷] et [⁹⁸], ont fourni la valeur suivante :

$$\mathbf{x} = 1 - (23, 3 \pm 0, 8) \ 10^{-6} \tag{138}$$

Sa précision relative est inférieure à celle de notre résultat (133). C'est ce même rapport qui a été calculé par PERL et HUGHES [⁹⁵], qui trouvent la valeur théorique (132) en bon accord avec (138).

β) Valeur de y

L'expérience de résonance magnétique de WILLIAMS et HUGHES [¹³⁰] en bon accord avec celle de ANDERSON [¹³¹], mais plus précise, donne pour ce rapport la valeur :

$$y = 0,76178685 \pm 8.10^{-8}$$
(139)

y est donc connu avec une précision comparable à celle de notre mesure.

γ) Valeur de z

Le rapport z peut être obtenu de deux manières différentes : (a) En utilisant le résultat très précis de la mesure de THAN MYINT et coll. [¹³²] [⁶⁶] effectuée à l'aide du maser à hydrogène :

$$\frac{\mu_{\rm J}({\rm H}, 1^2 {\rm S}_{1/2})}{\mu_{\rm p}({\rm H})} = 658,21070\underline{6} \pm 6.10^{-6}$$
(140)

(nous prenons ici la valeur donnée dans la référence $[[6^6]]$; elle correspond à la mesure la plus récente de ce rapport par ces auteurs, qui donnent une précision relative de l'ordre de 10^{-6}). Pour obtenir z à partir de (140), il faut tenir compte des corrections diamagnétiques du moment magnétique du proton, dues à la présence de l'électron. Pour l'hydrogène atomique, on a calculé théoriquement avec une grande précision $[[6^4]]$:

$$\sigma_{\rm p}({\rm H}) = 17,733 \ 10^{-6}$$
 (141)

Pour l'hydrogène moléculaire, RAMSEY a calculé [133] le coefficient de blindage :

$$\sigma_{\rm p}({\rm H}_2) = (26, 2 \pm 0, 3) \, 10^{-6}$$
 (142)

Cette valeur théorique est exactement confirmée d'une façon indirecte par les récents résultats expérimentaux rapportés dans la référence [66]. En combinant (140), (141) et (142), on obtient :

$$z = \frac{\mu_{J}(H, 1^{2}S_{1/2})}{\mu_{P}(H_{2})} = \frac{\mu_{J}(H, 1^{2}S_{1/2})}{\mu_{P}(H)} \times \frac{1 - \sigma_{p}(H)}{1 - \sigma_{p}(H_{2})} = 658,216\underline{28} \pm 20.10^{-5}$$
(143)

z est ainsi déterminé avec une erreur relative de 3.10^{-7} , qui provient uniquement de l'incertitude sur $\sigma_p(H_2)$.

(b) En utilisant le résultat expérimental de LAMBE [⁶⁵] :

$$\frac{\mu_{\rm J}({\rm H}, 1^2 {\rm S}_{1/2})}{\mu_{\rm p}({\rm H}_2 0)} = 658,215909 \pm 44.10^{-6}$$
(144)

Pour obtenir z, il faut multiplier cette expression par :

$$\frac{1 - \sigma_p(H_2O)}{1 - \sigma_p(H_2)} \simeq 1 + \sigma_p(H_2) - \sigma_p(H_2O)$$

Il existe deux mesures de RMN différentes et indépendantes pour le rapport des fréquences de résonance du proton dans H_2O et dans $H_2[1^{34}][1^{35}]$. D'après $[1^{34}]$:

$$\sigma_{\rm p}({\rm H}_2) - \sigma_{\rm p}({\rm H}_20) = (0,6 \pm 0,25).10^{-6}$$
 (145)

$$\sigma_{\rm p}({\rm H}_2) - \sigma_{\rm p}({\rm H}_20) = (0,3 \pm 0,42) 10^{-6}$$
 (146)

On voit qu'il y a un désaccord entre ces deux mesures : les conséquences n'en sont cependant pas très grandes, car l'écart entre $\sigma_p(H_2)$ et $\sigma_p(H_20)$ est très faible. Comme THAN MYINT et coll. [¹³²], nous adopterons la moyenne entre ces deux valeurs :

$$\sigma_{\rm p}({\rm H}_2) - \sigma_{\rm p}({\rm H}_20) = (0,45 \pm 0,5) \, 10^{-6}$$
 (147)

En combinant (144) et (147), on obtient :

$$z = 658,21621 \pm 34.10^{-5}$$
 (148)

L'accord entre les déterminations (143) et (148) de z est excellent. Leur précision est du même ordre; elle est environ 5 fois inférieure à celle de notre mesure (133), l'incertitude provenant principalement de la mauvaise connaissance des coefficients de blindage $\sigma_p(H_2)$ pour (143), $\sigma_p(H_2) - \sigma_p(H_20)$ pour (148).

δ) Combinaison des résultats précédents

En reportant (138), (139) et (143) dans (137), on obtient :

$$\frac{1}{2} \frac{\mu_{J}({}^{4}\text{He}, 2{}^{3}\text{S}_{1})}{\mu_{T}({}^{3}\text{He}, 1{}^{1}\text{S}_{0})} = 864,022\underline{46} \pm 74.10^{-5}$$
(149)

(l'erreur portée ici est la moyenne quadratique des erreurs des mesures combinées). De même, en utilisant (138), (139) et (148), on obtient :

$$\frac{1}{2} \frac{\mu_{\rm J} ({}^{4}{\rm He}, 2{}^{3}{\rm S}_{1})}{\mu_{\rm I} ({}^{3}{\rm He}, 1{}^{1}{\rm S}_{0})} = 864,022\underline{36} \pm 83.10^{-5}$$
(150)

La comparaison des valeurs (149) ou (150) à celle de notre mesure :

$$\frac{1}{2} \frac{\mu_{J}(^{4}\text{He}, 2^{3}\text{S}_{1})}{\mu_{I}(^{3}\text{He}, 1^{1}\text{S}_{0})} = 864,02392 \pm 6.10^{-5}$$
(133)

fait apparaître un net désaccord : l'écart correspond environ à 2 barres d'erreur de (149) ou (150) et à 20 barres d'erreur de notre mesure (133). Aussi discutonsnous maintenant quelques origines possibles de cette différence.

5) Discussion

Si l'on admet que notre résultat (133) n'est faussé par aucune erreur systématique (comme le suggère le grand nombre de vérifications que nous avons faites), on est conduit à se demander lequel des résultats antérieurs est susceptible d'être modifié.

La valeur du rapport z a été obtenue de deux manières complètement indépendantes, en combinant deux séries de résultats, dont certains sont théoriques; l'accord entre les deux déterminations (143) et (148) étant remarquable, il est très vraisemblable que la valeur attribuée à z est la bonne.

Pour le rapport y, on pourrait envisager que la mesure de la référence $[1^{30}]$, effectuée par résonance magnétique nucléaire sur des gaz comprimés à une forte pression (de l'ordre de 10⁵ fois plus élevée que dans notre expérience), est affectée par un déplacement de l'une des résonances observées sous l'effet des collisions en phase vapeur. Cependant les auteurs de cette expérience n'ont observé aucune modification des fréquences de résonance lorsqu'ils ont fait varier la pression dans la gamme accessible à leurs mesures. De plus, pour expliquer l'écart avec (133), il faudrait admettre qu'ils ont surestimé par un facteur 20 leur précision, ce qui est peu vraisemblable.

Il ne reste donc que la valeur de x, déterminée par DRAKE, HUGHES et coll. [⁹⁷], pour laquelle on peut supposer que la barre d'erreur est sousestimée. Cette mesure est d'ailleurs nettement la moins précise de celles que nous avons utilisées. Si l'on admet l'exactitude de notre mesure, on peut obtenir en combinant (133), (139) et (143) :

$$\kappa = \frac{g_{J}(^{4}\text{He}, 2^{3}S_{1})}{g_{J}(^{H}, 1^{2}S_{1/2})} = 1 - (21, 6 \pm 0, 5) \cdot 10^{-6}$$
(151)

Remarquons que l'erreur sur x dans (151) est 5 fois plus grande que celle de notre mesure (133) (elle provient principalement de l'erreur sur la mesure de z). On peut considérer la valeur (151) comme une nouvelle détermination expérimentale, plus précise, du rapport x. La différence entre les valeurs (151) et (138) correspond environ à 7 fois l'écart standard de la mesure de DRAKE, HUGHES et coll. [⁹⁷] (c'est-à-dire à peu près à deux fois la barre d'erreur qu'ils donnent). Cette nouvelle valeur (151) n'est plus en bon accord avec le calcul théorique de x par PERL et HUGHES [⁹⁵], qui donne le résultat (132).

En résumé nous avons effectué une mesure du rapport des moments magnétiques du niveau métastable $2^{3}S_{1}$ de ⁴He et du niveau fondamental $1^{1}S_{0}$ de ³He. La précision que nous avons obtenue permet d'améliorer nettement la connaissance de ce rapport. Cependant notre résultat semble incompatible avec celui que donne la combinaison d'autres mesures antérieures et, malgré les nombreuses vérifications que nous avons effectuées, nous ne sommes pas parvenus à mettre en évidence une erreur systématique dans notre expérience.

En associant notre résultat à ceux d'autres auteurs, on peut en tirer une nouvelle détermination du rapport des facteurs de Landé des niveaux $2^{3}S_{1}$ de l'hélium et $1^{2}S_{1/2}$ de l'hydrogène. Notre mesure est alors un peu plus précise que les précédentes et présente avec elles un désaccord. Si l'on admet que notre résultat est correct, il reste ainsi à étudier quelles améliorations pourraient être apportées aux calculs théoriques de PERL et HUGHES [⁹⁵] pour expliquer ce désaccord. Le calcul du facteur de Landé du niveau métastable $2^{3}S_{1}$ de l'hélium devrait sans doute être repris : il faudrait alors tenir compte d'effets d'ordre supérieur pour les différentes corrections évoquées au § B,IV,1, en particulier en ce qui concerne les corrections radiatives ou relativistes.

Du point de vue expérimental, il semble intéressant de chercher à augmenter la précision de notre mesure; on peut par exemple envisager de refroidir la cellule contenant l'hélium soumis à la décharge : on obtiendrait ainsi des courbes de résonance de (⁴He, $2^{3}S_{1}$) moins élargies par l'échange de métastabilité. Remarquons toutefois que ceci ne permettrait pas de beaucoup augmenter la précision sur la mesure du rapport x; en effet ceci supposerait qu'on améliore également la précision de la détermination du rapport z, c'est-à-dire finalement du coefficient de blindage diamagnétique du proton $\sigma_p(H_2)$. C'est pourquoi il semble qu'il serait beaucoup plus intéressant de comparer directement $\mu_J(^4He, 2^3S_1)$ au moment magnétique non plus de (3He , 1^1S_0) mais d'autres espèces atomiques bien choisies, présentes dans la décharge ou introduites dans la cellule contenant ⁴He : on peut penser au proton ("nu" ou dans un atome d'hydrogène), à l'ion ⁴He⁺ dans son état fondamental $1^2S_{1/2}$, aux électrons libres, etc. Des expériences dans cette direction sont envisagées.

RESONANCE DE L'ION ³He⁺ DANS L'ETAT FONDAMENTAL

Parmi les nombreuses espèces atomiques créées par une décharge dans l'hélium, il existe des ions He⁺. Ceux-ci constituent un système quantique encore plus simple que l'atome d'hélium dans l'état métastable triplet; c'est pourquoi il nous a paru intéressant d'essayer de mettre en évidence des résonances dans les niveaux excités ou fondamentaux des ions ³He⁺ ou ⁴He⁺, en utilisant les techniques de pompage et de détection optiques mises au point pour les atomes neutres d'hélium et décrites dans les chapitres précédents. On pouvait ainsi chercher si les raies de l'ion émises par la décharge présentent un certain taux de polarisation circulaire; nous avons dû cependant renoncer à cette expérience; en effet, une rapide étude spectrale de nos décharges HF dans l'hélium (décharges relativement faibles) nous a montré que les raies de l'ion y sont émises avec trop peu d'intensité, environ mille fois moins que les raies atomiques. Le cas le plus favorable nous a paru être celui de l'ion ³He⁺ dans son état fondamental $1^{2}S_{1/3}$; on pouvait en effet s'attendre à ce que de nombreux processus de collisions dans la décharge, tels que l'échange de charge avec les atomes (³He, 1¹S₀), assurent un couplage entre les orientations des ions et des atomes de ³He, par l'intermédiaire de leur spin nucléaire. Nous avons donc cherché et réussi à montrer que, lorsqu'on polarise nucléairement un gaz de ³He, on peut détecter sur la polarisation des raies atomiques émises par la décharge une résonance correspondant à l'ion ³He⁺ dans le niveau hyperfin F = 1 de son état fondamental 1²S_{1/2} [⁹⁹].

On peut comparer cette méthode d'orientation et d'étude des ions ³He⁺ dans une décharge aux nombreuses expériences antérieures ayant trait à l'orientation ou à l'alignement d'ions dans l'état fondamental. La plupart d'entre elles concernent des jets ioniques ou des ions produits dans un rapide courant gazeux. Les méthodes utilisées pour polariser ces ions sont très variées et comprennent :

. le pompage optique direct en présence de gaz tampon dans le cas de Sr⁺ [¹³⁶] et de Ba⁺ [¹³⁷];

- 141 -

- . l'échange de spin avec des atomes de Cs pour les expériences de DEHMELT (où des ions ⁴He⁺ [¹⁰¹] ou ³He⁺ [¹⁰⁰][¹³⁸] sont stockés dans un "piège" électrostatique), ainsi que l'échange de spin avec Rb dans le cas de Sr⁺ et Cd⁺ [¹³⁹];
- . l'échange de charge avec les atomes neutres, dans le cas des faisceaux d'ions ³He⁺ polarisés [¹⁴⁰], des ions Rb⁺ [¹⁴¹] et Cs⁺ [¹⁴²];
- . les collisions Penning avec le métastable triplet de l'hélium, comme l'a montré SCHEARER pour les ions Zn⁺ et Cd⁺ [¹⁴³];
- . enfin le bombardement électronique pour Hg⁺ [¹⁴⁴] et Xe⁺ [¹⁴⁵].

En ce qui concerne les expériences précédentes qui portent sur l'ion ³He⁺, la détection de l'orientation des ions du jet est assurée soit par collisions d'échange avec un jet d'atomes de Cs orientés optiquement [¹⁰⁰][¹³⁶], soit par une réaction nucléaire dépendant de la polarisation des ions ³He⁺ [¹⁴⁰].

Par comparaison avec ces expériences antérieures, la méthodes d'étude de la résonance de (³He⁺, $1^2S_{1/2}$) que nous développons ici apparaît donc beaucoup plus simple. Nous décrivons d'abord comment nous avons mis cette résonance en évidence, puis comment nous l'avons identifiée sans ambiguîté, à l'aide de son découplage hyperfin en champ fort. Enfin nous détaillons les mesures que nous avons faites pour la largeur de cette résonance, en fonction des différents paramètres de l'expérience (pression, taille de la cellule, température, etc.); nous avons ainsi étudié les différents processus qui détruisent l'orientation de l'ion dans la décharge.

1) Mise en évidence de la résonance de (³He⁺, $1^{2}S_{1/2}$).

Le montage est celui qui est décrit au § B,I,3 et représenté sur la figure 2§. La cellule de résonance contient un gaz de ³He, sous une pression de l'ordre de 0,1 torr. On effectue le pompage optique des atomes (³He, 2³S₁) par la raie 1,1 μ dans la direction du champ magnétique statique \vec{B}_0 . On détecte le taux de la polarisation circulaire de la raie $\lambda = 5.876$ Å avec un filtre interférentiel. On applique un champ \vec{B}_1 cos $2\pi\nu t$ perpendiculaire à \vec{B}_0 et oscillant à une fréquence $\nu = 32$ MHz. Si l'on balaie B₀ entre 0 et 30 Gs, on enregistre la courbe de la figure 42 : on obtient les résonances des deux sous-niveaux hyperfins F = 3/2 et F' = 1/2 de l'atome (³He, 2³S₁), dont les facteurs de Landé valent 4/3 et 8/3.





De plus, on observe comme prévu une résonance correspondant à un facteur de Landé g_J voisin de 1, que nous attribuons au sous-niveau hyperfin F = 1 du niveau fondamental $1^2S_{1/2}$ de ${}^{3}\text{He}^{+}$ (*). Cette résonance n'apparaît que pour de fortes intensités du champ B₁, pour lesquelles les résonances de (${}^{3}\text{He}$, $2{}^{3}S_{1}$) sont complètement saturées et très élargies. On constate que l'intensité de la raie correspondant à $g_J \approx 1$ augmente considérablement lorsque le niveau de la décharge croît; ce résultat tend à montrer que la résonance observée peut effectivement être attribuée aux ions ${}^{3}\text{He}^{+}$, dont le nombre augmente avec la décharge.

En changeant le filtre interférentiel à la détection, nous avons vérifié que ce signal de résonance apparaît sur la polarisation circulaire de plusieurs raies lumineuses émises par la décharge, appartenant au spectre de singulet comme au spectre de triplet; en fait nous avons constaté que ce sont les mêmes raies atomiques de ³He qui permettent de détecter la résonance de l'ion ³He⁺ aussi bien que la résonance nucléaire de ³He dans l'état fondamental [[⁸⁵]]; ainsi avons-nous observé une résonance ionique intense pour les raies atomiques $\lambda = 5.876$ Å (transition 3³D-2³P) et $\lambda = 6.678$ Å (transition 3¹D-2¹P). On en déduit qu'il existe probablement dans la décharge un fort couplage entre l'orientation de l'ion (³He⁺, 1²S_{1/2}) et celle des atomes de ³He dans l'état fondamental.

En outre, nous avons vu au chapitre B,II que dans une décharge, dans ³He, les orientations du niveau fondamental $1^{1}S_{0}$ et du métastable $2^{3}S_{1}$ sont fortement couplées par les collisions d'échange de métastabilité. C'est pourquoi nous avons pensé que la résonance de l'ion ³He⁺ pouvait peut-être se voir également sur l'absorption du faisceau de pompage à 1,1 μ par les atomes métasta-

(*)

Sur la figure 42, nous apercevons également une faible résonance pour un facteur de Landé électronique voisin de 2. Nous avons hésité un certain temps à l'attribuer soit aux électrons libres dans la décharge, soit au métastable 2³S₁ de ³He, celui-ci étant présent à l'état de traces (0,4%) dans nos cellules à ³He. Nous avons fini par l'identifier comme étant la résonance de (⁴He, 2³S₁) en faisant une mesure précise de sa position. (On voit en effet, en se reportant au tableau IX, que les facteurs de Landé de l'électron libre et de (⁴He, 2³S₁) diffèrent environ de 4.10⁻⁵ en valeur relative.) C'est cette mesure qui a fait l'objet du chapitre B.IV.

bles (³He, 2³S₁) (et non plus sur la polarisation des raies atomiques émises par la décharge).Rappelons que c'est cette méthode de détection que COLEGROVE et coll. ont employée pour mettre en évidence la résonance des atomes ³He dans l'état fondamental [⁸³]. Nous avons donc légèrement modifié le montage expérimental de la figure 28, de façon à détecter des signaux d'absorption de la raie 1,1 μ ; cependant, nous n'avons pas réussi à faire apparaître ainsi une résonance correspondant à un facteur de Landé voisin de 1, quel que soit le niveau de la décharge. Signalons qu'une telle détection de la résonance de l'ion ³He⁺ avait déjà été tentée par BYERLY [¹¹⁵], qui avait enregistré un échec analogue. Nous n'avons pas étudié suffisamment ce fait pour lui trouver une explication satisfaisante; nous envisageons de reprendre l'expérience, en améliorant beaucoup le rapport signal sur bruit de la détection. (*).

Nous décrivons maintenant (§ 2) l'étude que nous avons faite en champ magnétique fort de la résonance observée pour $g_J \simeq 1$: ceci nous a permis de l'identifier sans ambiguité. Puis nous discutons au § 3 l'origine possible des mécanismes de couplage entre les orientations des ions et des atomes de ³He.

Etude en champ fort : identification de la résonance de ³He⁺ 2)

a) Principe de la mesure

L'état fondamental $1^{2}S_{1/2}$ de l'ion ³He⁺ possède une structure hyperfine; la séparation a en champ nul de ses 2 composantes hyperfines F = 1 et F = 0 est de l'ordre de 8.665 MHz; elle a été mesurée avec une très grande précision (~ 10⁻⁹ en valeur relative) à l'aide de la méthode du "piégeage" électrostatique des ions ³He⁺ par FORSTON et coll. [¹³⁸] et SCHUESSLER et coll. [¹⁰⁰]. Le diagramme Zeeman du niveau (³He⁺, 1²S_{1/2}) est calculé dans l'appendice a.III et représenté sur la figure 43. Lorsque le champ magnétique Bo est suffisamment fort, il découple partiellement les variables nucléaires et électroniques, si bien que les sous-niveaux Zeeman (F, m_F) du niveau hyperfin F = 1 ne sont plus équidistants (voir figure 43); les transitions ($m_F = -1 \rightarrow m_F = 0$) et ($m_F = 0 \rightarrow m_F = 0$) $m_{p} = +1$) entre ces sous-niveaux (repérés par la valeur de m_{p} qui leur correspond en champ faible) ne se produisent pas pour la même valeur du champ Bo, si la fréquence de résonance est fixe; la séparation correspondante de la résonance en deux composantes doit permettre de déterminer la constante de structure hyper-(*) Signalons que PINARD et VAN DER LINDE viennent de réussir à mettre en évidence la résonance de (³He⁺, 1²S_{1/2}) sur l'absorption de la raie 1,1 μ.





fine a de ce niveau; la comparaison entre la valeur ainsi trouvée pour a et celle mesurée dans les expériences antérieures [100][138] doit permettre d'identifier avec certitude la résonance observée pour g_J ~ 1.

Nous avons donc appliqué à la cellule un champ de radiofréquence oscillant à différentes fréquences V de valeur croissante. La figure 44 montre le signal enregistré lorsqu'on balaie B_0 entre 60 et 90 Gs pour v = 123 MHz : on observe le découplage hyperfin partiel de la résonance de $({}^{3}$ He, 2 3 S₁) dans le niveau F = 3/2; de plus on constate bien le dédoublement de la résonance attribuée à l'ion (³He⁺, $1^{2}S_{\frac{1}{2}}$). En utilisant le dispositif de fils de Lecher décrit au chapitre précédent (voir figure 38), nous avons augmenté la valeur de v jusqu'à 438 MHz; sur la figure 45, on voit l'enregistrement des deux résonances de (³He⁺, 1²S_{1/2}), qui sont alors complètement séparées. Celle qui apparaît pour $B_0 = 298$ Gs correspond à la transition (0, $\rightarrow +1$) entre les sous-niveaux m_p du niveau hyperfin F = 1 de (³He⁺, 1²S_{1/2}) (voir figure 43); celle à B₀ = 330 Gs correspond à la transition (-1 → 0). On peut prévoir, à partir du diagramme Zeeman de la figure 43, que pour un découplage hyperfin partiel les largeurs de ces deux résonances sont différentes : c'est bien ce que l'on constate expérimentalement; on voit en effet sur la figure 45 que les largeurs des deux résonances, de l'ordre du Gauss, diffèrent entre elles de 25% environ.

De façon à mesurer avec précision les valeurs de B₀ pour lesquelles ces deux résonances se produisent, nous avons effectué simultanément une série de résonances nucléaires sur le niveau fondamental de ³He. Nous avons pour cela, comme au chapitre B.IV, utilisé un second champ de radiofréquence dont nous avons changé la fréquence en cours d'enregistrement; on obtient ainsi des pics étroits d'étalonnage visibles sur la figure 45.

β) Détermination de la structure hyperfine de $({}^{3}\text{He}^{+}, 1{}^{2}\text{S}_{V_{2}})$

Nous avons choisi d'effectuer les dépouillements à partir de celle des deux résonances de $({}^{3}\text{He}^{+}, {}^{2}\text{S}_{\frac{1}{2}})$ qui fournit le meilleur rapport signal sur bruit et la plus faible largeur de courbe : celle qui correspond à la transition $(m_{\rm F} = 0 \rightarrow m_{\rm F} = +1)$ du niveau hyperfin F = ! (voir figure 45). Soit $\omega_{\rm J}$ la valeur de la pulsation à laquelle cette résonance est observée; appelons $\omega_{\rm I}$ la pulsation

- 145 -

de la résonance nucléaire de (³He, l¹S₀) dans le même champ magnétique. D'après la formule (a.III.3) de l'appendice a.III, ω_{J} et ω_{I} sont reliées par :

$$\omega_{\rm J} = \frac{1}{2} (x+1+\delta\sigma) \omega_{\rm I} + \frac{a}{2} + \frac{1}{2} \sqrt{a^2 + (x-1-\delta\sigma)^2 \omega_{\rm I}^2}$$
(152)

avec :

$$x = \frac{\mu_{J}(^{3}\text{He}^{*}, 1^{2}\text{S}_{\frac{1}{2}})}{\mu_{I}(^{3}\text{He}, 1^{1}\text{S}_{0})}$$

1 +

et

$$\delta \sigma = \frac{\mu_{I}(^{3}\text{He}^{-}, 1^{2}\text{S}_{1/2})}{\mu_{T}(^{3}\text{He}, 1^{1}\text{S}_{0})}$$

x est le rapport du moment magnétique électronique de l'ion (${}^{3}\text{He}^{+}$, ${}^{2}S_{1/2}$) et du moment magnétique nucléaire de l'atome (${}^{3}\text{He}$, ${}^{1}S_{0}$). (1 + $\delta\sigma$) est le rapport des moments magnétiques des noyaux de l'ion (${}^{3}\text{He}^{+}$, ${}^{2}S_{1/2}$) et de l'atome (${}^{3}\text{He}$, ${}^{1}S_{0}$); ce rapport n'est pas tout à fait égal à l, car les corrections diamagnétiques σ diffèrent pour les deux noyaux. D'après [62], $\sigma({}^{3}\text{He}) = 59,9.10^{-6}$, tandis que d'après [61] :

$$\sigma(^{3}\text{He}^{+}) \simeq 2 \sigma_{p}(H) = 35.5 \cdot 10^{-6}$$

d'où l'on déduit :

$$S\sigma = \sigma(^{3}\text{He}) - \sigma(^{3}\text{He}^{+}) = 24,4 \cdot 10^{-6}$$
 (153)

Le rapport x peut être évalué à partir de quantités déjà connues. On pose :

$$\kappa = \frac{\mu_{J}({}^{3}\text{He}^{+}, {}^{1^{2}}\text{S}_{\frac{1}{2}})}{\mu_{J}(\text{H}, {}^{1^{2}}\text{S}_{\frac{1}{2}})}$$
(154)

x et X sont reliés par :

 $x = \frac{Xz}{y}$

où les quantités y et z ont la même définition qu'au chapitre B,IV et dont les valeurs (139) et (143) sont respectivement :

$$y = \frac{\mu_{I}(^{3}\text{He}, 1^{1}\text{S}_{0})}{\mu_{p}(^{H}\text{H}_{2})} = 0,76178685 \pm 8.10^{-8}$$
$$z = \frac{\mu_{J}(^{H}, 1^{2}\text{S}_{\frac{1}{2}})}{\mu_{p}(^{H}\text{H}_{2})} = 658,21620 \pm 20.10^{-5}$$

La valeur de X n'a jamais été mesurée directement par l'expérience. Elle peut cependant être calculée théoriquement avec beaucoup de précision, comme nous l'avons vu au § B,IV,1. Si l'on se reporte au tableau IX, on voit que la valeur théorique de X est :

$$X = 1 - 53, 2.10^{-6}$$
(155)

à laquelle on peut attribuer une barre d'erreur de l'ordre de 10^{-7} (cf. tableau IX). En utilisant les résultats précédents pour X, y et z, on obtient :

$$\mathbf{x} = 863,9964 \pm 6.10^{-4} \tag{156}$$

Nous avons donc employé cette valeur (156) de x, ainsi que celle (153) de $\delta\sigma$, pour déterminer la constante a de structure hyperfine de (³He⁺, 1²S_{1/2}) à partir des valeurs mesurées expérimentalement pour ω_J et ω_I . Nous avons pour ce calcul utilisé la calculatrice PDP 15, pour laquelle nous avons composé un programme donnant, à partir de la formule (152), la meilleure valeur de a compatible avec les différents couples de valeurs (ω_J , ω_I) fournies par notre expérience. Nous avons ainsi déterminé que :

$$a = (8.665, 5 \pm 1, 5) MHz$$
 (157)

Cette valeur (157) de la constante de structure hyperfine a de l'ion (³He⁺, $1^{2}S_{1/2}$) est en excellent accord avec celle déterminée par SCHUESSLER et coll. [¹⁰⁰]:

 $a = 8.665,649867 \pm 10.10^{-6}$ MHz (158)

La précision de la détermination (157) n'est évidemment pas compétitive avec celle de la mesure de très haute résolution (158). Cependant, elle est très

suffisante pour permettre d'attribuer sans aucune ambiguité la résonance observée à l'ion ³He⁺ dans son état fondamental.

On peut remarquer que cette étude permet également de mesurer le facteur de Landé de l'ion (³He⁺, $l^2S_{1/2}$). On peut en effet modifier légèrement le programme du calcul de dépouillement, en considérant x comme le paramètre ajustable et en prenant pour a la valeur (158); on obtient ainsi la valeur de x qui donne le meilleur accord avec les résultats expérimentaux (ω_J , ω_I). Cependant, comme nous avons effectué ces mesures avec des cellules de 6 cm de diamètre, nous devons tenir compte de l'erreur introduite par les inhomogénéités du champ \overline{B}_0 (nous avons vu en effet au chapitre B.IV, à propos du métastable (⁴He, 2³S₁), que cette erreur peut dans ce cas atteindre 10^{-5} en valeur relative pour une espèce atomique qui se détruit sur les parois de la cellule). La valeur de X que nous déduisons de nos mesures (soit $X = 1 - (4\pm 2) 10^{-5}$) est en accord avec la valeur théorique (155); cependant elle présente une erreur trop importante pour fournir un test sensible des calculs théoriques. On voit pourtant que si l'on pouvait améliorer sa précision dans un facteur important (de l'ordre de 10 ou plus), une telle mesure du facteur de Landé de l'ion (³He⁺, 1²S_{1/2}) deviendrait ainsi très intéressante, si l'on tient compte de l'absence de résultats expérimentaux antérieurs dans ce domaine. Il serait pour cela nécessaire de réduire considérablement la largeur de la résonance de (³He, $1^2S_{1/2}$) que nous observons dans l'expérience décrite ici. C'est la raison pour laquelle nous avons au préalable cherché à déterminer la nature des différents processus susceptibles de créer ou de détruire l'orientation de l'état fondamental $l^2S_{1/2}$ de l'ion ³He⁺ dans les décharges dans ³He que nous utilisons. Nous avons donc entrepris une étude systématique de la largeur de la résonance de $({}^{3}\text{He}^{+}, 1{}^{2}\text{S}_{\frac{1}{2}})$ en fonction des différents paramètres de l'expérience.

3) Processus d'orientation et de relaxation de ³He⁺

α) Discussion des mécanismes de couplage entre les orientations des ions $({}^{3}\text{He}^{+}, 1{}^{2}\text{S}_{1/2})$ et des atomes $({}^{3}\text{He}, 1{}^{1}\text{S}_{0})$

Nous observons que, lorsqu'on polarise nucléairement les atomes de ³He, on peut d'une part créer de l'orientation des ions $({}^{3}\text{He}^{+}, {}^{2}\text{S}_{1/2})$, d'autre part la détecter sur la polarisation circulaire d'un grand nombre de raies ato-

miques émises par la décharge dans ³He. Pour expliquer ce couplage entre l'orientation de l'état fondamental de l'ion ³He⁺ et celle des atomes neutres de ³He. dans l'état excité ou fondamental, on peut faire intervenir différents mécanismes, liés aux diverses collisions qui se produisent dans la décharge.

Ainsi on peut penser d'abord aux collisions d'échange de charge entre les ions ³He⁺ et les atomes neutres de ³He dans l'état fondamental. L'effet de ces collisions est de transférer l'orientation nucléaire du niveau l¹So des atomes au niveau $1^{2}S_{1/2}$ des ions (et vice-versa); sous l'effet du couplage hyper-fin dans le niveau $1^{2}S_{1/2}$ de ³He⁺, cette orientation nucléaire se transforme ensuite partiellement en orientation du niveau hyperfin F = 1 de (³He⁺, 1²S₁). Un tel mécanisme semble a priori le processus de polarisation le plus important pour les ions; en effet, aux pressions que nous utilisons, un ion ³He⁺ subit un grand nombre de collisions avec des atomes neutres de ³He avant d'être détruit; de plus, les sections efficaces d'échange de charge dans ³He entre atome et ion _dans l'état fondamental sont très grandes [146].

en-cete

area in unitographing On peut également envisager d'autres processus : au cours de l'ionisation d'un atome orienté de ³He par collision avec un électron libre de la décharge, l'orientation du spin nucléaire est conservée, comme c'est le cas lors de l'excitation d'un atome [⁸⁴][⁸⁶], car la durée de cette collision électrostatique est très courte. De même, au cours de la recombinaison d'un ion orienté avec un électron (par exemple au niveau des parois de la cellule de résonance), on peut penser qu'il y a conservation partielle du spin nucléaire, ce qui assure le couplage inverse entre l'orientation de l'ion et celle des atomes excités de ³He.

En ce qui concerne la disparition de cette orientation des ions $({}^{3}\text{He}^{+}, 1{}^{2}\text{S}_{1/2})$ dans la décharge, on peut également envisager de nombreux mécanismes de relaxation. C'est pourquoi nous décrivons d'abord (§ ß) l'étude expérimentale préliminaire que nous avons effectuée pour la largeur de la résonance de l'ion en fonction des différents paramètres de l'expérience (pression d'hélium, taille de la cellule, intensité de la décharge, etc.). Enfin, nous discutons (§ Y) ces résultats, en particulier en mettant en évidence la contribution des collisions d'échange de charge à la relaxation de (³He, $1^{2}S_{1/2}$).

- 149 -

β) Etude expérimentale de la largeur de la résonance de ³He⁻

Le montage expérimental correspondant est celui décrit au §BV,1.Nous avons constamment utilisé un champ de radiofréquence d'intensité variable et de fréquence v = 19 MHz, le champ statique B₀ étant alors balayé autour de 10 Gs. Le choix de la fréquence v est le résultat d'un compromis : d'une part le découplage hyperfin de la résonance de (³He⁺, 1²S_{1/2}) qui lui correspond n'est pas trop important ^(*); d'autre part elle permet de bien séparer la résonance de l'ion de celle du sous-niveau hyperfin F = 3/2 du métastable (³He, 2³S₁), à condition que celle-ci ne soit pas trop élargie par l'échange de métastabilité. En pratique cette dernière condition a limité la gamme de pression utilisable aux valeurs inférieures à 0,6 torr.

Les résultats de cette étude sont portés sur la figure 46, qui comporte, en ordonnées, la largeur ΔB de la résonance de (³He⁺, J²S_{1/2}) extrapolée à intensité nulle du champ de radiofréquence, et en abscisses la pression P de ³He dans la cellule.

On peut se demander quel sens attribuer à ces résultats, étant donné qu'on ne peut pas comparer les régimes de la décharge entre deux cellules où la pression de ³He est différente; cet inconvénient n'est pourtant pas grand, car nous n'avons pas réussi à mettre en évidence un effet de l'intensité de la décharge : pour chaque cellule étudiée, nous avons fait varier le niveau de la décharge dans un facteur important (l'intensité des raies émises variant dans un rapport 4), mais nous n'avons constaté aucune modification notable de la largeur de la résonance de l'ion.⊀

Les résultats expérimentaux portés sur la figure 46 sont relatifs à plusieurs tailles de cellule. Considérons ceux qui correspondent à des cellules de même rayon R = 3,1 cm; ils sont voisins de la courbe (b) tracée en traits pleins sur la figure 46, dont nous discuterons la construction plus loin; dans

(*) Si l'on se reporte à l'appendice a.III, on voit que pour $B_0 \approx 10$ Gs, les résonance (-1, 0) et (0, +1) de (³He⁺, 1²S_{1/2}) sont séparées environ par 30 mGs. La largeur mesurée pour cette résonance étant de l'ordre de 1 Gs, l'erreur ainsi introduite est inférieure à 3% en valeur relative.

- 150 -



la région des faibles pressions, ΔB est sensiblement stationnaire, tandis qu'aux plus fortes pressions ΔB augmente avec P. Ceci suggère l'existence de plusieurs mécanismes de relaxation pour l'orientation transversale de ³He⁺, dont l'importance relative varie avec P : aux fortes pressions, on peut penser que les processus de collisions des ions avec les atomes neutres de ³He en phase vapeur doivent dominer cette relaxation (les largeurs ΔB correspondantes étant proportionnelles à P), tandis qu'aux faibles pressions doit intervenir la diffusion des ions vers les parois de la cellule, où la plupart des auteurs admettent qu' ils se recombinent avec les électrons (les largeurs ΔB correspondantes étant dans ce cas inversement proportionnelles à P).

De façon à mettre en évidence expérimentalement l'influence éventuelle des collisions des ions ³He⁺ avec les parois, nous avons changé le rayon R des cellules (voir la figure 46) : on constate que les largeurs ΔB correspondant à une valeur plus grande de R sont situées nettement au-dessous de la courbe (b), tandis que le point obtenu pour R plus petit est au-dessus de (b); ces résultats semblent bien confirmer qualitativement le fait que la diffusion de l'ion (inversement proportionnelle à R²) joue un rôle dans sa relaxation aux faibles pressions.

Cependant il est clair que les résultats expérimentaux présentés ici ne sont <u>que préliminaires</u>; un grand nombre de mesures complémentaires doivent être effectuées, à des pressions intermédiaires et plus fortes, dans le but d'en tirer des informations quantitatives précises pour les différents processus de relaxation de ³He⁺. Nous envisageons également d'étudier les largeurs ΔB en fonction de la température de la cellule; signalons que des premiers résultats ont déjà été obtenus à 77°K; ils indiquent un affinement des courbes de résonance de (³He⁺, 1²S_{1/2}), notable surtout aux fortes pressions d'hélium.

γ) Tentative d'interprétation

(a) Aux fortes pressions

Parmi les différents processus qu'on peut envisager pour la relaxation en phase vapeur de l'orientation transversale de l'ion ³He⁺, le plus important est sans doute constitué par les collisions d'échange de charge avec les atomes neutres de ³He dans l'état fondamental l¹S₀. Nous avons vu que ces collisions permettent de transférer l'orientation des atomes neutres aux ions; réciproquement, elles assurent un transfert d'orientation inverse entre les ions et les atomes; elles constituent donc un processus d'élargissement des résonances ioniques. On peut établir un parallèle très étroit entre ces collisions d'échange de charge dans ³He et celles d'échange de métastabilité entre atomes neutres (³He, 2³S₁) et (³He, 1¹S₀), que nous avons étudiées en détail au chapitre B,II. Nous avons vu en particulier que si un atome métastable 2³S₁ a une probabilité !/T de subir une collision d'échange de métastabilité avec un atome (³He, 1¹S₀), les probabilités de relaxation des orientations dans les 2 niveaux hyperfins de (³He, 2³S₁) ne sont pas égales à 1/T (rappelons que ce fait est lié à la survivance partielle de la cohérence dans chacun des niveaux hyperfins du métastable après collision).

On peut traiter de manière analogue l'aspect angulaire des collisions d'échange de charge. Soit 1/T la probabilité pour un ion (³He⁺, 1²S_{1/2}) de subir une collision d'échange de charge avec un atome neutre (³He, 1¹S₀). Appelons < ¹F > l'orientation stationnaire du sous-niveau hyperfin F = 1 du niveau l²S_{1/2} de l'ion. On peut faire pour cette collision d'échange de charge, qui est un processus électrostatique de durée très courte, des hypothèses très analogues à celles formulées au § B,II,1 pour l'échange de métastabilité : d'une part le spin nucléaire de chacun des deux atomes n'est pas affecté par la collision; d'autre part il y a échange des atmosphères électroniques entre les ions "entrant" et "sortant" dans la collision. Avec ces deux conditions, l'évolution des matrices densités de (³He⁺, 1²S_{1/2}) et de (³He, 1¹S₀) sous l'effet de l'échange de charge est encore donnée par le tableau VII, dans lequel ρ_m représente alors la matrice densité de (³He⁺, 1²S_{1/2}). A partir de ceci, on obtient (voir l'appendice a.IV) l'équation d'évolution de l'orientation stationnaire < ¹F > dans le niveau hyperfin F = 1 de (³He⁺, 1²S_{1/2}) sous l'effet de l'échange de charge :

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{dt}} < {}^{1}\overrightarrow{\mathrm{F}} > = \frac{1}{\tau} \left[- < {}^{1}\overrightarrow{\mathrm{F}} > + \frac{1}{2} < {}^{1}\overrightarrow{\mathrm{F}} > + < \overrightarrow{\mathrm{I}} >_{\mathrm{f}} \right]$$
(159)

La relation (159) est l'analogue des formules (48) et (49) écrites pour le métastable $2^{3}S_{1}$ sous l'effet de l'échange de métastabilité. On constate sur (159) que la durée de vie des cohérences dans le niveau F = 1 de l'ion (³He⁺, 1²S_{1/2}) est différente et plus longue que T : elle vaut 2T. Comme dans le cas de l'échange de métastabilité, il y a subsistance partielle de la cohérence dans le niveau F = 1 de l'état fondamental de l'ion après chaque collision d'échange de charge avec un atome neutre. La probabilité 1/T de ces collisions pour chaque ion ³He⁺ est reliée à la section efficace σ_c d'échange de charge par :

$$\sigma_{c} = \frac{1}{\tau v_{r} N}$$
(160)

La formule (160) est l'analogue de (95) : v_r est la vitesse relative moyenne des 2 particules entrant en collision, N le nombre d'atomes neutres de ³He par cm³. On voit donc que la probabilité 1/2T de relaxation de l'orientation transversale de l'ion ³He⁺ par échange de charge augmente linéairement avec la pression d'hélium dans la cellule; comme nous l'avons dit, aux fortes pressions ce processus d'élargissement de la résonance de (³He⁺, 1²S_{1/2}) doit être dominant. Ceci semble bien en accord avec les résultats expérimentaux présentés sur la figure 46 : la courbe donnant ΔB en fonction de P doit être asymptote à une droite passant par l'origine et dont la pente donne σ_c ; nous avons tracé une telle droite (a) en pointillé sur la figure 46; elle conduit (en tenant compte du facteur 2 lié à la conservation partielle des cohérences, comme nous l'avons vu plus haut) à la valeur :

$$\frac{1}{\tau} = (1,9 \pm 0,4) \ 10^7 \ s^{-1} torr^{-1}$$
(161)

En utilisant (161), ainsi que les valeurs numériques de v_r et N données au § B,II,5,β, on obtient une détermination de la section efficace σ_c de l'échange de charge dans ³He à la température ordinaire :

$$\sigma_{\rm c} = (2,8 \pm 0,7) \cdot 10^{-15} \, {\rm cm}^2 \qquad 2 > 12 \qquad (162)$$

Cette mesure de σ_c doit être considérée comme préliminaire. On peut cependant chercher à comparer la valeur (162) trouvée aux résultats antérieurs; ceux-ci sont rassemblés par McDANIEL à la page 251 de la référence [[¹⁴⁶]]; ils sont théoriques ou relatifs à des expériences de jets ioniques, où les énergies des ions ³He⁺ sont supérieures à 2 eV (alors que dans les décharges que nous avons utilisées, les ions ³He⁺ sont sensiblement thermalisés); si l'on tente d'extrapoler les résultats donnés en [¹⁴⁶] (p. 251) aux très faibles valeurs des énergies ioniques, on obtient que σ_c est compris environ entre 1,5 et 3,5,10⁻¹⁵ cm²; la valeur (162) de σ_c que nous avons trouvée est donc en très bon accord avec les résultats antérieurs. (b) Aux pressions faibles

Sur la figure 46, on constate bien qu'aux faibles pressions de ³He l'échange de charge (droite (a)) n'est plus le seul processus d'élargissement de la résonance de (³He⁺, $1^{2}S_{1/2}$). Comme nous l'avons vu plus haut, on doit faire intervenir les collisions de l'ion ³He⁺ avec les parois de la cellule; cette hypothèse sur le rôle joué par la diffusion de l'ion vers les parois semble bien confirmée par les résultats de l'étude expérimentale de ΔB en fonction du rayon R de la cellule (voir figure 46 et § B,V,3, β).

Sur la figure 46, la courbe (b) tracée en traits pleins résulte de l'addition de la droite (a) et d'un élargissement des courbes de résonance supposé lié à la diffusion et donc inversement proportionnel à la pression P; on constate qu'on a réussi à ajuster l'importance de ce deuxième processus de telle sorte que la courbe (b) passe assez grossièrement par les points expérimentaux correspondant aux cellules de rayon R = 3,1 cm, compte tenu de l'assez grande imprécision des mesures. On peut utiliser la formule classique de la diffusion, qui donne la probabilité 1/T pour une espèce atomique de diffuser vers les parois d'une cellule de rayon R où la pression de gaz est P :

$$\frac{1}{T} = \frac{\pi^2 \mathcal{D}}{PR^2}$$
(163)

De la courbe (b) et en appliquant la formule (163), on peut déduire une valeur, qui n'est qu'un ordre de grandeur, pour le coefficient de diffusion $\widehat{\mathcal{D}}$ de l'ion ³He⁺ dans ³He en présence de décharge :

$$\mathcal{D} \simeq 1, 5. \ 10^5 \ \mathrm{cm}^2 \ \mathrm{s}^{-1}$$
 (à l torr) (164)

Cette valeur est très élevée. (A titre de comparaison, rappelons que le coefficient de diffusion de l'atome neutre (³He, $1^{1}S_{0}$) dans ³He vaut 1,44. 10³ cm² s⁻¹ à 1 torr [1⁴⁸]). On peut cependant tenter d'expliquer l'origine de cet ordre de grandeur de \mathscr{D} : dans une décharge, les ions créés sont soumis à une diffusion de type "ambipolaire", à cause de la présence des électrons libres créés en nombre égal à celui des ions. Dans la décharge ces électrons, beaucoup plus mobiles que les ions, ont tendance à entraîner ces derniers en accélérant fortement leur diffusion vers les parois, tandis que leur diffusion propre est ralentie dans les mêmes proportions. On montre [146] que les deux types de particules chargées diffusent avec le même coefficient \mathfrak{D}_a de diffusion ambipolaire, tel que :

$$\widehat{\varnothing}_{a} = \widehat{\varnothing}_{+} \left(1 + \frac{\theta_{-}}{\theta_{+}}\right)$$
(165)

où \mathscr{D}_+ est le coefficient de diffusion des ions ³He⁺ en l'absence des électrons, θ_- et θ_+ les températures respectives des électrons et des ions. Pour les ions ³He⁺ on peut évaluer \mathscr{D}_+ à partir des mesures de mobilité \mathscr{H}_+ de ces ions dans l'hélium et en utilisant la relation suivante (cf. [¹⁴⁶], p. 491), qui est valable si les ions sont voisins de l'équilibre thermique avec le gaz :

$$\frac{\mathscr{D}_{+}}{\mathscr{K}_{+}} = \frac{\mathbf{k} \,\theta_{+}}{\mathbf{e}} \tag{166}$$

(k : constante de Boltzmann, e : charge de l'électron). D'après $[1^{46}]$ (p. 466), $\mathcal{H}_{+} = 10,8$ cm /V.s pour ⁴He⁺ dans ⁴He à la température ordinaire, sous une pression de l atmosphère. Donc d'après (166), pour la diffusion de ³He⁺ dans ³He à 300°K :

$$\mathcal{D}_{+} = 244 \text{ cm}^2 \text{ s}_{-}^{-1}$$
 à l torr.

En ce qui concerne les températures θ_{-} et θ_{+} des électrons et des ions dans la décharge, on sait qu'elles sont très différentes $[14^{7}]$; on peut, en première approximation, supposer que les ions ³He⁺ subissent suffisamment de collisions avec les atomes neutres pour prendre une vitesse thermique; donc $\theta_{+} \simeq 300^{\circ}$ K. Par contre la vitesse propre des électrons dans la décharge correspond à une température très élevée : on peut admettre $\theta_{-} \simeq 35.000^{\circ}$ K comme ordre de grandeur ^(*). En utilisant la relation (165), il vient :

$$\mathcal{D}_{a} \simeq 3.10^{4} \text{ cm}^{2} \text{ s}^{-1}$$
 à l torr (167)

Comparons cette estimation (167) du coefficient de diffusion ambipolaire des ions ³He⁺ dans ³He à la valeur (164) de \oslash déterminée expérimentalement : on constate que \oslash et \oslash_a sont du même ordre de grandeur, mais \oslash_a est environ 5 fois plus faible que \bigotimes . Ceci indique, malgré la très grande incertitude sur la détermination expérimentale de \bigotimes , qu'il n'est probablement pas totalement justifié d'appliquer, comme nous l'avons fait plus haut, le formalisme de la diffusion au déplacement ambipolaire des ions ³He⁺ vers les parois de la cellule. On peut en effet remarquer que la validité du formalisme de la diffusion reste limitée aux pressions d'hélium suffisamment fortes pour que les ions ³He⁺, une fois créés, subissent un certain nombre de collisions avec les atomes neutres avant d'atteindre les parois. Cette hypothèse de thermalisation des ions n'est pas entièrement valable dans le domaine de pression où nous l'avons appliqué^(**). Un complément d'étude expérimentale est donc nécessaire avant de conclure avec certitude sur l'ensemble des mécanismes de la relaxation des ions ³He⁺ dans les décharges.

(**) On peut s'en convaincre en comparant, par exemple, le temps de diffusion ambipolaire T_a d'un ion (calculé à partir de (163), en prenant $\mathfrak{D} = \mathfrak{D}_a$) avec le temps de vol τ_v qu'aurait cet ion s'il se déplaçait en ligne droite du centre de la cellule aux parois avec une vitesse thermique : on trouve ainsi $T_a \simeq \tau_v \simeq 2.10^{-5}$ s pour une pression P de 0,5 torr dans une cellule de 3 cm de rayon.

(*) En fait les électrons ont dans la décharge une dispersion de vitesse. D'après [¹⁴⁷], en admettant que nos décharges soient analogues à celles de cette référence, le maximum de leur distribution d'énergie serait située au voisinage de 3 eV : ceci correspond à une température moyenne de 35.000 °K.

4) Conclusion

L'expérience décrite ici fournit une méthode très simple pour détecter la résonance magnétique dans le niveau fondamental de l'ion ³He⁺. Elle met en évidence dans les décharges l'existence de couplages entre l'orientation des ions ³He⁺ dans leur état fondamental et celle de différents niveaux des atomes neutres de ³He; ceci est attribuable à divers processus, tels que les collisions d'échange de charge, les collisions ionisantes ou excitatrices d'atomes ³He orientés, etc. On peut ainsi envisager différentes mesures de sections efficaces de collisions ioniques dans l'hélium gazeux. En particulier la mesure de la largeur de la résonance de l'ion à différentes pressions a déjà fourni une valeur (dont la précision peut être améliorée) de la section efficace de l'échange de charge dans ³He à la température ordinaire. La poursuite de cette étude semble offrir encore de nombreuses possibilités. En particulier une mesure précise en champ fort du facteur de Landé électronique de (${}^{3}\text{He}^{+}$, ${}^{12}S_{1/2}$) apparaît comme extrêmement intéressante : nous comptons la reprendre, mais il est essentiel pour cela d'obtenir un affinement suffisant de la largeur de la courbe de résonance de $({}^{3}\text{He}^{+}, 1{}^{2}\text{S}_{1/2})$. Dans cette perspective, nous pensons continuer son étude en utilisant des cellules de plus grande taille et en "pulsant" la décharge, de façon à diminuer la diffusion ambipolaire des ions. De plus nous envisageons de refroidir les cellules à des températures très basses; dans ce but, un nouveau 🛿 montage expérimental est en préparation.

B.VI POMPAGE OPTIQUE DE ^{2:1}Ne

Nous avons le projet d'étendre aux autres gaz rares les méthodes d'orientation nucléaire par pompage optique dans une décharge décrites dans le cas de l'hélium aux chapitres précédents. Nous présentons donc ici l'étude que nous avons réalisée dans le cas de ²¹Ne, qui nous a déjà fourni des résultats variés, bien qu'encore préliminaires à de nombreux égards. En particulier nous avons réussi à mettre pour la première fois en évidence une orientation nucléaire des atomes de ²¹Ne (I = 3/2) dans leur état fondamental ¹S₀, ce qui ouvre la voie à de nombreuses mesures de spectroscopie sur l'atome de néon, ainsi qu'à l'étude des différents mécanismes de collision et de couplage entre les orientations des diverses espèces atomiques présentes dans les décharges dans le néon ou dans les mélanges hélium-néon.

L'atome de néon possède deux états métastables, appartenant à la configuration $2p^53s$: les niveaux ${}^{3}P_{0}$ et ${}^{3}P_{2}$ (appelés ls_{3} et ls_{5} en notation de Paschen) (voir figure 47). Rappelons que SCHEARER avait déjà observé la résonance Zeeman du niveau métastable ³P₂ des isotopes pairs du néon [⁸⁰], en appliquant la méthode du pompage optique à un gaz de néon naturel sous une pression de quelques millitorrs et soumis à une décharge. Dans ces expériences, le niveau métastable ³P₂ était orienté optiquement à l'aide d'un ensemble de raies rouges du néon. De l'hélium était ajouté dans la cellule sous une pression de l'ordre du torr, de façon à servir de "support" à la décharge. L'hélium était choisi pour plusieurs raisons : d'une part c'est un gaz léger, de faible polarisabilité, de sorte que la section efficace de désorientation du métastable ${}^{3}P_{2}$ du néon par collision avec l'hélium dans l'état fondamental est faible [81]; d'autre part il se trouve que les deux niveaux métastables 2¹S₀ et 2³S₁ de l'hélium présentent une quasi coïncidence énergétique avec les niveaux 3s2 et 2s2,3 du néon respectivement (voir figure 47); les métastables de l'hélium sont rapidement convertis en atomes de néon excités, puis par cascades radiatives en atomes de néon métastables ³Po et ³P₂. L'addition d'hélium permet ainsi d'obtenir une densité relativement élevée de métastables de néon.

Comme la plupart de nos expériences sur ²¹Ne ont également été réalisées sur des mélanges hélium-néon, il nous a paru intéressant, comme préalable, d'étudier le mécanisme de peuplement des niveaux excités du néon par l'inter-

- 159 -
médiaire de ces collisions de transfert quasi résonnantes d'énergie entre hélium et néon dans la décharge. On sait de plus que ces collisions permettent de produire une orientation des niveaux correspondants du néon, lorsque le métastable $2^{3}S_{1}$ de l'hélium est lui-même polarisé; si l'on oriente par pompage optique le niveau $2^{3}S_{1}$ de ⁴He à l'aide de la raie $\lambda = 1,1 \mu$ de l'hélium, ceci se traduit par une polarisation circulaire des raies lumineuses émises par le néon dans la décharge $[1^{49}]$. Nous avons choisi d'étudier les collisions de transfert précédentes en observant la résonance du métastable $2^{3}S_{1}$ de ⁴He, détectée sur la polarisation circulaire des raies rouges du néon; nous avons mesuré l'élargissement de cette résonance en fonction de la pression partielle de néon dans le mélange hélium-néon. Cette expérience est décrite au § 1. Nous en avons déduit en particulier une valeur de la section efficace de désorientation de (⁴He, $2^{3}S_{1}$) par collision avec le néon à la température ordinaire $[1^{150}]$; elle est en très bon accord avec les mesures antérieures relatives à la destruction de (⁴He, $2^{3}S_{1}$) par les collisions dites de "quenching".

Les expériences de SCHEARER que nous avons rappelées portaient sur du néon naturel. Nous rapportons au § 2 leur extension au cas où le mélange d'isotopes de néon est fortement enrichi en ²¹Ne. Nous avons ainsi mis en évidence les résonances des différents sous-niveaux hyperfins du niveau métastable ³P₂ de ²¹Ne, en mesurant les variations de l'absorption par la cellule des raies du néon polarisées circulairement transportées par le faisceau de pompage [102].

Puis nous décrivons au § 3 comment nous avons obtenu une orientation nucléaire de ²¹Ne dans l'état fondamental $[1^{102}]$. Cette orientation nucléaire apparaît comme fortement couplée dans la décharge à celle des niveaux ${}^{3}P_{0}$ et ${}^{3}P_{2}$ de ²¹Ne. Ceci nous a permis de la détecter sur l'absorption de raies optiques reliant l'un ou l'autre de ces 2 niveaux métastables à des niveaux plus excités du néon $[1^{02}]$.

Au § 4 nous présentons des résultats expérimentaux préliminaires concernant les temps de relaxation nucléaire du niveau fondamental de ²¹Ne dans la décharge. Ces temps sont nettement plus courts que ceux enregistrés dans le cas de ³He; de plus ils dépendent fortement du niveau de la décharge; au stade actuel, les mécanismes de cette relaxation ne sont pas complètement élucidés,

- 160 -



FIGURE 47 : Schéma des premiers niveaux excités du néon



de la pression de néon dans un mélange He-Ne à la température ordinaire

mais nous discutons l'origine possible de certains d'entre eux.

Puis nous avons pensé, par analogie avec ce qui est observé dans le cas de ³He [⁸⁵][⁸⁶][¹⁵¹] (cf. § B,I,1), que l'orientation nucléaire < \vec{I} > de ²¹Ne ainsi produite devait être transférée sans altération lors des collisions (processus de caractère électrostatique très brefs) qui portent l'atome de ²¹Ne dans divers états excités dans la décharge; comme pour ³He, le couplage hyperfin a \vec{I} . \vec{J} dans ces niveaux excités doit partiellement transformer < \vec{I} > en orientation électronique < \vec{J} >. Nous avons donc cherché à mettre en évidence une polarisation circulaire des raies lumineuses du néon émises par la décharge. Nous avons bien observé, comme il est décrit au § 5, qu'un grand nombre de ces raies sont ainsi polarisées [¹⁰³][¹⁰⁴]; ceci fournit une méthode de détection commode et sensible de l'orientation nucléaire de ²¹Ne, ainsi qu'un nouveau moyen d'étude des niveaux excités du néon [¹⁰⁴]].

Enfin nous abordons au § 6 le cas des autres gaz rares. Des résultats préliminaires ont déjà été obtenus dans le cas du krypton. Nous discutons alors les problèmes expérimentaux posés par leur amélioration et leur extension au cas du Xe.

1) Etude de la désorientation de (⁴He, 2³S₁) dans les mélanges He-Ne

Pour cette expérience, nous avons utilisé des cellules contenant des mélanges en proportions variables de ⁴He et de néon enrichi en ²¹Ne (composition : 20% de ²⁰Ne, 51% de ²¹Ne et 29% de ²²Ne); la pression d'hélium est de l'ordre de 0,5 à 1 torr, celle de néon comprise entre 0,01 et 0,5 torr. Le montage expérimental est analogue à celui de la figure 28. Les atomes (⁴He, 2³S₁), produits par une décharge faible, sont orientés par la raie $\lambda = 1,1 \mu$ de l'hélium; leur résonance est détectée sur la variation de la polarisation circulaire d'un certain nombre de raies rouges du néon émises par la décharge et correspondant aux transitions (2p - 1s) (voir figure 47); le filtre coloré placé devant le P.M. est du type Kodak Wratten W 26. La principale différence avec les expériences décrites pour ³He et ⁴He aux chapitres précédents est que cette étude a été réalisée à l'intérieur d'un blindage magnétique; en effet, les largeurs des courbes enregistrées sont très faibles (de l'ordre du milligauss ou inférieures); il est donc nécessaire de diminuer au maximum les inhomogénéités de champ magnétique au niveau de la cellule, susceptibles d'introduire un élargissement parasite des résonances. Le blindage magnétique a été mis au point par DUPONT-ROC et comporte cinq épaisseurs concentriques de mu-métal [¹⁰⁵].

Un champ magnétique statique, transversal par rapport à la direction du pompage, est balayé autour de zéro, les autres composantes du champ magnétique ayant été strictement annulées au préalable. Le signal enregistré est celui de l'effet Hanle du niveau 2³S₁ de ⁴He ^(*). La largeur à mi-hauteur de la courbe Lorentzienne ainsi obtenue est extrapolée à intensité nulle du faisceau de pompage. Il est nécessaire d'extrapoler également à intensité de décharge nulle; on sait en effet que, dans le cas de ⁴He pur [[¹⁰⁶]], les collisions de (⁴He, 2³S₁) avec les électrons "chauds" de la décharge constituent un mécanisme de relaxation de (⁴He, 2³S₁) dont l'importance est comparable à celle de la destruction de l'atome métastable sur les parois de la cellule. Enfin de la largeur ainsi obtenue on soustrait l'élargissement résultant de la diffusion du métastable vers les parois à travers le mélange He-Ne; cet effet est évalué en calculant le temps de diffusion T¹_d des atomes (⁴He, 2³S₁) dans l'hélium à sa pression partielle dans le mélange, puis le temps de diffusion T²_d de ces mêmes atomes dans le néon; on peut montrer que le temps de diffusion dans le mélange est simplement T¹_d + T²_d.

Les résultats de cette étude sont portés sur la figure 48. On constate que les largeurs ΔB des courbes de résonance de (⁴He, 2³S₁) présentent

(*) La méthode utilisée ici pour détecter cette résonance de (⁴He, 2³S₁) implique des transferts d'orientation entre plusieurs niveaux atomiques (du niveau 2³S₁ de ⁴He aux niveaux 2s₂ et 2s₃ du néon par collisions, puis des niveaux 2s aux niveaux 2p du néon par cascades radiatives); en général les formes des courbes de résonance en champ nul observées dans un tel cas sont compliquées; elles correspondent à la superposition de l'effet Hanle de chacun de ces niveaux [¹⁵²]; cependant, dans l'expérience décrite ici, la largeur de l'effet Hanle du niveau 2³S₁ de ⁴He est beaucoup plus faible que celle correspondant aux niveaux 2s et 2p du néon; ceux-ci ont une durée de vie de l'ordre de 10⁶ fois plus courte que le niveau métastable 2³S₁ de l'hélium; la courbe étroite ainsi balayée autour du champ nul peut donc bien être considérée comme celle de la résonance de (⁴He, 2³S₁). un accroissement sensiblement linéaire en fonction de la pression partielle de néon dans la cellule; l'ordonnée à l'origine de cette droite correspond aux inhomogénéités de champ qui n'ont pas pu être éliminées au niveau de la cellule ($\approx 25 \ \mu Gs$); sa pente traduit la dépolarisation de (⁴He, 2³S₁) par collisions avec les atomes de néon dans l'état fondamental; elle vaut : (5,8 ± 0,6) mGs/torr; si l'on tient compte de l'incertitude de 5% sur la pression de néon dans les cellules, on en déduit une valeur pour la section efficace de ce processus de désorientation de (⁴He, 2³S₁) par le néon à 300°K :

$$\sigma = (3,15 \pm 0,30) 10^{-17} \text{ cm}^2$$

On peut chercher à comparer cette valeur à celle mesurée par de nombreux autres auteurs pour la réaction de transfert quasi résonnant d'excitation qui peut s'écrire :

$$(^{4}\text{He}, 2^{3}\text{S}_{1}) + \text{Ne} \text{ (fondamental)} \rightarrow (^{4}\text{He}, 1^{1}\text{S}_{0}) + \text{Ne} (2s_{2}).$$

Cette réaction de "quenching" a déjà été beaucoup étudiée, car elle joue un rôle important dans l'obtention d'une inversion de populations entre les niveaux 2s et 2p du néon, ce qui permet le fonctionnement du laser He-Ne sur certaines raies infra-rouges. Elle est exoénergétique, la différence d'énergie entre (⁴He, $2^{3}S_{1}$) et les niveaux $2s_{2}$ et $2s_{3}$ du néon étant respectivement de $3,9.10^{-2}$ et $5,8.10^{-2}$ eV. Nous avons rassemblé sur le tableau XI l'ensemble des résultats antérieurs relatifs

Valeurs de σ (10 ⁻¹⁷ cm ²)	3,7±0,5	2,8	3,1±0,5	2,7±0,7	2,8±0,1	3,15±0,30
Référence	[¹⁵³]	[¹⁵⁴]	[¹⁵⁵]	[¹⁵⁶]	[¹⁵⁷]	Notre mesure

TABLEAU XI

<u>Légende</u> : Valeurs mesurées à 300°K pour la section efficace σ de la collision de transfert d'excitation : (⁴He, 2³S₁)-+ Ne (fondamental) → (⁴He, 1¹S₀) + Ne (2s) à cette réaction de "quenching"; dans la dernière colonne du tableau, nous avons fait figurer notre mesure de la désorientation de (⁴He, 2³S₁) par le néon. On constate qu'elle présente un très bon accord avec les autres résultats du tableau. On en déduit qu'à la température ordinaire, dans les mélanges He-Ne, la désorientation de (⁴He, 2³S₁) est entièrement dominée par le "quenching" de (⁴He, 2³S₁) par les atomes de Ne.

2) Orientation du métastable ${}^{3}P_{2}$ de ${}^{21}Ne$

α) Résultats expérimentaux

Nous avons d'abord utilisé les mêmes cellules contenant des mélanges de "He et de néon isotopique que dans l'expérience précédente (§ 1). Une faible décharge H.F. est entretenue dans la cellule, de façon à peupler les métastables ${}^{3}P_{2}$ du néon, soit directement, soit par "quenching" des métastables ${}^{2}S_{1}$ de ⁴He. Le montage expérimental est légèrement différent de celui de la figure 28. Le pompage optique du niveau ³P₂ du néon s'effectue maintenant à l'aide d'un faisceau lumineux circulairement polarisé, issu d'une lampe à néon renfermant le même mélange isotopique que la cellule, mais pas d'hélium (cette lampe est un disque de pyrex de 5 mm d'épaisseur et de 4 cm de diamètre, contenant du néon sous une pression de 0,6 torr, dans lequel une décharge est excitée par H.F. à 2,4 GHz). Contrairement à ce qui est indiqué sur la figure 28, le faisceau de pompage ne comporte ici pas de filtre; on utilise ainsi toute la série des raies spectrales rouges correspondant à des transitions entre le métastable ³P₂ et les niveaux plus excités de la configuration 2p⁵3p du Ne (voir figure 47). La méthode de détection employée consiste à observer dans la direction de \vec{B}_0 l'absorption par la cellule de l'une quelconque des raies rouges de pompage, par exemple la raie λ = 6.402 Å (voir figure 47); un filtre interférentiel est donc placé entre la cellule et le photomultiplicateur P.M. (aucun analyseur n'est interposé entre la cellule et le P.M.). De façon à obtenir des signaux de détection modulés, on hâche le champ oscillant \vec{B}_1 cos ω t appliqué ($\frac{\omega}{2\pi}$ = 1,7 MHz) à la fréquence de 160 Hz. Le champ magnétique statique Bo étant balayé lentement entre 0 et 2 Gs, on enregistre les variations de la modulation à 160 Hz du signal recueilli par le P.M., après son amplification par détection synchrone. On obtient ainsi une courbe semblable à celle de la figure 49. Le sens de variation de l'amplitude de la modulation observée au voisinage des résonances n'est pas le même pour les différentes raies rouges du néon

- 164 -



¢

(par exemple il est opposé pour les raies $\lambda = 6.402$ Å et $\lambda = 7.032$ Å); c'est pourquoi l'emploi d'un filtre interférentiel à la détection est indispensable.

Pour l'enregistrement de la figure 49, la constante de temps de la détection synchrone était de 1 s, la pression de néon de 0,012 torr, celle d'hélium de 0,26 torr (la valeur de la pression d'hélium n'est pas critique; par contre celle de néon correspond à peu près à un optimum de signal). On observe d'abord, sur la figure 49, la résonance du niveau ${}^{3}P_{2}$ des isotopes pairs du néon (son facteur de Landé g_J vaut 1,5); de plus apparaissent les quatre résonances des sous-niveaux hyperfins F de 21 Ne, qui correspondent aux facteurs de Landé g_F = 0,86 pour F = 7/2, 0,94 pour F = 5/2, 1,2 pour F = 3/2 et 3 pour F = 1/2. Le taux de modulation du signal de détection correspondant à la résonance des isotopes pairs dans cette expérience est d'environ 2.10⁻⁵.

β) Discussion des largeurs des résonances

Par analogie avec l'étude précédemment développée dans le cas de l'hélium, on peut se demander quelle est l'importance des transferts d'orientation entre le niveau métastable ${}^{3}P_{2}$ et le niveau fondamental ${}^{1}S_{0}$ de ${}^{21}Ne$ sous l'effet de collisions d' "échange de métastabilité". Une étude très systématique (qui n'a pu être encore réalisée) de la largeur des résonances pour les différents niveaux hyperfins F du métastable ${}^{3}P_{2}$ est nécessaire.

Il est cependant clair que les largeurs des résonances observées sur la figure 49 comportent une partie importante qui provient des collisions désorientatrices entre le niveau ${}^{3}P_{2}$ du néon et les atomes d'hélium dans l'état fondamental; la section efficace de ce processus a été mesurée par SCHEARER [⁶⁰], qui trouve à la température ordinaire :

$$\sigma$$
 (Ne^m-He) = (4,3 ± 0,2).10⁻¹⁷ cm²

Pour la pression d'hélium (0,26 torr) utilisée dans l'expérience de la figure 49, on calcule qu'il en résulte un élargissement de 16 KHz pour la résonance du niveau ³P₂ du néon (ceci correspond à 15 mGs pour les isotopes pairs du néon et à des largeurs en Gauss inversement proportionnelles à leurs facteurs de Landé g_F pour les sous-niveaux hyperfins F de ²¹Ne; ces largeurs sont d'un ordre de grandeur

- 165 -

comparable à celles observées sur la figure 49). Il semble donc qu'il serait intéressant de réaliser l'étude des résonances du niveau ${}^{3}P_{2}$ sur des cellules contenant du néon pur soumis à une décharge (et non plus un mélange hélium-néon). Cette étude sera d'ailleurs nettement simplifiée lorsqu'on disposera de 21 Ne de grande pureté isotopique.

3) Orientation nucléaire de ²¹Ne

α) Couplage avec les métastables ³P₂

Nous avons ensuite changé la fréquence du champ oscillant de l'expérience précédente de façon à nous placer dans les conditions où l'on produit la résonance magnétique nucléaire sur le niveau fondamental de ²¹Ne (résonance à 336,23 Hz/Gs [¹⁵⁸]). Nous avons ainsi pu mettre en évidence une orientation nucléaire longitudinale de ²¹Ne, détectée sur l'absorption de différentes raies rouges du néon par les atomes métastables ³P₂ dans la cellule. Cette orientation nucléaire du niveau fondamental de ²¹Ne apparaît ainsi comme couplée à l'orientation des sous-niveaux hyperfins F du niveau métastable ³P₂. Cette situation est tout à fait analogue à celle observée dans le cas de ³He lorsqu'on détecte, comme l'ont fait COLEGROVE et coll. [⁸³], l'orientation nucléaire du niveau (³He, 1¹S₀) sur l'absorption de la raie $\lambda = 1,1 \mu$ par les métastables 2³S₁ de la cellule. Toutefois, le rapport signal sur bruit de la résonance nucléaire de ²¹Ne ainsi enregistrée est faible.

β) Couplage avec les métastables ${}^{3}P_{0}$

Nous avons alors pensé à détecter non plus l'orientation longitudinale, mais l'orientation transversale du niveau fondamental ${}^{1}S_{0}$ de 21 Ne. En effet, lorsqu'on applique en permanence sur la cellule un champ de radiofréquence à une pulsation ω correspondant à la résonance nucléaire du fondamental, l'aimantation transversale dans ce niveau effectue une précession à la pulsation ω autour du champ \vec{B}_{0} , ce qui peut éventuellement se traduire par une modulation à la pulsation ω de l'absorption optique par la cellule d'un faisceau croisé. Nous pensions ainsi qu'un signal de détection, faiblement modulé à une pulsation ω de quelques KHz, serait plus facilement extrait du bruit de fond que les variations à basse fréquence du signal longitudinal de l'expérience précédente. Pourtant, dans un champ magnétique \vec{B}_0 de quelques Gauss, l'orientation transversale du niveau fondamental de ²¹Ne ne peut se transformer en une orientation transversale du niveau ³P₂; les facteurs de Landé des deux niveaux étant trop différents (l'un est électronique, l'autre nucléaire), il ne peut y avoir "circulation de cohérence" entre eux, à moins que l'on opère en champ très faible [18][87]. Par contre, cette circulation peut se produire beaucoup plus facilement entre le niveau fondamental ¹So et le niveau métastable ³Po de ²¹Ne (voir figure 47), qui ont des facteurs de Landé nucléaires voisins ^(*). Pour détecter l'orientation du métastable ${}^{3}P_{0}$ de ${}^{21}Ne$, on peut mesurer la variation de l'absorption par la cellule de la raie λ = 6.266 Å polarisée circulairement (voir figure 47). C'est pourquoi nous avons réalisé l'expérience suivante : la cellule, contenant le mélange He-Ne décrit plus haut, est placée dans un champ magnétique statique \vec{B}_0 et un champ oscillant perpendiculaire \vec{B}_1 cos ω t. Deux faisceaux de pompage, polarisés en σ^+ , sont issus de lampes à néon isotopique ; aucun filtre optique n'est interposé sur leur trajet. Le faisceau de détection, polarisé circulairement, est émis perpendiculairement à \vec{B}_0 par une lampe à néon naturel; il traverse un filtre interférentiel centré à λ = 6.266 Å. Un photomultiplicateur suivi d'une détection synchrone permettent de mesurer les modulations de l'absorption de ce faisceau à la pulsation ω. La figure 50 montre le signal de résonance magnétique ainsi obtenu; le taux de modulation lumineuse détectée étant faible (~ 10⁻⁶), on a utilisé une constante de temps de 30 s pour l'enregistrement.

On pourrait se demander si l'orientation nucléaire de ²¹Ne ainsi mise en évidence sur l'absorption lumineuse par les métastables ³P₀ n'est pas celle des métastables ³P₀ eux-mêmes, plutôt que celle des atomes de ²¹Ne dans l'état fondamental ¹So. Cependant, la valeur du facteur de Landé nucléaire auquel correspond la résonance observée est en accord avec la valeur mesurée antérieure-

(*) Il est très probable que l'écart entre les facteurs de Landé des niveaux ${}^{1}S_{0}$ et ${}^{3}P_{0}$ de ${}^{2}Ne$ est de l'ordre de 20%. L'évaluation théorique de cet écart a et roue we est ae l'ordre de 20%. L'évaluation théorique de cet écart a été faite par MARGERIE [[¹⁵⁹]], en tenant compte du mélange de l'état ³Po (1s₃ en notation de Paschen) avec les états ¹P₁ (1s₂) et ³P₁ (1s₄) appartenant à la même configuration $2p^53s$ du néon (voir figure 47). Rappelons qu'un calcul analogue a été fait pour le métastable ³Po de ¹⁹⁹Hg et que l'écart d'un facteur 1,8 entre son facteur de Landé et celui du niveau fondamental 6¹So de ¹⁹⁹Hg a pu être mesuré [[¹⁶⁰]].

- 167 -

ment pour le niveau ${}^{1}S_{0} [[{}^{158}]]$; celle du niveau ${}^{3}P_{0}$ en diffère probablement d'environ 20% [159]. De plus, la largeur limite de la courbe de la figure 50, extrapolée à B₁ = 0, correspond à un temps de relaxation nucléaire de l'ordre de 50 ms; cette valeur, relativement élevée, indique que le signal ne peut être attribué au niveau métastable ${}^{3}P_{0}$; en effet celui-ci se détruit par diffusion sur les parois de la cellule; son temps de diffusion à travers le mélange He-Ne peut être évalué à partir des valeurs des sections efficaces de diffusion mesurées par DIXON et coll. [161] :

> $\sigma_{\rm D}({\rm Ne}^{\rm m} - {\rm He}) = 40,5. \ 10^{-16} \ {\rm cm}^2$ $\sigma_{\rm D}({\rm Ne}^{\rm m} - {\rm Ne}) = 42,7. \ 10^{-16} \ {\rm cm}^2$

Pour des pressions partielles de 0,4 torr d'hélium et 0,014 torr de néon, on trouve que le temps de diffusion total du métastable ${}^{3}P_{0}$ du néon à travers le mélange est de 1,4 ms; ce temps est très inférieur au temps de relaxation de 50 ms mesuré plus haut sur la résonance nucléaire de 21 Ne observée; celle-ci peut donc être attribuée sans ambigüité au niveau fondamental ${}^{1}S_{0}$ de 21 Ne.

Nous ne savons pas, au stade actuel, quels sont les mécanismes responsables des couplages d'orientation dans la décharge entre le niveau fondamental ${}^{1}S_{0}$ et les niveaux métastables ${}^{3}P_{2}$ et ${}^{3}P_{0}$ de 21 Ne. Par analogie avec le cas de 3 He (cf. § B,II), on peut penser à des collisions d' "échange de métastabilité". D'autres processus sont également envisageables; remarquons que toute collision qui produit la destruction d'un atome de 21 Ne métastable (par exemple une collision avec les parois de la cellule) a de grandes chances de ne pas affecter le spin nucléaire de l'atome; si l'atome métastable possède une orientation nucléaire, l'atome dans l'état fondamental qui résulte de sa destruction est ainsi également orienté nucléairement.

4) Etude de la relaxation nucléaire de ²¹Ne

Les taux d'orientation nucléaire obtenus sont trop faibles pour que nous ayons pu mesurer les temps de relaxation par des méthodes de transitoires, comme au § A,III,3 dans le cas de ¹⁰⁹Cd. Nous n'avons pas non plus réussi à mettre en évidence un signal correspondant à l'alignement nucléaire de ²¹Ne (I=3/2).

- 168 -





Nous avons donc uniquement mesuré, à partir de la largeur de courbes telles que celles de la figure 50, le temps de relaxation de l'orientation nucléaire trans-versale.

Nous avons d'abord constaté que ce temps diminue très fortement si l'intensité de la décharge augmente; ainsi pour la cellule contenant 0,4 torr de He et 0,014 torr de Ne, il passe de 14 ms à 80 ms lorsque le niveau de la décharge est diminué jusqu'à sa valeur minimale. Nous avons fait varier également les pressions partielles d'hélium et de néon dans la cellule; le temps de relaxation nucléaire de ²¹Ne est peu sensible aux variations de la pression d'hélium; par contre il décroît rapidement si la pression de néon s'élève (il passe de 88 ms pour 0,010 torr de Ne à 7 ms pour 0,19 torr de Ne, les décharges étant minimales dans les deux cas). Tous les temps de relaxation nucléaire trouvés ici pour ²¹Ne dans une décharge sont beaucoup plus courts que ceux mesurés dans des conditions analogues pour ³He [⁸⁹].

Cette étude en est encore à un stade trop préliminaire pour qu'on puisse conclure avec certitude sur l'ensemble des mécanismes de la relaxation nucléaire de ²¹Ne dans les mélanges hélium-néon soumis à une décharge. On peut cependant faire une remarque : la forte influence du niveau de décharge et de la pression de néon sur la relaxation nucléaire indique que celle-ci se produit principalement en phase vapeur et non sur les parois des cellules.

On peut d'abord penser que le noyau de ²¹Ne, par l'intermédiaire de son moment quadrupolaire électrique, a une certaine probabilité d'être désorienté par tous les types de collisions qu'il subitdans la décharge (collisions avec des électrons, des ions, des métastables de néon, etc.); cependant étant donnée la très courte durée de ces collisions, l'ordre de grandeur qu'on peut calculer pour ces perturbations désorientatrices est nettement trop faible pour expliquer les temps de relaxation courts observés.

On peut alors envisager différents autres processus affectant l'atome de ²¹Ne dans l'état fondamental et susceptibles de modifier l'état de son spin nucléaire : ainsi les collisions d'échange de métastabilité avec les atomes de néon dans l'état ${}^{3}P_{2}$ (déjà évoquées au § 3 comme l'un des mécanismes possibles de l'orientation nucléaire de l'état fondamental), ou bien les colli-

- 169 -

sions avec les électrons de la décharge qui portent l'atome de ²¹Ne dans un état excité. Notons que ces deux processus introduisent une relaxation de l'orientation nucléaire transversale de ²¹Ne qui dépend fortement du niveau de la décharge; ceci est bien en accord avec les résultats expérimentaux.

5) Orientation électronique de niveaux excités de ²¹Ne

Nous avons ensuite cherché à mettre en évidence une orientation électronique dans différents niveaux excités de ²¹Ne, couplée à l'orientation nucléaire de l'état fondamental. Cette méthode a déjà été décrite pour ³He (cf. § B,I,1); elle semblait d'autant plus susceptible d'être étendue à ²¹Ne que les structures hyperfines a des niveaux excités de cet isotope sont grandes; elles ont été mesurées pour un certain nombre de niveaux par RASMUSSEN et coll. [¹⁶²] et récemment calculées par LIBERMANN [¹⁶³] : elles sont fréquemment beaucoup plus grandes que la largeur naturelle des niveaux, ce qui permet au couplage hyperfin a $\vec{1}$. \vec{J} de transformer partiellement de façon efficace l'orientation nucléaire < $\vec{1}$ > en orientation électronique < \vec{J} > pendant la durée de vie T de ces états excités (cf. § B,I,1).

Le dispositif expérimental ne pouvait cependant pas être tout à fait semblable à celui employé pour l'expérience analogue dans le cas de ³He (cf. figure 28). Nous avons vu en effet que le pompage optique de ²¹Ne utilise toute une série de raies spectrales rouges du néon; le faisceau pompant, se propageant dans la direction de \vec{B}_0 , ne comporte pas de filtre. Il est par suite difficile d'observer, dans la même direction longitudinale, la polarisation lumineuse des raies émises par les atomes de néon. Nous avons donc choisi d'observer la lumière émise par la décharge perpendiculairement à la direction de \vec{B}_0 . Le montage expérimental est alors analogue à celui décrit au § B,VI,3, β : il comprend deux faisceaux de pompage parallèles à \vec{B}_0 ; la détection, perpendiculaire à \vec{B}_0 , comporte un analyseur circulaire, un filtre interférentiel isolant la raie étudiée et un photomultiplicateur (la lampe émettant le faisceau croisé du § B,VI,3, β est ici supprimée).

Un tel dispositif implique la détection de la composante transversale de l'orientation électronique dans le niveau excité, c'est-à-dire la présence d'une orientation nucléaire transversale dans le niveau fondamental. C'est pourquoi, comme dans l'expérience décrite au § B,VI,3, β , nous avons effectué une résonance magnétique nucléaire du fondamental en appliquant un champ oscillant \vec{B}_1 cos ω t perpendiculaire à \vec{B}_0 . A la résonance, il apparaît une orientation nucléaire transversale dans l'état fondamental de ²¹Ne, qui précesse autour de \vec{B}_0 à la pulsation ω . Comme dans le cas de ³He [¹⁵¹], il en résulte pour les niveaux excités de ²¹Ne une orientation électronique transversale, qui effectue une précession forcée autour de \vec{B}_0 à la pulsation ω de la résonance nucléaire. Il est bien connu [¹⁸][⁸⁷] qu'un tel couplage entre les orientations transversales de deux niveaux de facteurs de Landé très différents (l'un d'origine nucléaire, l'autre d'origine électronique) implique que le champ magnétique B₀ n'ait pas une valeur trop élevée : la pulsation de Larmor ω_e dans le niveau excité ne doit pas être très supérieure à l'inverse l/T de sa durée de vie T; en pratique ceci limite la valeur de B₀ à quelques Gauss.

Dans ces conditions, nous avons cherché à mettre en évidence des modulations à la pulsation ω du signal recueilli par le photomultiplicateur; celuici est analysé par une détection synchrone, dont la référence est synchronisée sur le champ de radiofréquence. En balayant B₀ autour de la valeur correspondant à la résonance nucléaire du fondamental, nous avons enregistré, après un règlage convenable de la phase de la détection synchrone, une courbe ayant une forme de dispersion analogue à celle de la figure 51.

Nous avons ainsi mis en évidence une polarisation lumineuse circulaire de l'ordre de 10⁻⁵ pour plusieurs raies de ²¹Ne émises par la décharge [¹⁶⁴]. L'ensemble des résultats expérimentaux est rassemblé dans le tableau XII; les valeurs indiquées pour le rapport signal sur bruit correspondent à des constantes de temps de la détection synchrone de 30 s. On peut ainsi détecter l'orientation nucléaire de ²¹Ne avec un assez bon rapport signal sur bruit. Celui-ci est de l'ordre de 25 pour le signal de la figure 51 : cet enregistrement représente la polarisation lumineuse de plusieurs raies spectrales de ²¹Ne, le filtre interférentiel de la détection ayant été remplacé par un filtre coloré Kodak Wratten W 26 (la constante de temps de mesure étant toujours de 30 s). Cette méthode constitue un progrès sensible par rapport à la technique de détection précédemment utilisée

- 171 -

Niveau étudié Notation de Paschen	Configuration	Valeur de J	Raie observée (Notation de Paschen)	Longueur d'onde (Å)	Taux de polarisa- tion obte- nu	Rapport signal sur bruit
2p ₂	2p ⁵ 3p	1	$2p_2 \rightarrow 1s_2$	6.599	1,4.10 ⁻⁵	20
2p ₄	2p ⁵ 3p	2	2p₄ → ls₄	6.096	2,5 "	20
2p 5	2p ⁵ 3p	1	2p ₅ → ls ₂	6.717	2,9 "	20
2p ₆	2p ⁵ 3p	2	$2p_6 \rightarrow 1s_2$	6.930	2,0 "	20
3s ₂	2p ⁵ 4s	1	$3s_2 \rightarrow 2p_4$	6.328	2,0 "	15

TABLEAU XII

 $[1^{02}]$ (cf. § B,VI,3, β). Elle présente cependant un inconvénient pour détecter l'orientation nucléaire de ²¹Ne : comme nous l'avons vu plus haut, elle est limitée aux faibles valeurs du champ magnétique B₀ ($\omega_{e}\tau \leq 1$).

6) Conclusion

Nous avons le projet d'étendre aux autres gaz rares les différentes expériences décrites ici dans le cas de ²¹Ne. Dans ce but nous avons en préparation un nouveau montage expérimental permettant de contrôler à volonté la pression de gaz rare dans les cellules de résonance. En particulier nous pensons mettre en évidence une orientation nucléaire dans l'état fondamental des isotopes impairs de Kr et Xe, par pompage optique de leurs niveaux métastables dans une décharge. (Nous avons déjà observé la résonance du niveau métastable ${}^{3}P_{2}$ du krypton dans des mélanges de krypton et d'hélium). Nous envisageons également d'étendre à ces isotopes la méthode d'orientation électronique des états atomiques excités,déjà appliquée avec susces au cas de 3 He, puis de 21 Ne. Ces expériences ouvriront la voie à de nombreuses mesures de spectroscopie pour ces atomes (déterminations de durées de vie, de structures hyperfines, de facteurs de Landé), ainsi qu'à des études de collisions dans les décharges (collisions d'échange de métastabilité, d'échange de charge, collisions Penning, etc.) Le pompage optique des gaz rares dans une décharge semble offrir des thèmes de recherches très variés et encore inexplorés.

- 175 -

CONCLUSION

En résumé, nous avons décrit dans ce mémoire l'obtention par des méthodes optiques d'une orientation nucléaire dans le niveau fondamental d'atomes diamagnétiques possédant un spin nucléaire. Dans la partie A, nous avons examiné le cas où la raie de résonance de l'élément étudié peut être expérimentalement employée pour le pompage de la vapeur et la détection de son orientation (cas des isotopes impairs de Hg, Cd et Zn). Dans la partie B, nous avons envisagé le cas où, cette dernière méthode étant inapplicable, on utilise la grande souplesse de possibilités offertes par les décharges dans les gaz, en conjugaison avec les techniques du pompage optique (comme pour les isotopes impairs des gaz rares).

Les résultats essentiels que nous avons obtenus et les prolongements auxquels ils peuvent donner lieu sont les suivants: (a)

- Obtention d'une orientation et d'un alignement nucléaires dans l'état fondamental de l'isotope radioactif ¹⁰⁹Cd par pompage optique
- Mesure très précise du moment magnétique nucléaire de cet isotope, ainsi relié à celui du proton
- Etude de la relaxation nucléaire de ¹⁰⁹Cd par collisions contre les parois de silice de la cellule, qui met en évidence sans ambiguité le rôle d'interactions du type quadrupolaire électrique désorientatrices pour les noyaux de ¹⁰⁹Cd; le prolongement le plus intéressant de ce travail serait d'essayer d'étendre les mesures de relaxation nucléaire à un domaine de champ magnétique suffisamment fort pour qu'on puisse déterminer directement les temps de corrélation des différentes interactions désorientatrices.

(b)

Obtention d'un alignement nucléaire de 67 Zn par la raie $\lambda = 3.076$ Å; les temps de relaxation nucléaires étant restés très courts dans ce cas, ce résultat n'a guère été exploité; néanmoins les taux de polarisation nucléaire obtenus (~ 1%) sont suffisants pour qu'on puisse envisager de reprendre cette expérience pour l'isotope radioactif 65 Zn : on pourrait alors mettre en évidence l'orientation nucléaire de 65 Zn sur l'anisotropie du rayonnement γ émis lors de la désintégration de son noyau.

Etude des collisions d'échange de métastabilité dans ³He (et dans les mélanges ³He-⁴He) pompé optiquement dans une décharge. Nous avons montré que l'échange de l'orientation électronique entre les atomes lors de l'échange de métastabilité n'avait pas été traité correctement par les auteurs antérieurs. Après une étude théorique soigneuse de l'aspect angulaire de ces collisions, des vérifications expérimentales détaillées en ont été effectuées : DUPONT-ROC a étudié l'élargissement et le déplacement de la raie de résonance magnétique de l'état fondamental de ³He, tandis que nous avons mesuré les largeurs des courbes de résonance dans le niveau métastable triplet de l'hélium. L'accord entre la théorie et l'expérience est très bon. Nous avons montré que la valeur généralement admise pour la section efficace d'échange de métastabilité dans ³He devait être modifiée par un facteur de l'ordre de 2. L'extension au domaine des basses températures de ces expériences de pompage optique de l'hélium dans une décharge semble offrir des possibilités de mesures très intéressantes (sections efficaces d'échange, de diffusion, etc.), susceptibles de donner des informations sur les potentiels d'interaction interatomique dans l'hélium.

(<u>d</u>)

(c)

Mesure de grande précision du facteur de Landé du niveau métastable triplet de "He (rapporté au facteur de Landé nucléaire de ³He dans l'état fondamental). Cette mesure offre l'intérêt de pouvoir être comparée avec une estimation théorique précise, fondée sur l'électrodynamique quantique. Notre détermination expérimentale présente un net désaccord avec la valeur théorique, ainsi qu'avec le résultat d'une mesure antérieure, mais moins précise. Il serait intéressant d'améliorer la précision de notre mesure (par exemple en refroidissant la décharge), ainsi que de la reprendre en comparant la fréquence de résonance du métastable de l'hélium à celle d'autres espèces atomiques bien choisies (hydrogène atomique, proton, alcalins, ion He⁺, etc.) introduites dans la décharge. (e)

Mise en évidence de la résonance de l'ion ³He⁺ dans son état fondamental. Cette étude a déjà fourni une mesure de la section efficace des collisions d'échange de charge dans ³He pour des ions d'énergie thermique à la température ordinaire. Ses prolongements sont nombreux : extension à l'ion ⁴He⁺, mesure précise du facteur de Landé de ces ions, étude de l'échange de charge ainsi que de la diffusion ambipolaire des ions en fonction de la température, etc. Orientation nucléaire de ²¹Ne dans l'état fondamental par pompage optique. Nous avons déjà obtenu de nombreux résultats préliminaires, montrant l'existence de forts couplages entre les orientations de divers niveaux de l'atome ²¹Ne dans la décharge (niveau fondamental, excités, métastables ³P₀ et ³P₂). Ceci ouvre la voie à un grand nombre de mesures de spectroscopie pour cet atome (structures hyperfines, durées de vie, facteurs de Landé électroniques et nucléaires, etc.), ainsi qu'à diverses études de collisions dans les décharges dans le néon et les mélanges He-Ne (transferts quasi-résonnants d'excitation, échange de métastabilité, échange de charge, diffusion, etc.).

Enfin, on peut remarquer que toutes les méthodes très générales décrites ici et développées dans le cas de ³He et ²¹Ne pompés optiquement dans une décharge sont susceptibles d'extension aux isotopes impairs de tous les autres gaz rares.

BIBLIOGRAPHIE

	A. KASTLER - J. Phys. Rad. <u>11</u> , 255 (1950) J. Opt. Soc. Am. <u>47</u> , 460 (1957)
[²]	C.S. WU, E. AMBLER, R.W. HAYWARD, D.D. HOPPES et R.P. HUDSON - Phys. Rev. 105, 1413 (1957)
[³]	E.D. COMMINS et D.A. DOBSON - Phys. Rev. Lett. 10, 347 (1963)
[4]	F.P. CALAPRICE, E.D. COMMINS et D.A. DOBSON - Phys. Rev. 137, 1453 (1965) F.P. CALAPRICE - Thèse, University of California, Berkeley (1967)
[[⁵]]	H. ACKERMANN, D. DUBBERS, Y. MERTENS, A. WINNACKER et P. von BLANCKENHAGEN Phys. Lett. 29B, 485 (1969) Z. Physik,244, 289 (1971)
[6]	H. ACKERMANN, D. DUBBERS, Y. MERTENS, A. WINNACKER et P. von BLANCKENHAGEN Z. Physik, <u>228</u> , 329 (1969)
[7]	J. BROSSEL, J.L. MOSSER et M. WINTER - J. Phys. Rad. <u>23</u> , 668 (1952) M.A. BOUCHIAT et J. BROSSEL - CRAS, <u>260</u> , 6823 (1965) <u>Série</u> B
[8]	J.T. SIBILIA - Thèse, Princeton University (1962)
[9]	H.J. BESCH, U. KÖPF et E.W. OTTEN - Phys. Lett. <u>25B</u> , 120 (1967)
[¹ ⁰]	H.J. BESCH, U. KÖPF, E.W. OTTEN et Ch. von PLATEN - Phys. Lett. <u>26B</u> , 721 (1968)
[[¹]].	B. CAGNAC - J. Phys. Rad. <u>19</u> , 863 (1958) B. CAGNAC - Thèse, Paris (1960); Ann. de Physique <u>6</u> , 467 (1961)
[¹²]	C. COHEN-TANNOUDJI - Journ. de Phys. 24, 653 (1963)
[¹³]	G. LEMEIGNAN - Thèse de 3e cycle, Paris (1967) B. CAGNAC et G. LEMEIGNAN - CRAS, <u>264</u> , 1850 (1967) Série B A.M. BONNOT - Thèse de 3e cycle, Paris (1971)
[14]	F.D. COLEGROVE, L.D. SCHEARER et G.K. WALTERS - Phys. Rev. 132, 2561 (1963)
[¹⁵]	F. BITTER et J. BROSSEL - Phys. Rev. 85, 1051 (1952)
[¹⁶]	J. BROSSEL et F. BITTER - Phys. Rev. <u>86</u> , 308 (1952)
[¹⁷]	J.P. BARRAT et C. COHEN-TANNOUDJI - J. Phys. Rad. 22, 329 et 443 (1961)
[¹⁸]	C. COHEN-TANNOUDJI - Thèse, Paris (1962); Ann. de Physique <u>7</u> , 423 et 469 (1962)
[¹⁹]	C. COHEN-TANNOUDJI et J. DUPONT-ROC - Phys. Rev. <u>5</u> , 968 (1972) J. DUPONT-ROC - Thèse, Paris (1972)
[²⁰]	S. HAROCHE - Thèse, Paris (1971); Ann. de Physique <u>6</u> , 189 et 327 (1971)
	W.T. WALTER - Q.P.R., M.I.T. n° 65, Avril 1962
[²²]	0. REDI et H.H. STROKE - Phys. Rev. <u>A2</u> , 1135 (1970)
[²³]	I.M. POPESCU et L.N. NOVIKOV - CRAS, <u>259</u> , 1321 (1964) Série B

[²⁴] J.C. LEHMANN - Thèse, Paris (1966); Ann. de Physique 2, 345 (1967) [²⁵] M. DUMONT - Thèse de 3e cycle, Paris (1962) ¶27] J.C. LEHMANN - Journ. de Phys. 25, 809 (1964) **28** M. LEDUC et J. BROSSEL - CRAS, 266, 287 (1968) Série B [²⁹] M. LEDUC et J. BROSSEL - CRAS, 266, 12 (1968) Série B [³⁰] M. LEDUC, J. BROSSEL et J.C. LEHMANN - CRAS, 263, 740 (1966) Série B [³¹] P.W. SPENCE et M.N. McDERMOTT - Phys. Lett. 24A, 430 (1967) **[**³²] A. LURIO et R. NOVICK - Phys. Rev. 134, 608 (1964) [³³] P.H. GARRETT - Phys. Rev. 40, 779 (1932) [³⁴] J. BUTEAUX - D.E.S. Caen (1962) [³⁵] M.A. GUIOCHON, J.E. BLAMONT et J. BROSSEL - CRAS, 243, 1859 (1956) Série B **[**³⁶] A. LURIO - Phys. Rev. 142, 46 (1966) [³⁷] J.P. CHARTIER et Y. LECLUSE - CRAS, 267, 195 (1968) Série B F.W. BYRON, M.N. McDERMOTT, R. NOVICK, B.W. PERRY et E. SALOMAN -**[**³⁸] Phys. Rev. 134, 47 (1964) [³⁹] P. THADDEUS et R. NOVICK - Phys. Rev. 126, 1774 (1962) ¶⁴⁰] J. BLAISE et H. CHANTREL - J. de Phys. 18, 193 (1957) ¶⁴¹] H.G. DEHMELT - Phys. Rev. 105, 1487 (1957) [^{4 2}] M.N. McDERMOTT et R. NOVICK - Phys. Rev. 131, 707 (1963) [⁴³] P. THADDEUS et M.N. McDERMOTT - Phys. Rev. 132, 1186 (1963) [⁴⁴] J. MANUEL et C. COHEN-TANNOUDJI - CRAS, 257, 413 (1963) Série B J. MANUEL - D.E.S., Paris (1964) [⁴⁵] C. COHEN-TANNOUDJI et F. LALOË - J. de Phys. 28, 505 et 722 (1967) F. LALOË, M. LEDUC et P. MINGUZZI - J. de Phys. 30, 277 et 341 (1969) [46] [47] F. LALOË, M. LEDUC et P. NINGUZZI - CRAS, 266, 1517 (1968) Série B CRAS, 267, 328 (1968) Série B [⁴⁸] F. LALOË - Thèse, Paris (1970); Ann. de Physique 6, 5 (1971) [49] - "Atom und molekular physik", Springer LANDOLT - BORNSTEIN Verlag (1950) W. FRANZEN - Phys. Rev. 115, 850 (1959) [⁵⁰] [⁵¹] J.C. LEHMANN et J. BROSSEL - CRAS, 262, 624 (1966) Série B M.A. BOUCHIAT - Thèse, Paris (1964); Publ. Sci. et Tech. du Ministère [⁵²] de l'Air, France, Note techn. 146, 73 (1965) M.A. BOUCHIAT et J. BROSSEL - Phys. Rev. 147, 41 (1966) H.C. TORREY - Phys. Rev. 130, 2306 (1963) [⁵³] 1⁵⁴] J.P. FAROUX - Thèse, Paris (1969) [⁵⁵] J.H. de BOER - "The dynamical character of adsorption", Oxford Clarendon Press (1953) L.W. SWANSON, R.W. STRAYER et L.E. DAVIS - Surface Science, 9, 165 (1968) [⁵⁶]

[⁵⁷] M. LEDUC et J. BROSSEL - CRAS, 266, 12 (1968) Série B [58] J.C. LEHMANN et R. BARBE - CRAS, 257, 3152 (1963) Série B [59] M. LEDUC et J.C. LEHMANN - CRAS, <u>26</u>2, 736 (1966) Série B [⁶⁰] M.N. McDERMOTT, R.L. CHANEY et P.W. SPENCE - B.A.P.S. 11, 354 et 483 (1966) < [⁶¹] W.E. LAMB - Phys. Rev. 60, 817 (1941) [⁶²] F.D. FEIOCK et W.R. JOHNSON - Phys. Rev. Lett. 21, 785 (1968) [63] W.C. DICKINSON - Phys. Rev. 80, 563 (1950) [64] F.E. CLOSE et H. OSBORNE - Phys. Lett. 34B, 400 (1971) 1⁶⁵ E.B.D. LAMBE - Thèse, Princeton University (1959) E.B.D. LAMBE - "Polarisation, matière et rayonnement" (Société Française de Physique, Paris, (1969)), p. 441 [66] P.F. WINKLER, D. KLEPPNER, THAN MYINT et F.G. WALTHER - Phys. Rev. A5, 83 (1972)[⁶⁷] B.N. TAYLOR, W.H. PARKER et D.N. LANGENBERG - Rev. of Modern Physics, 41, 375 (1969) **[**⁶⁸] C.M. LEDERER, J.M. HOLLANDER et I. PERLMAN - "Table of isotopes", J. Wiley (1968) [69] J.H. HAMILTON, S.R. AMTEY, B. van NOOIJEN, A.V. RAMAYYA et J.J. PINAJIAN -Phys. Lett. 19, 682 (1966) **[**⁷⁰] K. SIEGBAHN - " $\alpha\beta\gamma$ ray spectroscopy", tome 2, chap. XIX, North Holland, Amsterdam (1965) [''] R.S. VAN DYCK, C.E. JOHNSON et H.A. SHUGART - Phys. Rev. Lett. 25, 1403 (1970) [⁷²] V. JACOBS - Phys. Rev. A4, 939 (1971) [⁷³] G.W.F. DRAKE - Phys. Rev. A3, 908 (1971) [74] G. FEINBERG et J. SUCHER - Phys. Rev. Letters, 26, 681 (1971) 175 H J.P. DESCOUBES - Thèse, Paris (1967) **76**] I. MARTINSON et W.S. BICKEL - Phys. Letters, 30A, 524 (1969) [⁷⁷] F.D. COLEGROVE et P.A. FRANKEN - Phys. Rev. 119, 680 (1960) [⁷⁸] G.K. WALTERS, F.D. COLEGROVE and L.D. SCHEARER - Phys. Rev. Lett. 8, 439 (1962) **[**⁷⁹] J.A. WHITE, L.Y. CHOW, C. DRAKE et V.W. HUGHES - Phys. Rev. Lett. 3, 428 (1959)S.D. ROSNER et F.M. PIPKIN - Phys. Rev. A1, 571 (1970) [⁸⁰] L.D. SCHEARER - Phys. Rev. Lett. 21, 660 (1968) L.D. SCHEARER - Phys. Rev. 180, 83 (1969) L.D. SCHEARER - Phys. Lett. 28A, 660 (1969) ۲⁸¹ آ L.D. SCHEARER - Phys. Rev. 188, 505 (1969) 1⁸²] A.B. GUTNER, R.A. ZHITNIKOV et A.I. OKUNEVITCH - ZhETF Pis. Red. 13, 420 (1971); JETP Letters 13, 298 (1971)

[⁸³] F.D. COLEGROVE, L.D. SCHEARER et G.K. WALTERS - Phys. Rev. 132, 2561 (1963)

[⁸⁴] F. GROSSETÊTE, F. LALOE, C. COHEN-TANNOUDJI et J. BROSSEL - CRAS, 265B, 1247 (1967) M. PAVLOVIC et F. LALOË - J. de Phys. 31, 173 (1970) **185** · [⁸⁶] F. LALOË - Thèse, Paris (1970); Ann. de Physique 6, 5 (1971) **187** R.B. PARTRIDGE et G.W. SERIES - Proc. Phys. Soc., London, 88, 983 (1966) [88] H.J. KOLKER et H.H. MICHELS - J. of Chem. Phys. 50, 1762 (1969) 1⁸⁹] L.D. SCHEARER - Thèse, Rice University (1966) [90] J. DUPONT-ROC - CRAS, 273B, 45 et 283 (1971) [⁹¹] J. DUPONT-ROC, F. LALOË et M. LEDUC - J. de Phys., à paraître (1972) [⁹²] J. DUPONT-ROC, M. LEDUC et F. LALOË - Phys. Rev. Letters, 27, 467 (1971) [⁹³] M. LEDUC - Communication à la 3e conférence de l'EGAS, Reading (1971) [⁹⁴] M. LEDUC et F. LALOË - J. de Phys. 33, 49 (1972) **1**⁹⁵ W. PERL et V.W. HUGHES - Phys. Rev. 91, 842 (1953) **1**⁹⁶] G. BREIT - Nature, 122, 649 (1928) H. MARGENAU - Phys. Rev. 57, 383 (1940) ¶97] C.W. DRAKE, V.W. HUGHES, A. LURIO et J.A. WHITE - Phys. Rev. 112, 1627 (1958) [⁹⁸] V.W. HUGHES, G. TUCKER, E. RHODERICK et G. WEINREICH - Phys. Rev. 91, 828 (1953). [99] M. LEDUC et F. LALOË - Optics Communications, 3, 56 (1971) L100J H.A. SCHUESSLER, E.N. FORTSON et H.G. DEHMELT - Phys. Rev. 187, 5 (1969) L101 H.G. DEHMELT et F.G. MAJOR - Phys. Rev. Lett. 8, 213 (1962) **102** M. LEDUC, F. LALOË et J. BROSSEL - CRAS, 271, 342 (1970) Série B [¹⁰³] A. NOËL, M. LEDUC et F. LALOË - CRAS, 274, 77 (1972) Série B [¹⁰⁴] A. NOËL - Thèse de 3e cycle, Paris (1972) T105] J. DUPONT-ROC - Thèse, Paris (1972) [106] R. BYERLY - Master Thesis, Rice University (1965) [¹⁰⁷] W.A. FITZSIMMONS - Ph.D. Thesis, Rice University (1968) **I**¹⁰⁸ L.D. SCHEARER, F.D. COLEGROVE et G.K. WALTERS - Rev. Sci. Instr. 35, 767 (1964) **109** H.G. DEHMELT - Rev. Sci. Instr. 35, 768 (1964) **[**¹¹⁰] A. DÖNSZELMANN - Thèse, Amsterdam (1970) Physica, 56, 138 (1971) **[**¹¹¹] F.D. COLEGROVE, L.D. SCHEARER et G.K. WALTERS - Phys. Rev. 135, 353 (1964) ¶¹¹²] R.C. GREENHOW - Phys. Rev. 136, 660 (1964) ¶¹¹³] W.A. FITZSIMMONS, N.F. LANE et G.K. WALTERS - Phys. Rev. 174, 193 (1968) [¹¹⁴] Ya. FUGOL' et P.L. PAKHOMOV - Sov. Phys. JETP, 26, 526 (1968) **I**¹¹⁵ R. BYERLY - Ph.D. Thesis, Rice University (1967) L.C. BRADLEY et H. KUHN - Proc. Roy. Soc. 204, 325 (1951) [116]

- 182 -

[¹¹⁷] B.N. SEVAST'YANOV et R. ZHITNIKOV - ZhEksp. Theor. Fiz. 56, 1508 (1969); Soviet Physics, J.E.T.P. 29, 809 (1969) **[**¹¹⁸] L.D. SCHEARER et L.A. RISEBERG - Phys. Lett. 33A, 325 (1970) [¹¹⁹] O. NEDELEC et A. DOLERON - Phys. Lett. 35A, 213 (1971) [¹²⁰] G. BREIT - Phys. Rev. 39, 616 (1932) [¹²¹] H.A. BETHE et E.E. SALPETER - "Handbuch der Physik", tome 35, p. 88 : "Quantum mechanics of one and two electron systems", Springer Verlag, Berlin (1957) [¹²²] F. BOPP et H. KLEINPOPPEN - "Physics of the one and two electron atoms", North Holland (1968) [¹²³] J. SCHWINGER - Phys. Rev. 73, 416 (1948); Phys. Rev. 76, 790 (1949) C.M. SOMMERFIELD - Phys. Rev. 107, 328 (1957) Ann. Physik (6) 5, 26 (1958) A. PETERMAN - Helv. Phys. Acta, 30, 407 (1957) [124]J.C. LEHMANN et C. COHEN-TANNOUDJI - CRAS, 258, 4463 (1964) Série B **[**¹²⁵] W. HAPPER et B.S. MATHUR - Phys. Rev. Letters, 18, 727 (1967) **126** L.D. SCHEARER - Phys. Rev. 127, 512 (1962) **127** L.D. SCHEARER et F.D. SINCLAIR - Phys. Rev. 175, 36 (1968) **[**¹²⁸] J. DUPONT-ROC et C. COHEN-TANNOUDJI - CRAS, 267, 1211 (1967) Série B [¹²⁹] F. BLOCH et A. SIEGERT - Phys. Rev. 57, 522 (1940) [¹³⁰] W.L. WILLIAMS et V.W. HUGHES - Phys. Rev. 185, 1251 (1969) [¹³¹] H.L. ANDERSON - Phys. Rev. 76, 1460 (1949) **132** THAN MYINT - Ph.D. Thesis, Harvard University (1966) THAN MYINT, D. KLEPPNER, N.F. RAMSEY et H.G. ROBINSON - Phys. Rev. Lett. 17, 405 (1966) [¹³³] N.F. RAMSEY - Phys. Rev. 78, 699 (1950) N.J. HARRICK, R.G. BARNES, P.J. BRAY et N.F. RAMSEY - Phys. Rev. 90, 260 (1953) [¹³⁴] H.A. THOMAS - Phys. Rev. 80, 901 (1950) [¹³⁵] H. GUTOWSKY et R.E. McCLURE - Phys. Rev. 81, 276 (1951) [¹³⁶] H. ACKERMANN, G. Zu PUTLITZ et E.W. WEBER - Phys. Letters, 24A, 567 (1967) · [137] F. von SICHART, H.J. STÖCKMANN, H. ACKERMANN et G. Zu PUTLITZ - Z. Physik, 236, 97 (1970) **[**¹³⁸] E.N. FORTSON, F.G. MAJOR et H.G. DEHMELT - Phys. Rev. Lett. 16, 221 (1966) 1139 T H.M. GIBBS et G.G. CHURCHILL - Phys. Rev. A3, 1617 (1971) [¹⁴⁰] S.D. BAKER, E.B. CARTER, D.O. FINDLEY, L.L. HATFIELD, G.C. PHILLIPS, N.D. STOCKWELL et G.K. WALTERS - Phys. Rev. Lett. 20, 738 (1968) **1**¹⁴¹ J.K. MITCHELL et E.N. FORTSON - Phys. Rev. Lett. 21, 1621 (1968) [¹⁴²] H. NIENSTÄDT, G. Zu PUTLITZ et S. ULLRICH - Communication à la 3e conférence de l'EGAS, Reading (1971)

- 183 -

- 184 -

[¹⁴⁴] C.H. LIU, R.L. KING et H.H. STROKE - Phys. Rev. Letters, 23, 209 (1969) 1¹⁴⁵ T. HADEISHI et C.H. LIU - Phys. Rev. 170, 145 (1968) 1¹⁴⁶ E.W. McDANIEL - "Collision phenomena in ionized gases", John Wiley (1964) [¹⁴⁷] J.F. DELPECH - Thèse, Paris (1968) **I**¹⁴⁸ P.J. BENDT - Phys. Rev. 110, 85 (1958) 1¹⁴⁹ L.D. SCHEARER - Phys. Lett. 27A, 544 (1968) [150] R. BARBE, F. LALOË et M. LEDUC - CRAS, à paraître [¹⁵¹] F. LALOË - Thèse de 3e cycle, Paris (1969) f¹⁵²] M. DUCLOY - Thèse de 3e cycle, Paris (1968) [¹⁵³] A. JAVAN, W.R. BENNETTet D.R. HERRIOTT - Phys. Rev. Lett. 6, 106 (1961) W.R. BENNETT- Applied Optics (Gaseous Optical Masers), supplément 24 (1962) [¹⁵⁴] E.E. BENTON, E.E. FERGUSON, F.A. MATSEN et W.W. ROBERTSON - Phys. Rev. 128, 206 (1962) J.T. MASSEY, A.G. SCHULZ, B.F. HOCHHEIMER et S.M. CANNON - J. Appl. Phys. 36, 658 (1965) [¹⁵⁵] C.R. JONES, F.E. NILES et W.W. ROBERTSON - J. of Appl. Phys. 40, 3967 (1969 1156 g R.M. LANGDON, K.G. NICHOLS et G.C. THOMAS - J. Phys. A, 2, 611 (1969) [¹⁵⁷] A.L. SCHMELTEKOPF et F.C. FEHSENFELD - J. of Chem. Phys. 53, 3173 (1970) T158 J.T. LA TOURRETTE, W.E. QUINN et N.F. RAMSEY - Phys. Rev. 107, 1202 (1957) T159 J. MARGERIE - Communication privée **[**¹⁶⁰] B. LAHAYE - CRAS, 271, 537 (1970) Série B B. LAHAYE et J. MARGERIE - Optics Communications, 1, 259 (1970) **[161**] J.R. DIXON et F.A. GRANT - Phys. Rev. 107, 118 (1957) [¹⁶²] E. RASMUSSEN et V. MIDDELBOE - Mat. Fys. Medd. Dan Vid. Selsk, 32, n° 14 (1960)**163** S. LIBERMANN - Thèse, Paris (1971) [¹⁶⁴] A. NOËL, M. LEDUC et F. LALOË - CRAS, 274, 77 (1972) Série B

APPENDICE .a. I

Nous donnons ici le calcul de l'ordre de grandeur de l'anisotropie γ à laquelle on peut s'attendre, dans une expérience où des noyaux de ⁶⁵Zn sont polarisés par pompage optique. Nous indiquons également quelles informations pourraient être déduites du succès de cette expérience.

α) Schéma de désintégration de ⁶⁵Zn

Il est donné sur la figure 5-b [68]. On voit que 49% de la désintégration du noyau de 65 Zn s'effectue par capture électronique vers le niveau excité à 1,115 MeV de 65 Cu. Pour la désexcitation de ce niveau vers le niveau fondamental de 65 Cu, qui est stable, il y a compétition entre le rayonnement γ et la conversion interne. La mesure du rapport de conversion α entre ces deux processus indique que le rayonnement γ comporte un mélange de multipolarités : on estime assez grossièrement, en comparant les valeurs théoriques et expérimentales de α , que le γ est à 80% M(1) et à 20% E(2) [69].

β) <u>Calcul de la distribution angulaire de γ </u>

Considérons un ensemble de noyaux de ⁶⁵Zn (I = 5/2) qui avant désintégration possède un certain taux d'alignement longitudinal $\leq \frac{M_z^2}{Z}$ produit par pompage optique. On suppose qu'il existe une symétrie de $< \frac{M_z^2}{M_z^2}_0$ rotation autour d'un axe Oz. Après la capture électronique, une certaine partie de cet alignement est transférée au niveau à 1,115 MeV de ⁶⁵Cu (I = 5/2). Soit x le taux d'alignement dans ce niveau. Si θ est l'angle que fait la direction d'émission du rayonnement γ avec l'axe Oz, appelons $W(\theta)$ la répartition spatiale du γ ($W(\theta)$ est normalisé de telle sorte que $\int W(\theta) d\Omega = 4\pi$). On peut montrer [⁷⁰] que dans le cas d'une transition γ qui est un mélange de radiations dipolaire et quadrupolaire et qui relie des niveaux nucléaires dont les spins diffèrent de 1, $W(\theta)$ est relié à x par la formule :

$$W(\theta) = 1 + \frac{x}{8} (3 \cos 2\theta + 1) \Delta$$

(a.I.)

 Δ est un nombre qui rend compte du mélange de M(1) et E(2); il s'exprime en fonction de a₁ et a₂, les éléments de matrice réduits pour les radiations dipolaire et quadrupolaire respectivement (a₁² + a₂² = 1). Dans le cas où les spins nucléaires des niveaux initial et final valent 5/2 et 3/2, on calcule que Δ s'exprime par :

$$\Delta = a_1^2 - 5, 1 a_1 a_2 - 0, 51 a_2^2 \qquad (a.I.2)$$

 Δ est un nombre compris entre +1 et -2,5 selon les valeurs de a₁ et a₂.

On pourrait envisager l'expérience de la façon suivante : deux compteurs placés l'un selon l'axe Oz, l'autre dans une direction perpendiculaire, recueillent les intensités du rayonnement γ de l,115 MeV de ⁶⁵Zn. On mesure ainsi des taux de comptage N₁(O) et N₂($\pi/2$) pendant un temps donné en présence d'alignement optique de la vapeur de ⁶⁵Zn. Puis on détruit l'alignement à l'aide d'un champ de radiofréquence pendant un nouveau laps de temps, au cours duquel on mesure N'₁(O) et N'₂($\pi/2$). On en déduit un taux d'anisotropie A :

$$A = 2 \times \frac{\frac{N_1(0)}{N_1(0)} - \frac{N_2(\pi/2)}{N_2(\pi/2)}}{\frac{N_1(0)}{N_1(0)} + \frac{N_2(\pi/2)}{N_2(\pi/2)}} = 2 \frac{W(0) - W(\pi/2)}{W(0) + W(\pi/2)} = \frac{3}{4} \times \Delta$$
(a.I.3)

On voit que le sens de l'anisotropie dépend du signe de Δ : ceci fournit un premier renseignement sur l'ordre de grandeur relatif des radiations E(1) et M(2) du γ étudié (voir la figure a.1). Si l'on admet pour a₁ et a₂ les valeurs déduites approximativement du taux de conversion interne α [⁶⁹], on trouve : Δ = -1,35. Par analogie avec ce qu'on obtient dans le cas de ⁶⁷Zn (cf. § A,VI,2, β), on peut

admettre $\frac{\langle M_z^2 \rangle}{Z_z} \simeq 1\%$ pour ⁶⁵Zn. Si l'on fait l'hypothèse que le taux d'aligne- $\langle M_z^2 \rangle_0$

ment x est comparable dans le niveau à 1,115 MeV de ⁶⁵Cu, on obtient pour A une valeur voisine de 1% : l'ordre de grandeur de ce taux d'anisotropie est tout à fait considérable.

- a.I.2 -





 $\gamma \text{ est } M(1) \text{ pur}$ (a₁ = 1, a₂ = 0, $\Delta = 1$)

•

 γ est E(2) pur (a₁ = 0, a₂ = 1, Δ = -0,51)



Y) <u>Discussion</u>

La dernière hypothèse qui vient d'être faite n'est cependant pas évidente. Un des buts de l'expérience proposée ici pourrait être, inversement, de déterminer le taux d'alignement longitudinal x du niveau à 1,115 MeV de ⁶⁵Cu à l'aide de l'anisotropie du $\hat{\gamma}$, en supposant connu le rapport Δ . L'alignement $< M_z^2 >$

 $\frac{z}{z}$ du ⁶⁵Zn étant mesuré par voie optique, on déduirait de la comparaison $\langle M_z^2 \rangle_0$

de ces deux quantités une estimation du transfert d'alignement nucléaire consécutif au processus de capture électronique. L'importance d'un tel transfert soulève un problème intéressant et encore mal connu : en effet, pendant la durée de vie τ du niveau nucléaire excité avant l'émission du γ , le noyau est soumis à de fortes perturbations provenant de champs magnétiques et de gradients de champ électrique. Ceux-ci sont produits par les "trous" dans les couches électroniques de l'atome, qui résultent de l'émission d'électrons Auger et de raies X consécutives à la capture électronique. L'atténuation éventuelle de la polarisation qui en résulte pour le niveau nucléaire excité fait encore l'objet de nombreuses controverses en Physique Nucléaire, notamment pour expliquer les expériences de corrélations angulaires entre le rayonnement γ et l'électron Auger K. Il semble cependant que les résultats de ces dernières expériences soient fortement perturbés par le fait que les noyaux étudiés sont englobés dans un milieu liquide ou solide. L'expérience que nous suggérons, à partir d'atomes de ⁶⁵Zn orientés optiquement en phase vapeur, présente l'avantage considérable de ne concerner que des atomes libres.

Malgré l'échec d'une première tentative pour produire ⁶⁵Zn à partir d'une cible de cuivre par bombardement avec des deutérons (cf. § A.VI, 3), de nouvelles irradiations sont envisagées.

APPENDICE a.II

On calcule ici les formes des courbes de résonance et les déplacements de fréquence pour les niveaux F = 3/2 et F' = 1/2 de (³He, 2³S₁) et le niveau (⁴He, 2³S₁) dans les mélanges ³He-⁴He, sous l'influence des collisions d'échange de métastabilité. Les proportions des deux isotopes sont supposées quelconques. Pour cela on écrit les équations couplées d'évolution des orientations transversales et longitudinales dans ces trois niveaux métastables, ainsi que dans l'état fondamental de ³He, sous l'effet de l'échange (cf. (111), (112), (113) et (114)), du pompage optique (cf. (51) et (117)), des champs magnétiques statique et oscillant (cf. (52), (53), (118) et (119)) et des autres causes de relaxation nucléaire du niveau (³He, 1¹S₀).

Pour les orientations transversales en régime permanent, on obtient le système d'équations couplées :

$$0 = \left[-\frac{1}{\tau} (1-\varepsilon) \frac{p_{3}}{P} - i\omega + i\omega_{m} \right] S_{+} + \frac{1}{\tau} (1-\varepsilon) \frac{p_{3}}{P} \left[\frac{2}{3} \frac{3}{2} f_{+} + \frac{4}{3} \frac{1}{2} f_{+} \right] + \frac{\omega_{1m}}{2} < S_{z} > (a.II.1)$$

$$0 = \left[-\frac{1}{\tau} (1-\frac{p_{4}}{P} \varepsilon) - i\omega + \frac{2}{3} i\omega_{m} \right] \frac{3}{2} f_{+} + \frac{5}{6\tau} \left[\frac{2}{3} \frac{p_{3}}{P} \frac{3}{2} f_{+} + \frac{4}{3} \frac{p_{3}}{P} \frac{1}{2} f_{+} + \frac{p_{4}}{P} (1-\varepsilon) S_{+} \right] + \frac{10}{9\tau} (1-\frac{p_{4}}{P} \varepsilon) i_{+f} + \frac{1}{3} \omega_{1m} < \frac{3}{2} F_{z} > (a.II.2)$$

$$0 = \left[-\frac{1}{\tau} (1-\frac{p_{4}}{P} \varepsilon) - i\omega + \frac{4}{3} i\omega_{m} \right] \frac{1}{2} f_{+} + \frac{1}{6\tau} \left[\frac{2}{3} \frac{p_{3}}{P} \frac{3}{2} f_{+} + \frac{4}{3} \frac{p_{3}}{P} \frac{1}{2} f_{+} + \frac{p_{4}}{P} (1-\varepsilon) S_{+} \right] - \frac{1}{9\tau} (1-\frac{p_{4}}{P} \varepsilon) i_{+f} + \frac{2}{3} \omega_{1m} < \frac{1}{2} F_{z} > (a.II.3)$$

$$0 = \left[-\frac{1}{\tau} (1-\frac{p_{4}}{P} \varepsilon) - i\omega + \frac{4}{3} i\omega_{m} \right] i_{+f} + \frac{1}{\tau} (1-\frac{p_{4}}{P} \varepsilon) \left[\frac{1}{3} \frac{3}{2} f_{+} - \frac{1}{3} \frac{1}{2} f_{+} \right] + \frac{1}{2} \omega_{1f} < I_{z} > f_{t}$$

De même, pour les orientations longitudinales :

$$0 = -\frac{1}{\tau} (1-\epsilon) \frac{p_3}{p} < S_z > +\frac{1}{\tau} (1-\epsilon) \frac{p_3}{p} \left[\frac{2}{3} < \frac{3}{2}F_z > +\frac{4}{3} < \frac{1}{2}F_z > \right] + \frac{\phi''}{\tau''_p} - \frac{\omega_{1m}}{2} \mathcal{R}e (S_+)$$
(a.II.5)

(a.II.4)

$$0 = -\frac{1}{\tau} \left(1 - \frac{p_{4}}{p} \epsilon\right) < {}^{3/2}F_{z} > + \frac{5}{6\tau} \left[\frac{2}{3} \frac{p_{3}}{p} < {}^{3/2}F_{z} > + \frac{4}{3} \frac{p_{3}}{p} < {}^{1/2}F_{z} > + \frac{p_{4}}{p} (1 - \epsilon) < S_{z} > \right] + \frac{10}{9\tau} \left(1 - \frac{p_{4}}{p} \epsilon\right) < I_{z} > + \frac{\phi}{\tau} - \frac{\omega_{1m}}{3} \mathcal{R}e \left({}^{3/2}f_{+}\right)$$
(a.II.6)

$$0 = -\frac{1}{\tau} \left(1 - \frac{p_4}{p} \epsilon\right) < \frac{\frac{1}{2}}{r_z} > + \frac{1}{6\tau} \left[\frac{2}{3} \frac{p_3}{p} < \frac{\frac{3}{2}}{r_z} + \frac{4}{3} \frac{p_3}{p} < \frac{\frac{1}{2}}{r_z} + \frac{p_4}{p} (1 - \epsilon) < s_z > \right] - \frac{1}{9\tau} \left(1 - \frac{p_4}{p} \epsilon\right) < I_z > + \frac{\phi'}{\tau'p} - \frac{2\omega_{1m}}{3} \mathcal{R}e \left(\frac{\frac{y_2}{r_z}}{r_z} + \frac{\phi'}{r_z} + \frac{\phi'}$$

$$0 = -\left[\frac{1}{T}\left(1 - \frac{p_{4}}{P}\epsilon\right) + \frac{1}{T_{r}}\right] < I_{z} >_{f} + \frac{1}{T}\left(1 - \frac{p_{4}}{P}\epsilon\right) \left[\frac{1}{3} < \frac{^{3}}{^{2}F_{z}} > -\frac{1}{3} < \frac{^{1}}{^{2}F_{z}} >\right] - \frac{\omega_{1f}}{2}\mathcal{R}e(i_{+f}) \qquad (a.II.8)$$

Ces équations généralisent au cas des mélanges ³He-⁴He celles obtenues au § B,II,4 pour ³He pur.

a) Résonance dans le niveau F = 3/2 de (³He, $2^{3}S_{1}$)

On suppose $\omega \simeq \frac{2}{3} \omega_m$. Le principe du calcul est analogue à celui développé au § B,II,4,b, α dans le cas de ³He pur. On fait ici encore l'hypothèse que les orientations transversales de tous les niveaux sont complètement découplées. De (a.II.2) on déduit (a.II.9), qui généralise (61) :

$$\mathcal{R}_{e}({}^{3/2}f_{+}) = \frac{\omega_{1m}}{3} < {}^{3/2}F_{z} > \frac{\left[\frac{4}{9\tau} + \frac{1}{\tau}\frac{p_{+}}{p}(\frac{5}{9} - \varepsilon)\right]}{\left[\frac{4}{9\tau} + \frac{1}{\tau}\frac{p_{+}}{p}(\frac{5}{9} - \varepsilon)\right]^{2} + (\omega - \frac{2}{3}\omega_{m})^{2}}$$
(a.II.9)

On procède ensuite par substitution pour éliminer $< S_z > dans$ (a.II.6) et (a.II.7). De (a.II.5) on tire, en négligeant le terme en $Re(S_t)$:

$$\langle S_{z} \rangle = \frac{2}{3} \langle \frac{3}{2}F_{z} \rangle + \frac{4}{3} \langle \frac{1}{2}F_{z} \rangle + \frac{\tau}{\tau''_{p}} \frac{\phi''}{(1-\varepsilon)} \frac{P}{P_{3}}$$
 (a.II.10)

On est ainsi conduit à résoudre le système (a.II.11), qui généralise (64), pour

lequel nous avons posé : $\varepsilon' = \frac{p_4}{p} \varepsilon$

$$\begin{pmatrix} \frac{4}{9} (1-\epsilon'+\alpha') & -\frac{10}{9} (1-\epsilon') \\ -\frac{1}{9} (1-\epsilon') & \frac{7}{9} (1-\epsilon') \end{pmatrix} \begin{pmatrix} < \frac{3}{2}_{F_z} > \\ & \\ < \frac{1}{2}_{F_z} > \\ < \frac{1}{2}_{F_z} > \end{pmatrix} = < I_z > \\ = < I_z > \\ -\frac{1}{9} (1-\epsilon') \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \frac{\tau}{\tau_p} \phi + \frac{5}{6} \frac{p_4}{p_3} \frac{\tau}{\tau''_p} \phi'' \\ -\frac{1}{9} (1-\epsilon') \\ + \begin{pmatrix} \frac{\tau}{\tau_p} \phi' + \frac{1}{6} \frac{p_4}{p_3} \frac{\tau}{\tau''_p} \phi'' \\ \frac{\tau}{\tau_p} \phi' + \frac{1}{6} \frac{p_4}{p_3} \frac{\tau}{\tau''_p} \phi'' \\ p & p \end{pmatrix}$$

(a.II.11)

avec :

$$\alpha' = \frac{\left(\frac{\omega_{1m}}{3}\right)^{2} \left[1 + \frac{5}{4} \frac{p_{4}}{p} - \frac{9}{4} \epsilon'\right]}{\left[\frac{4}{9\tau} + \frac{1}{\tau} \frac{p_{4}}{p} \left(\frac{5}{9} - \epsilon\right)\right]^{2} + \left(\omega - \frac{2}{3} \omega_{m}\right)^{2}}$$
(a.II.12)

En résolvant ce système, on obtient :

$$< {}^{3/2}F_{z} > = \frac{\frac{10}{3}(1-\epsilon') < I_{z} >_{f} + \frac{7}{2}\frac{\tau}{\tau_{p}}\phi + 5\frac{\tau}{\tau'_{p}}\phi' + \frac{15}{4}\frac{p_{4}}{p_{3}}\frac{\tau}{\tau''_{p}}\phi''}{(1-\epsilon') + \frac{14}{9}\alpha'}$$
(a.II.13)
$$(1-\epsilon') + \frac{14}{9}\alpha'$$
$$< {}^{1/2}F_{z} > = \frac{\left\{\frac{1}{3}(1-\epsilon') - \frac{2}{9}\alpha'\right\} < I_{z} >_{f} + \frac{1}{2}\frac{\tau}{\tau_{p}}\phi + 2\frac{\tau}{\tau'_{p}}\phi' + \frac{3}{4}\frac{p_{4}}{p_{3}}\frac{\tau}{\tau''}\phi'' + \frac{\alpha'}{1-\epsilon'}\left\{2\frac{\tau}{\tau_{\tau}}\phi' + \frac{1}{3}\frac{p_{4}}{p_{3}}\frac{\tau}{\tau''}\phi''\right\}}{(1-\epsilon') + \frac{14}{9}\alpha'}$$

(a.II.14)

En reportant les valeurs (a.II.13) et (a.II.14) de < ${}^{3/2}F_z$ > et < ${}^{1/2}F_z$ > dans l'équation (a.II.8), on obtient < I_z >_f, après simplification :

$$<\mathbf{I}_{z}>_{f} = K \left\{ 1 - \frac{\frac{40}{27} \frac{T_{r}}{T} (\frac{\omega_{1m}}{3})^{2} \left[1 + \frac{5}{4} \frac{p_{4}}{P} - \frac{9}{4} \frac{p_{4}}{P} \varepsilon \right]}{(\omega - \frac{2}{3} \omega_{m})^{2} + \frac{1}{\tau^{2}} \left[\frac{4}{9} + \frac{p_{4}}{P} (\frac{5}{9} - \varepsilon) \right]^{2} + \frac{40}{27} \frac{T_{r}}{T} (\frac{\omega_{1m}}{3})^{2} \left[1 + \frac{5}{4} \frac{p_{4}}{P} - \frac{9}{4} \frac{p_{4}}{P} \varepsilon \right] \right\}$$

(a.II.15)

$$K = \frac{T_r}{T} \left[\frac{\tau}{\tau_p} \phi + \frac{\tau}{\tau'_p} \phi' + \frac{\tau}{\tau''_p} \frac{p_4}{p_3} \phi'' \right]$$
(a.II.16)

b) Résonance dans le niveau F' = 1/2 de (³He, $2^{3}S_{1}$)

On calcule de même la forme de la courbe de résonance dans le niveau F' = 1/2 de (³He, 2³S₁) ($\omega \approx \frac{4}{3} \omega_m$). D'après (a.II.3) :

$$\mathcal{R}_{e} \left({}^{1/2}f_{+} \right) = \frac{2}{3} \omega_{1m} < {}^{1/2}F_{z} > \frac{\frac{7}{9\tau} + \frac{1}{\tau} \frac{p_{4}}{p} \left(\frac{2}{9} - \varepsilon \right)}{\left[\frac{7}{9\tau} + \frac{1}{\tau} \frac{p_{4}}{p} \left(\frac{2}{9} - \varepsilon \right) \right]^{2} + \left(\omega - \frac{4}{3} \omega_{m} \right)^{2}}$$
(a.II.17)

Donc il suffit de résoudre le système :

$$\begin{pmatrix} \frac{4}{9} (1-\varepsilon^{\dagger}) & -\frac{10}{9} (1-\varepsilon^{\dagger}) \\ -\frac{1}{9} (1-\varepsilon^{\dagger}) & \frac{7}{9} (1-\varepsilon^{\dagger}+\beta^{\dagger}) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} < \frac{3}{2}F_{z} > \\ \\ \\ < \frac{1}{2}F_{z} > \\ < \frac{1}{2}F_{z} > \end{pmatrix} = < I_{z} >_{f} \begin{pmatrix} \frac{10}{9} (1-\varepsilon^{\dagger}) \\ \\ \\ -\frac{1}{9}(1-\varepsilon^{\dagger}) \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \frac{\tau}{\tau_{p}} \phi + \frac{5}{6} \frac{p_{4}}{p_{3}} \frac{\tau}{\tau_{p}^{\dagger}} \phi^{\dagger} \\ \\ \frac{\tau}{\tau_{p}} \phi^{\dagger} + \frac{1}{6} \frac{p_{4}}{p_{3}} \frac{\tau}{\tau_{p}^{\dagger}} \phi^{\dagger} \end{pmatrix}$$

(a.II.18)

$$\beta' = \frac{4 \left(\frac{\omega_{1m}}{3}\right)^{2} \left[1 + \frac{2}{7} \frac{p_{4}}{p} - \frac{9}{7} \frac{p_{4}}{p} \varepsilon\right]}{\left[\frac{7}{9\tau} + \frac{1}{\tau} \frac{p_{4}}{p} \left(\frac{2}{9} - \varepsilon\right)\right]^{2} + \left(\omega - \frac{4}{3} \omega_{m}\right)^{2}}$$
(a.II.19)

En procédant comme pour la résonance du niveau F = 3/2, on obtient :

$$<\mathbf{I}_{z}>_{f} = K \left\{ 1 - \frac{\frac{28}{27} \frac{T_{r}}{T} (\frac{\omega_{1m}}{3})^{2} \left[1 + \frac{2}{7} \frac{p_{4}}{P} - \frac{9}{7} \frac{p_{4}}{P} \varepsilon \right]}{(\omega - \frac{4}{3} \omega_{m})^{2} + \frac{1}{\tau^{2}} \left[\frac{7}{9\tau} + \frac{1}{\tau} \frac{p_{4}}{P} (\frac{2}{9} - \varepsilon)\right]^{2} + \frac{28}{27} \frac{T_{r}}{T} (\frac{\omega_{1m}}{3})^{2} \left[1 + \frac{2}{7} \frac{p_{4}}{P} - \frac{9}{7} \frac{p_{4}}{P} \varepsilon \right]} \right\}$$

(a.II.20)

avec :

avec :
c) <u>Résonance dans le niveau (⁴He, 2³S₁)</u>

Enfin, supposons que $\omega \simeq \omega_m$. D'après (a.II.1) :

$$\mathcal{R}_{e}(S_{+}) = \frac{\omega_{1m}}{2} \langle S_{z} \rangle \frac{\frac{1}{\tau} \frac{p_{3}}{p} (1-\varepsilon)}{\left[\frac{1}{\tau} \frac{p_{3}}{p} (1-\varepsilon)\right]^{2} + (\omega - \omega_{m})^{2}}$$
(a.II.21)

L'équation (a.II.5) devient ainsi :

$$0 = -\frac{1}{\tau} \frac{p_3}{p} (1-\varepsilon) < S_z > (1+\gamma') - \frac{1}{\tau} \frac{p_3}{p} (1-\varepsilon) \left[\frac{2}{3} < \frac{2}{3} F_z > + \frac{4}{3} < \frac{1}{2} F_z > \right] + \frac{\phi''}{\tau''_p} (a.II.22)$$

avec :

$$\gamma' = \frac{1}{4} \frac{(\omega_{1m})^{2}}{\left[\frac{1}{\tau} \frac{p_{3}}{P} (1-\epsilon)\right]^{2} + (\omega - \omega_{m})^{2}}$$
(a.II.23)

En procédant comme précédemment, on est conduit à résoudre le système :

Après résolution et simplification, on obtient, en reportant les valeurs de ${}^{3/2}F_z > et < {}^{1/2}F_z > ainsi trouvées dans (a.II.8) :$

$$<\mathbf{I}_{z}_{f} = K \left\{ 1 - \frac{\frac{2}{3} \frac{T_{r}}{T} \frac{p_{4}}{p} (\omega_{1m})^{2} \left[1 + \varepsilon \left(\frac{21}{16} \frac{p_{3}}{p} - \frac{43}{15}\right) \right]}{\left[\omega - \omega_{m} \right]^{2} + \left[\frac{1}{\tau} \frac{p_{3}}{p} (1 - \varepsilon) \right]^{2} + \frac{2}{3} \frac{T_{r}}{T} \frac{p_{4}}{p} (\omega_{1m})^{2} \left[1 + \varepsilon \left(\frac{21}{16} \frac{p_{3}}{p} - \frac{43}{15}\right) \right]} \right\}$$
(a.II.25)

- a.II.5 -

- a.II.6 -

d) Calcul des déplacements de fréquence des résonances

Nous cherchons maintenant l'effet de la circulation de la cohérence entre les deux niveaux hyperfins de (³He, 2³S₁) et le niveau (⁴He, 2³S₁) sur la position des résonances dans ces trois niveaux. Nous procédons comme dans le cas de ³He pur (cf. § B,II,4,6). Supposons qu'on fasse la résonance dans le niveau F = 3/2 de (³He, 2³S₁) : $\omega \simeq \frac{2}{3} \omega_m$. Dans l'équation (a.II.2) nous allons évaluer l'ordre de grandeur des termes en $\frac{1}{2}f_+$ et S₊ que nous avons négligés jusqu'ici. Ayant toujours la condition $\omega_m \tau >> 1$, on déduit de (a.II.1) et (a.II.3) :

$$S_{+} \simeq \frac{i}{6} \frac{p_{3}}{P} \frac{1}{\omega_{m} \tau} \frac{\sqrt[3]{2}}{f_{+}} + \frac{\sqrt[1]{2}}{f_{+}} \simeq 2i \frac{p_{3}}{P} (1-\epsilon) \frac{1}{\omega_{m} \tau} \frac{\sqrt[3]{2}}{f_{+}} + \frac{1}{2} \frac{1}{\omega_{m} \tau} \frac{1}{\omega_{m$$

on en déduit, en remportant ces quantités dans (a.II.2) :

$$\mathcal{R}_{e}({}^{3/2}f_{+}) \simeq \frac{\omega_{1m}}{3} < {}^{3/2}F_{z} > \frac{\left[\frac{4}{9\tau} + \frac{1}{\tau}\frac{p_{+}}{p}(\frac{5}{4} - \varepsilon)\right]}{\left[\frac{4}{9\tau} + \frac{1}{\tau}\frac{p_{+}}{p}(\frac{5}{4} - \varepsilon)\right]^{2} + (\omega - \frac{2}{3}\omega_{m} - \delta\omega^{3/2})^{2}}$$
(a.II.26)

avec :

et

$$\delta \omega^{\frac{3}{2}} \simeq \frac{5}{27} \frac{p_3}{P} \frac{1}{\omega_m \tau^2} \left[1 + 8 \frac{p_4}{P} - 18 \frac{p_4}{P} \varepsilon \right]$$
(a.II.27)

L'équation (a.II.26) est à substituer à (a.II.9). Le calcul est identique à celui du § a, en remplaçant partout, et en particulier dans (a.II.15), $\omega - \frac{2}{3} \omega_{\rm m}$ par $\omega - \frac{2}{3} \omega_{\rm m} - \delta \omega^{3/2}$. On trouve ainsi que la fréquence centrale de la résonance du niveau F = 3/2 de (³He, 2³S₁) est déplacée de $\delta \omega^{3/2}$ vers les fréquences élevées.

De même, pour la résonance du niveau F' = 1/2 de (³He, 2³S₁) :

$$\omega \approx \frac{4}{3} \omega_{\rm m} \, d' \, o \tilde{u} :$$

$${}^{3/2} f_{+} \approx -\frac{5}{3} \, i \, \frac{p_3}{P} \, \frac{1}{\omega_{\rm m} \tau} \, {}^{1/2} f_{+}$$

et
$$S_+ \simeq -4$$

En reportant ces valeurs dans (a.II.3), on déduit que $(\omega - \frac{4}{3} \omega_m)$ est à remplacer partout dans le calcul $(\omega - \frac{4}{3} \omega_m - \delta \omega^{1/2})$ avec :

i $(1 - \epsilon) \frac{p_3}{p} \frac{1}{\omega_m \tau} \frac{1}{\omega_m \tau} f_+$

$$\delta \omega^{\frac{1}{2}} \simeq -\frac{5}{27} \frac{p_3}{P} \frac{1}{\omega_m \tau^2} \left[1 + \frac{13}{5} \frac{p_4}{P} - \frac{36}{5} \frac{p_4}{P} \varepsilon \right]$$
(a.II.28)

Enfin, pour la résonance du niveau (⁴He, $2^{3}S_{1}$), $\omega \simeq \omega_{m}$, et donc :

$${}^{3}\!{}^{2}\mathbf{f}_{+} \simeq -\frac{5}{2} \mathbf{i} \quad (1-\varepsilon) \quad \frac{p_{+}}{P} \frac{1}{\omega_{m}\tau} \mathbf{S}_{+}$$
$${}^{1}\!{}^{2}\mathbf{f}_{+} \simeq \frac{\mathbf{i}}{2} (1-\varepsilon) \quad \frac{p_{+}}{P} \frac{1}{\omega_{m}\tau} \mathbf{S}_{+}$$

et en reportant ces valeurs dans (a.II.1), on voit qu'il faut remplacer ($\omega - \omega_m$) par ($\omega - \omega_m - \delta \omega$ (⁴He)) avec :

$$\delta \omega$$
(⁴He) $\simeq - (1-2\varepsilon) \frac{p_3 p_4}{p^2} \frac{1}{\omega_m \tau^2}$

(a.II.29)

APPENDICE a.III

Nous calculons ici le diagramme Zeeman de l'ion ³He⁺ dans son niveau fondamental 1²S_{1/2}. Soient \vec{I} son moment angulaire de spin nucléaire et \vec{J} son moment angulaire électronique. Comme I et J valent 1/2, le hamiltonien \mathcal{K} de l'atome en présence d'un champ magnétique \vec{B}_0 est particulièrement simple, puisqu'il ne comporte pas de termes d'interaction quadrupolaire :

$$\mathcal{H} = a\vec{1}.\vec{J} + g_{I} \mu_{B} \vec{J}. \vec{B}_{0} + g_{I} \mu_{I} \vec{I}. \vec{B}_{0} \qquad (a.III.1)$$

où a est la constante de structure hyperfine du niveau (³He⁺, 1²S_{1/2}), g_J son facteur de Landé électronique et g_I son facteur de Landé nucléaire (dans la formule (a.III.1), on a fait $\hbar = 1$). Dans une représentation $|F,m_{F}| > des niveaux$ d'énergie, on sait que les niveaux |1,+1> et |1,-1> sont des fonctions linéaires de B₀, tandis que les niveaux |1,0> et |0,0>, correspondant à une même valeur de m_F, sont couplés par la partie aI.J du hamiltonien. En diagonalisant la matrice correspondant au hamiltonien total \mathcal{H} , on obtient l'énergie W(F,m_F) des quatre sous-niveaux Zeeman de (³He⁺, 1²S_{1/2}) en champ quelconque :

$$W(0,0) = -\frac{a}{4} + \frac{1}{2} \sqrt{a^{2} + (g_{J} \mu_{B} - g_{I} \mu_{I}) B_{0}^{2}}$$

$$W(1,+1) = \frac{a}{4} + \frac{1}{2} \left[g_{J} \mu_{B} + g_{I} \mu_{I} \right] B_{0}$$

$$W(1,0) = -\frac{a}{4} - \frac{1}{2} \sqrt{a^{2} + (g_{J} \mu_{B} - g_{I} \mu_{I})^{2} B_{0}^{2}}$$

$$W(1,-1) = \frac{a}{4} - \frac{1}{2} \left[g_{J} \mu_{B} + g_{I} \mu_{I} \right] B_{0}$$

(a.III.2)

La valeur de a est négative.

Le diagramme Zeeman résultant des formules (a.III.2) est représenté sur la fiture 43. Calculons la position des résonances en découplage hyperfin partiel pour le niveau F = 1 :

$$W(1,+1) - W(1,0) = \frac{1}{2} \left[g_{J} \mu_{B} + g_{I} \mu_{B} \right] B_{0} + \frac{a}{2} + \frac{1}{2} \sqrt{a^{2} + (g_{J} \mu_{B} - g_{I} \mu_{I})^{2} B_{0}^{2}}$$
$$W(1,0) - W(1,-1) = \frac{1}{2} \left[g_{J} \mu_{B} + g_{I} \mu_{I} \right] B_{0} - \frac{a}{2} - \frac{1}{2} \sqrt{a^{2} + (g_{J} \mu_{B} - g_{I} \mu_{I})^{2} B_{0}^{2}}$$

Si l'on applique un champ de radiofréquence oscillant à la pulsation ω_J , les deux résonances se produisent pour des valeurs B₀₁ et B₀₂ telles que :

$$\omega_{J} = \frac{1}{2} (g_{J}\mu_{B} + g_{I}\mu_{I}) B_{01} + \frac{a}{2} + \frac{1}{2} \sqrt{a^{2} + (g_{J}\mu_{B} - g_{I}\mu_{I})^{2} B_{01}^{2}}$$

$$= \frac{1}{2} (g_{J}\mu_{B} + g_{I}\mu_{I}) B_{02} - \frac{a}{2} - \frac{1}{2} \sqrt{a^{2} + (g_{J}\mu_{B} - g_{I}\mu_{I})^{2} B_{02}^{2}}$$
(a.III.3)

Les expressions (a.III.3) sont rigoureuses, quelle que soit la valeur de ω_1 .

On peut faire quelques approximations, de façon à obtenir simplement un ordre de grandeur de la séparation $B_{01} - B_{02}$ des deux résonances pour un découplage hyperfin faible : on suppose $g_J \mu_B B_0 << |a|$; de plus on néglige $g_I \mu_I$ devant $g_J \mu_B (g_I \mu_I \approx 10^{-3} g_J \mu_B)$; on obtient ainsi :

$$\Delta B_0 = B_{02} - B_{01} \simeq \frac{g_J \mu_B B_0^2}{|a|}$$
(a.III.4)

En champ B₀ faible, le découplage de la résonance du niveau F = 1 de (³He⁺, 1²S_{1/2}) croît comme le carré de B₀. Par exemple, pour B₀ \simeq 10 Gs, comme g_J \approx 2 et a = 8.665 MHz [¹⁰⁰], on trouve :

 $\Delta B_0 \simeq 30 \text{ mGs}$

APPENDICE a.IV

Nous établissons ici l'équation qui donne l'évolution de l'orientation dans le sous-niveau hyperfin F = 1 de l'état fondamental $1^2S_{1/2}$ de l'ion ³He⁺, sous l'effet des collisions d'échange de charge avec les atomes neutres ³He dans l'état fondamental 1^1S_0 . Soit ρ_i et ρ_f respectivement les matrices densités de (³He⁺, $1^2S_{1/2}$) et (³He, 1^1S_0). On définit ainsi la valeur moyenne de l'orientation stationnaire dans le niveau F = 1 de (³He⁺, $1^2S_{1/2}$) :

$$\langle {}^{1}\vec{F} \rangle = Tr (\rho_{i} \vec{F})$$
 (a.IV.1)

de même pour l'orientation électronique de (³He⁺, $1^{2}S_{1/2}$) :

$$\langle \vec{J} \rangle = \text{Tr} (\rho_i \vec{J})$$
 (a.IV.2)

et enfin pour l'orientation nucléaire de (³He, l^1S_0) :

$$\langle \vec{I} \rangle_{f} = Tr (\rho_{f} \vec{I})$$
 (a.IV.3)

L'évolution de $\langle {}^{1}\vec{F} \rangle$ sous l'effet des collisions d'échange de charge s'obtient (cf. § B, V,3, γ , a) à partir du tableau VII :

$$\frac{d}{dt} < {}^{1}\overrightarrow{F} > = -\frac{1}{\tau} < {}^{1}\overrightarrow{F} > + \frac{1}{\tau} \operatorname{Tr} \left[\overrightarrow{F} P_{1} \left(\rho_{f} \otimes \operatorname{Tr}_{n} \rho_{i} \right) \right]$$
(a.IV.4)

où Tr_n désigne l'opération de trace partielle sur les variables nucléaires, P₁ le projecteur sur le sous-niveau hyperfin F = 1 de (³He⁺, $1^2S_{1/2}$).

On peut écrire :

$$P_1 = \frac{3}{4} + \vec{1}.\vec{J}$$
 (a.IV.5)

Si α , β , γ sont les indices référant aux projections des orientations sur les 3 axes de coordonnées, on calcule d'après (a.IV.5) :

$$\operatorname{Tr}\left[F_{\alpha}P_{1}(\rho_{f} \otimes \operatorname{Tr}_{n} \rho_{i})\right] = \operatorname{Tr}\left[(I_{\alpha}+J_{\alpha})(\frac{3}{4}+\vec{1}.\vec{J})(\rho_{f} \otimes \operatorname{Tr}_{n} \rho_{i})\right]$$

En utilisant les relations (I = 1/2, J = 1/2) :

$$I_{\alpha} I_{\beta} = \frac{i}{2} \varepsilon_{\alpha\beta\gamma} I_{\gamma} + \frac{\delta_{\alpha\beta}}{4}$$
$$J_{\alpha} J_{\beta} = \frac{i}{2} \varepsilon_{\alpha\beta\gamma} J_{\gamma} + \frac{\delta_{\alpha\beta}}{4}$$

et les relations (a.IV.2) et (a.IV.3), on obtient :

$$\operatorname{Tr}\left[\left(\mathbf{I}_{\alpha}+\mathbf{J}_{\alpha}\right)\left(\frac{3}{4}+\vec{\mathbf{I}},\vec{\mathbf{J}}\right)\left(\rho_{f}\otimes\operatorname{Tr}_{n}\rho_{i}\right)\right] = \frac{3}{4} < \mathbf{I}_{\alpha} >_{f} + \frac{3}{4} < \mathbf{J}_{\alpha} >$$
$$+ \sum_{\beta} < \mathbf{J}_{\beta} > \left(\frac{i}{2} \varepsilon_{\alpha\beta\gamma} < \mathbf{I}_{\gamma} >_{f} + \frac{\delta_{\alpha\beta}}{4}\right) + \sum_{\beta} < \mathbf{I}_{\beta} > \left(\frac{i}{2} \varepsilon_{\alpha\beta\gamma} < \mathbf{J}_{\gamma} > + \frac{\delta_{\alpha\beta}}{4}\right)$$
$$= < \mathbf{I}_{\alpha} >_{f} + < \mathbf{J}_{\alpha} >$$

Or :

$$< J_{\alpha} > = \frac{1}{2} < {}^{1}F_{\alpha} >$$

L'équation (a.IV.4) prend donc la forme suivante :

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t} < {}^{1}\overrightarrow{\mathrm{F}} > = -\frac{1}{\tau} < {}^{1}\overrightarrow{\mathrm{F}} > +\frac{1}{\tau} \left[\frac{1}{2} < {}^{1}\overrightarrow{\mathrm{F}} > + < \overrightarrow{\mathrm{I}} >_{\mathrm{f}} \right] \qquad (a.\mathrm{IV.6})$$

c) Résonance dans le niveau (⁴He, 2³S₁)

Enfin, supposons que $\omega \simeq \omega_m$. D'après (a.II.1) :

$$\mathcal{R}_{e}(S_{+}) = \frac{\omega_{1m}}{2} \langle S_{z} \rangle - \frac{\frac{1}{\tau} \frac{p_{3}}{p} (1 - \varepsilon)}{\left[\frac{1}{\tau} \frac{p_{3}}{p} (1 - \varepsilon)\right]^{2} + (\omega - \omega_{m})^{2}} \qquad (a.11.21)$$

L'équation (a.II.5) devient ainsi :

$$0 = -\frac{1}{\tau} \frac{p_3}{p} (1-\epsilon) < S_z > (1+\gamma') - \frac{1}{\tau} \frac{p_3}{p} (1-\epsilon) \left[\frac{2}{3} < \frac{2}{3}F_z > + \frac{4}{3} < \frac{1}{2}F_z > \right] + \frac{\phi''}{\tau''_p} (a.II.22)$$

avec :

$$\gamma' = \frac{1}{4} \frac{(\omega_{1m})^2}{\left[\frac{1}{\tau} \frac{p_3}{p} (1-\epsilon)\right]^2 + (\omega - \omega_m)^2}$$
(a.II.23)

En procédant comme précédemment, on est conduit à résoudre le système :

Après résolution et simplification, on obtient, en reportant les valeurs de ${}^{3/2}F_z > et < {}^{1/2}F_z > ainsi trouvées dans (a.II.8) :$

$$\langle \mathbf{I}_{z} \rangle_{f} = K \left\{ 1 - \frac{\frac{2}{3} \frac{T_{r}}{T} \frac{p_{4}}{P} (\omega_{1m})^{2} \left[1 + \varepsilon \left(\frac{21}{16} \frac{p_{3}}{P} - \frac{43}{15}\right) \right]}{\left[\omega - \omega_{m} \right]^{2} + \left[\frac{1}{\tau} \frac{p_{3}}{P} (1 - \varepsilon) \right]^{2} + \frac{2}{3} \frac{T_{r}}{T} \frac{p_{4}}{P} (\omega_{1m})^{2} \left[1 + \varepsilon \left(\frac{21}{16} \frac{p_{3}}{P} - \frac{43}{15}\right) \right]} \right\}$$
(a.II.25)

- a.II.5 -

d) Calcul des déplacements de fréquence des résonances

Nous cherchons maintenant l'effet de la circulation de la cohérence entre les deux nivcaux hyperfins de (³He, 2³S₁) et le niveau (⁴He, 2³S₁) sur la position des résonances dans ces trois niveaux. Nous procédons comme dans le cas de ³He pur (cf. § B,II,4,6). Supposons qu'on fasse la résonance dans le niveau F = 3/2 de (³He, 2³S₁) : $\omega \approx \frac{2}{3} \omega_m$. Dans l'équation (a.II.2) nous allons évaluer l'ordre de grandeur des termes en $\frac{1}{2}f_+$ et S₊ que nous avons négligés jusqu'ici. Ayant toujours la condition $\omega_m \tau >> 1$, on déduit de (a.II.1) et (a.II.3) :

et

$$S_{+} \simeq \frac{i}{6} \frac{p_{3}}{P} \frac{1}{\omega_{m} \tau} \frac{3}{2} f_{+}$$

$$\frac{1}{2} f_{+} \simeq 2i \frac{p_{3}}{P} (1-\epsilon) \frac{1}{\omega_{m} \tau} \frac{3}{2} f_{+}$$

on en déduit, en remportant ces quantités dans (a.II.2) :

$$\mathcal{R}_{e}({}^{3/2}f_{+}) \simeq \frac{\omega_{1m}}{3} < {}^{3/2}F_{z} > \frac{\left[\frac{4}{9\tau} + \frac{1}{\tau}\frac{p_{+}}{p}(\frac{5}{4} - \varepsilon)\right]}{\left[\frac{4}{9\tau} + \frac{1}{\tau}\frac{p_{+}}{p}(\frac{5}{4} - \varepsilon)\right]^{2} + (\omega - \frac{2}{3}\omega_{m} - \delta\omega^{3/2})^{2}}$$
(a.II.26)

avec :

$$\delta \omega^{3/2} \simeq \frac{5}{27} \frac{p_3}{P} \frac{1}{\omega_m \tau^2} \left[1 + 8 \frac{p_4}{P} - 18 \frac{p_4}{P} \varepsilon \right]$$
 (a.II.27)

L'équation (a.II.26) est à substituer à (a.II.9). Le calcul est identique à celui du § a, en remplaçant partout, et en particulier dans (a.II.15), $\omega - \frac{2}{3} \omega_{\rm m}$ par $\omega - \frac{2}{3} \omega_{\rm m} - \delta \omega^{3/2}$. On trouve ainsi que la fréquence centrale de la résonance du niveau F = 3/2 de (³He, 2³S₁) est déplacée de $\delta \omega^{3/2}$ vers les fréquences élevées.

De même, pour la résonance du niveau F' = 1/2 de (³He, 2³S₁) :

$$\omega \simeq \frac{4}{3} \omega_{\rm m} \, d' \circ \tilde{u} :$$

$${}^{3/2}f_{+} \simeq -\frac{5}{3} \, i \, \frac{p_3}{P} \frac{1}{\omega_{\rm m} \tau} \, {}^{1/2}f_{+}$$

et
$$S_{+} \simeq -4 i (1 - \epsilon) \frac{p_{3}}{P} \frac{1}{\omega_{m} \tau} f_{+}^{1/2}$$

En reportant ces valeurs dans (a.II.3), on déduit que $(\omega - \frac{4}{3}\omega_m)$ est à remplacer partout dans le calcul $(\omega - \frac{4}{3}\omega_m - \delta\omega^{1/2})$ avec :

$$\delta \omega^{\frac{1}{2}} \simeq -\frac{5}{27} \frac{p_3}{P} \frac{1}{\omega_m \tau^2} \left[1 + \frac{13}{5} \frac{p_4}{P} - \frac{36}{5} \frac{p_4}{P} \varepsilon \right]$$
(a.II.28)

Enfin, pour la résonance du niveau (⁴He, 2³S₁), $\omega \simeq \omega_{m}$, et donc :

$${}^{3/2}f_{+} \simeq -\frac{5}{2}i (1-\varepsilon) \frac{p_{+}}{P} \frac{1}{\omega_{m}\tau} S_{+}$$
$${}^{1/2}f_{+} \simeq \frac{i}{2} (1-\varepsilon) \frac{p_{+}}{P} \frac{1}{\omega_{m}\tau} S_{+}$$

.

et en reportant ces valeurs dans (a.II.1), on voit qu'il faut remplacer ($\omega - \omega_m$) - par ($\omega - \omega_m - \delta \omega$ (⁴He)) avec :

$$\delta \omega({}^{4}\text{He}) \simeq -(1-2\epsilon) \frac{p_{3} p_{4}}{p^{2}} \frac{1}{\omega_{m} \tau^{2}}$$
 (a.JI.29)

APPENDICE a.III

Nous calculons ici le diagramme Zeeman de l'ion ³He⁺ dans son niveau fondamental $1^{2}S_{1/2}$. Soient \vec{I} son moment angulaire de spin nucléaire et \vec{J} son moment angulaire électronique. Comme I et J valent 1/2, le hamiltonien \mathcal{K} de l'atome en présence d'un champ magnétique \vec{B}_{0} est particulièrement simple, puisqu'il ne comporte pas de termes d'interaction quadrupolaire :

$$\mathcal{H} = a\vec{1}.\vec{J} + g_J \mu_B \vec{J}. \vec{B}_0 + g_I \mu_I \vec{1}. \vec{B}_0 \qquad (a.III.!)$$

où a est la constante de structure hyperfine du niveau (${}^{3}\text{He}^{+}$, ${}^{2}\text{S}_{\frac{1}{2}}$), g_{J} son facteur de Landé électronique et g_{I} son facteur de Landé nucléaire (dans la formule (a.IJI.1), on a fait $\hbar = 1$). Dans une représentation $|F,m_{F}| > des$ niveaux d'énergie, on sait que les niveaux |1,+1> et |1,-1> sont des fonctions linéaires de B₀, tandis que les niveaux |1,0> et |0,0>, correspondant à une même valeur de m_{F} , sont couplés par la partie $a\vec{1}.\vec{J}$ du hamiltonien. En diagonalisant la matrice correspondant au hamiltonien total \mathcal{H} , on obtient l'énergie W(F,m_{F}) des quatre sous-niveaux Zeeman de (${}^{3}\text{He}^{+}$, ${}^{12}\text{S}_{\frac{1}{2}}$) en champ quelconque :

$$W(0,0) = -\frac{a}{4} + \frac{1}{2} \sqrt{a^{2} + (g_{J} \mu_{B} - g_{I} \mu_{I}) B_{0}^{2}}$$

$$W(1,+1) = \frac{a}{4} + \frac{1}{2} \left[g_{J} \mu_{B} + g_{I} \mu_{I} \right] B_{0}$$

$$W(1,0) = -\frac{a}{4} - \frac{1}{2} \sqrt{a^{2} + (g_{J} \mu_{B} - g_{I} \mu_{I})^{2} B_{0}^{2}}$$

$$W(1,-1) = \frac{a}{4} - \frac{1}{2} \left[g_{J} \mu_{B} + g_{I} \mu_{I} \right] B_{0}$$
(a.JII.2)

La valeur de a est négative.

Le diagramme Zeeman résultant des formules (a.III.2) est représenté sur la fiture 43. Calculons la position des résonances en découplage hyperfin partiel pour le niveau F = 1 :

$$W(1,+1) - W(1,0) = \frac{1}{2} \left[g_{J} \mu_{B} + g_{I} \mu_{B} \right] B_{0} + \frac{a}{2} + \frac{1}{2} \sqrt{a^{2} + (g_{J} \mu_{B} - g_{I} \mu_{I})^{2} B_{0}^{2}}$$
$$W(1,0) - W(1,-1) = \frac{1}{2} \left[g_{J} \mu_{B} + g_{I} \mu_{I} \right] B_{0} - \frac{a}{2} - \frac{1}{2} \sqrt{a^{2} + (g_{J} \mu_{B} - g_{I} \mu_{I})^{2} B_{0}^{2}}$$

Si l'on applique un champ de radiofréquence oscillant à la pulsation ω_J , les deux résonances se produisent pour des valeurs B₀₁ et B₀₂ telles que :

$$\omega_{J} = \frac{1}{2} (g_{J}\mu_{B} + g_{I}\mu_{I}) B_{01} + \frac{a}{2} + \frac{1}{2} \sqrt{a^{2} + (g_{J}\mu_{B} - g_{I}\mu_{I})^{2} B_{01}^{2}}$$

$$= \frac{1}{2} (g_{J}\mu_{B} + g_{I}\mu_{I}) B_{02} - \frac{a}{2} - \frac{1}{2} \sqrt{a^{2} + (g_{J}\mu_{B} - g_{I}\mu_{I})^{2} B_{02}^{2}}$$
(a.III.3)

Les expressions (a.III.3) sont rigoureuses, quelle que soit la valeur de ω_{1} .

On peut faire quelques approximations, de façon à obtenir simplement un ordre de grandeur de la séparation $B_{01} - B_{02}$ des deux résonances pour un découplage hyperfin faible : on suppose $g_J \mu_B B_0 << |a|$; de plus on néglige $g_I \mu_I$ devant $g_J \mu_B (g_I \mu_I \simeq 10^{-3} g_J \mu_B)$; on obtient ainsi :

$$\Delta B_0 = B_{02} - B_{01} \simeq \frac{g_J \mu_B B_0^2}{|a|}$$
(a.III.4)

En champ B₀ faible, le découplage de la résonance du niveau F = 1 de $({}^{3}\text{He}^{+}, 1{}^{2}\text{S}_{\frac{1}{2}})$ croît comme le carré de B₀. Par exemple, pour B₀ ~ 10 Gs, comme g_J ~ 2 et a = 8.665 MHz [100], on trouve :

 $\Delta B_0 \simeq 30 \text{ mGs}$

APPENDICE a.IV

Nous établissons ici l'équation qui donne l'évolution de l'orientation dans le sous-niveau hyperfin F = 1 de l'état fondamental $1^{2}S_{1/2}$ de l'ion ³He⁺, sous l'effet des collisions d'échange de charge avec les atomes neutres ³He dans l'état fondamental $1^{1}S_{0}$. Soit ρ_{i} et ρ_{f} respectivement les matrices densités de (³He⁺, $1^{2}S_{1/2}$) et (³He, $1^{1}S_{0}$). On définit ainsi la valeur moyenne de l'orientation stationnaire dans le niveau F = 1 de (³He⁺, $1^{2}S_{1/2}$) :

$$\langle {}^{1}\vec{F} \rangle = Tr (\rho_{1} \vec{F})$$
 (a.IV.1)

de même pour l'orientation électronique de (³He⁺, $1^{2}S_{1_{2}}$) :

$$\langle \vec{j} \rangle = \text{Tr} (\rho_i \vec{j})$$
 (a.IV.2)

et enfin pour l'orientation nucléaire de (³He, l $^{1}S_{0}$) :

$$\langle \vec{I} \rangle_{f} = Tr (\rho_{f} \vec{I})$$
 (a.IV.3)

L'évolution de < $^{1}\overrightarrow{F}$ > sous l'effet des collisions d'échange de charge s'obtient (cf. § B, V,3, γ , a) à partir du tableau VII :

$$\frac{d}{dt} < {}^{1}\overrightarrow{F} > = -\frac{1}{\tau} < {}^{1}\overrightarrow{F} > +\frac{1}{\tau} \operatorname{Tr} \left[\overrightarrow{F} P_{1} \left(\rho_{f} \otimes \operatorname{Tr}_{n} \rho_{i} \right) \right]$$
(a.IV.4)

où Tr_n désigne l'opération de trace partielle sur les variables nucléaires, P₁ le projecteur sur le sous-niveau hyperfin F = 1 de (³He⁺, 1²S_{1/2}).

On peut écrire :

$$P_1 = \frac{3}{4} + \vec{1}.\vec{J}$$
 (a.IV.5)

Si α , β , γ sont les indices référant aux projections des orientations sur les 3 axes de coordonnées, on calcule d'après (a.IV.5) :

$$\operatorname{Tr}\left[F_{\alpha}P_{1}(\rho_{f} \otimes \operatorname{Tr}_{n} \rho_{i})\right] = \operatorname{Tr}\left[\left(I_{\alpha}+J_{\alpha}\right)\left(\frac{3}{4}+\vec{1},\vec{J}\right)\left(\rho_{f} \otimes \operatorname{Tr}_{n} \rho_{i}\right)\right]$$

En utilisant les relations (I = 1/2, J = 1/2) :

$$I_{\alpha} I_{\beta} = \frac{i}{2} \varepsilon_{\alpha\beta\gamma} I_{\gamma} + \frac{\delta_{\alpha\beta}}{4}$$
$$J_{\alpha} J_{\beta} = \frac{i}{2} \varepsilon_{\alpha\beta\gamma} J_{\gamma} + \frac{\delta_{\alpha\beta}}{4}$$

et les relations (a.IV.2) et (a.IV.3), on obtient :

$$\operatorname{Tr}\left[\left(\mathbf{I}_{\alpha}+\mathbf{J}_{\alpha}\right)\left(\frac{3}{4}+\overrightarrow{\mathbf{I}},\overrightarrow{\mathbf{J}}\right)\left(\rho_{f}\otimes\operatorname{Tr}_{n}\rho_{i}\right)\right] = \frac{3}{4} < \mathbf{I}_{\alpha} >_{f} + \frac{3}{4} < \mathbf{J}_{\alpha} >$$
$$+ \sum_{\beta} < \mathbf{J}_{\beta} > \left(\frac{i}{2} \varepsilon_{\alpha\beta\gamma} < \mathbf{I}_{\gamma} >_{f} + \frac{\delta_{\alpha\beta}}{4}\right) + \sum_{\beta} < \mathbf{I}_{\beta} > \left(\frac{i}{2} \varepsilon_{\alpha\beta\gamma} < \mathbf{J}_{\gamma} > + \frac{\delta_{\alpha\beta}}{4}\right)$$
$$= < \mathbf{I}_{\alpha} >_{f} + < \mathbf{J}_{\alpha} >$$

Or :

$$< J_{\alpha} > = \frac{1}{2} < {}^{1}F_{\alpha} >$$

L'équation (a.IV.4) prend donc la forme suivante :

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{dt}} < {}^{1}\overrightarrow{\mathrm{F}} > = -\frac{1}{\tau} < {}^{1}\overrightarrow{\mathrm{F}} > +\frac{1}{\tau} \left[\frac{1}{2} < {}^{1}\overrightarrow{\mathrm{F}} > + < \overrightarrow{\mathrm{I}} >_{\mathrm{f}} \right] \qquad (a.\mathrm{IV},6)$$

.